



AVERTISSEMENT

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

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

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

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

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

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

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

236000/403

05INPL0570

(11) 2005 THUINET L.1

Ecole Doctorale EMMA

Institut National Polytechnique de Lorraine

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **Science et ingénierie des matériaux**

Présentée et soutenue publiquement

Par

Ludovic THUINET

Le 11 juillet 2005

Titre :

Solidification des aciers ternaires :
modélisation de la microségrégation en croissance dendritique colonnaire, prise en compte de la
réaction péritectique

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

Directeurs de thèse :

M. Hervé COMBEAU, professeur

M. Gérard LESOULT, professeur

JURY

M. Dominique GOBIN, Président

M. Yves FAUTRELLE, Rapporteur

M. Markus RETTENMAYR, Rapporteur

M. Pierre-Emmanuel RICHY, Examineur

M. Hervé COMBEAU

M. Gérard LESOULT

REMERCIEMENTS

Le travail de recherche décrit dans cette thèse a été effectué au sein du groupe solidification dans le Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie (LSG2M), durant la période d'octobre 2001 à décembre 2004. Je tiens donc à exprimer ma profonde gratitude à tous ceux qui ont rendu possible l'accomplissement de cette thèse.

Je voudrais remercier le LSG2M, ainsi que tous les partenaires industriels de ce projet (en particulier ARCELOR, ASCOMETAL, AUBERT&DUVAL, ERASTEEL, INDUSTEEL, S&CC, et TRANSVALOR) pour leur support technique et financier tout au long de ce programme. Je suis conscient de l'effort et du temps fournis par Pierre-Emmanuel RICHY pour faire parti du jury de ma thèse et pour cela je voudrais lui adresser ma profonde gratitude, ainsi qu'à tous les autres membres du jury.

Bien sûr, mes plus sincères remerciements vont à Hervé COMBEAU qui a su me guider dans le traitement d'un sujet aux multiples ramifications et me prodiguer des conseils constructifs tout au long de mes recherches. Ses profondes connaissances du sujet ont été le rocher sur lequel je pouvais avoir confiance dans l'exécution de mon travail. Je voudrais également remercier Gérard LESOULT, dont l'expérience m'a inspiré dans mes recherches et m'a parfois permis d'avoir une approche différente de certains problèmes.

Il m'est impossible d'oublier mes anciens collègues de bureau, à commencer bien entendu par Anne-Gwenaëlle, dont l'humour, la complicité et le soutien moral font de ces trois années de thèse une période synonyme de bonne humeur et de discussions passionnantes, mais aussi Taha, dont la sagesse et la sérénité m'ont servi de modèle tout au long de mon travail, et Ana-Maria, au dynamisme et à l'énergie communicative.

Je voudrais également remercier Aziz qui travaillait sur le même projet que moi. La quantité et la qualité du travail expérimental qu'il a fourni sont pour moi d'une valeur inestimable. Les nombreuses discussions que nous avons eues ensemble m'ont aidé à mieux comprendre mon sujet et les travaux exposés dans cette thèse lui doivent beaucoup.

Je voudrais adresser ma profonde gratitude à Anne-Marie et Géraldine, ainsi qu'aux autres secrétaires du laboratoire. Leur dévouement, leur disponibilité et leur bonne humeur donnent indéniablement à ce laboratoire une partie de son âme.

Et enfin, comment pourrais-je oublier de remercier mes parents et mes frangins, quelquefois amusés par l'intitulé de ma thèse dans lequel ils ont su trouver une poésie cachée, mais toujours confiants et derrière moi quelque soit mes choix. C'est en grande partie grâce à eux que ce travail a abouti et pour cela je les en remercie.

TABLE DES MATIERES

NOMENCLATURE	8
INTRODUCTION GENERALE	10
I - REVUE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'ETUDE DE LA MICROSEGREGATION ET DES MICROSTRUCTURES.....	13
I - 1. Approche théorique de la microségrégation.....	13
I - 1.1. Phénomènes cinétiquement limitants	13
I - 1.2. Modèles de microségrégation.....	15
I - 2. Diagrammes d'équilibre de phases.....	21
I - 2.1. Règle des phases de Gibbs	21
I - 2.2. Application à un système binaire diphasé ou triphasé	21
I - 2.3. Application à un système ternaire diphasé ou triphasé-équilibre monovariant.....	22
I - 2.4. Méthode de calcul des diagrammes d'équilibre de phases : la méthode CALPHAD....	24
I - 2.5. Méthodes de couplage des modèles de microségrégation avec les logiciels de calcul d'équilibre thermodynamique.....	26
I - 3. Réaction et transformation péritectique	27
I - 3.1. Travaux expérimentaux sur la réaction et la transformation péritectique	27
I - 3.2. Travaux antérieurs sur la modélisation de la réaction et de la transformation péritectique.....	29
I - 3.3. Discussion sur la nature de l'équilibre δ/γ lors de la régression de la ferrite.....	32
I - 4. Microstructures.....	33
I - 4.1. Modèles de microségrégation 1D avec prise en compte de microstructures dendritiques complexes.....	34
I - 4.2. Distance entre bras primaires de dendrites.....	36

I - 4.3. Distance entre bras secondaires de dendrites	36
I - 5. Conclusions	40
II - MODELISATION DE LA MICROSEGREGATION EN CROISSANCE DENDRITIQUE COLONNAIRE.....	41
II - 1. Spécification du domaine d'étude de la microségrégation	41
II - 1.1. morphologie simplifiée	42
II - 1.2. morphologie complexe.....	43
II - 2. Équations constitutives du modèle de microségrégation	47
II - 2.1. Équilibre thermodynamique interfacial	47
II - 2.2. Équation caractéristique du refroidissement	47
II - 2.3. Bilan de conservation de masse en soluté à l'interface entre deux phases ϕ_1/ϕ_2	48
II - 2.4. Bilan de conservation de la masse en soluté dans la phase ϕ	49
II - 2.5. Prise en compte de la maturation	51
II - 3. Prise en compte des équilibres thermodynamiques entre phases calculés par Thermo-Calc dans le calcul de microségrégation	53
II - 4. Algorithme	54
II - 5. Dynamique de solidification	57
II - 6. Conclusion	58
III - ANALYSE THEORIQUE DES RESULTATS GENERES PAR LE MODELE	59
III - 1. Définition du cas de référence	59
III - 2. Résultats obtenus pour le cas de référence	60
III - 2.1. Chemin de solidification - évolution des taux de phases.....	60
III - 2.2. Profils des titres massiques en soluté au cours de la solidification	60
III - 3. Etude de sensibilité aux paramètres numériques du modèle	61
III - 3.1. Influence du pas de temps.....	61

III - 3.2. Influence du maillage	61
III - 4. Analyse théorique des résultats obtenus pendant la transformation péritectique dans le cas de référence	63
III - 4.1. Analyse des profils	63
III - 4.2. Analyse des chemins de diffusion	64
III - 4.3. Discussion sur la nature de l'équilibre thermodynamique local à l'interface δ/γ	65
III - 4.4. Evolution des titres massiques dans le liquide à l'interface l/s	66
III - 5. Etude de l'influence des paramètres physiques du modèle sur les résultats.....	67
III - 5.1. Effet de la distance caractéristique	67
III - 5.2. Effet de la géométrie.....	70
III - 5.3. Effet de la maturation	70
III - 5.4. Effet de la surfusion sur la microségrégation	71
III - 5.5. Effet de la morphologie des dendrites	71
III - 6. Conclusion	74
IV - APPLICATION ET VALIDATION DU MODELE AVEC LES TRAVAUX D'ADDAD	76
IV - 1. Formation de la microségrégation	78
IV - 1.1. Alliage Fe-4%Ni-0,4%C	78
IV - 1.2. Alliage Fe-4%Ni-0,1%C	79
IV - 2. Caractérisation de la microségrégation finale	83
IV - 2.1. Alliage Fe-4%Ni-0,4%C	84
IV - 2.2. Alliage Fe-4%Ni-0,1%C	84
IV - 2.3. Comparaison de la microségrégation finale selon la nature du premier solide déposé	87
IV - 3. Conclusion	87

V - – APPLICATION DU MODELE DE MICROSEGREGATION A L'ETUDE DE LA MACROSEGREGATION - INFLUENCE DE LA MACROSEGREGATION SUR LA MICROSEGREGATION.....	88
V - 1. Principe de résolution des équations de transport à l'échelle macroscopique.....	88
V - 1.1. La méthode de prise de moyenne	88
V - 1.2. Système complet d'équations décrivant la solidification d'un alliage multiconstitué... 88	
V - 1.3. Forme générale d'un modèle numérique pour les prédictions des macro et des microségrégations	90
V - 1.4. Résolution du système d'équations.....	91
V - 2. Application du modèle de microségrégation à l'étude de la macroségrégation	92
V - 2.1. Définition du cas de référence théorique étudié	92
V - 2.2. Résultats et discussion	92
V - 3. Influence de la macroségrégation sur la microségrégation.....	95
V - 3.1. définition du lingot étudié.....	95
V - 3.2. Résultats et discussion	96
V - 4. Conclusion	99
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	101
BIBLIOGRAPHIE.....	103
ANNEXE 1 : Procédures de calcul des surfusions et vitesses de pointes primaires et secondaires utilisées dans le modèle de microségrégation	114
A1-1. Algorithme de calcul de la surfusion aux pointes primaires de dendrites à partir des valeurs du gradient thermique moyen et de la vitesse des pointes primaires	114
A1-2. Algorithme de calcul de la vitesse des pointes secondaires de dendrites U_{ps} dans le cas d'une croissance contrôlée par diffusion	114
ANNEXE 2 : Bilans de conservation de la masse en soluté à l'interface ϕ_1/ϕ_2	116

A2-1. Bilan de conservation globale de la masse dans une phase φ	116
A2-2. Bilan de conservation globale de la masse à l'interface φ_1/φ_2	117
A2-3. bilan de conservation de la masse de soluté à l'interface φ_1/φ_2	118
ANNEXE 3 : Bilan de conservation de la masse en solute dans la phase φ	120
A3-1. Traitement du terme de diffusion.....	120
A3-1.1. cas d'une morphologie simplifiée.....	120
A3-1.2. cas d'une morphologie complexe	123
A3-2. Traitement du terme de convection dans le cas d'une morphologie simplifiée.....	127
A3-3. Résolution numérique du système discrétisé	128

NOMENCLATURE

Notations latines

d	Distance	m
d _a	Distance interatomique	m
D	Coefficient de diffusion	m ² /s
D ^{int}	Coefficient de diffusion interfaciale	m ² /s
D _T	Coefficient de diffusion thermique	m ² /s
f	Fraction massique (d'une phase)	
g	Fraction volumique (d'une phase)	
g _i	Fraction volumique interne dans l'enveloppe d'un grain	
G	Energie de Gibbs	J
G _T	Gradient thermique	°C/m
h	Enthalpie spécifique	J/kg
\bar{h}	Enthalpie spécifique moyenne	J/kg
$h_i^{\varphi_1}$	$m_i^{\varphi_1/\varphi_2} \frac{\partial h^{\varphi_1}}{\partial T} + \frac{\partial h^{\varphi_1}}{\partial w_i^{\varphi_1/\varphi_2}}$	J/kg/%mass
Iv	Fonction Ivantsov	
J	Flux massique diffusif	%mass/m ² /s
k	Coefficient de partage	
K	Perméabilité isotrope dans un milieu poreux	m ⁻²
l _s	Longueur d'onde de stabilité marginale	
$m_i^{\varphi_1/\varphi_2}$	Pente locale de la surface de liquidus φ_1/φ_2 relatif au soluté i	°C/%mass
Pe	Nombre de Péclet	
r	Variable spatiale	m
r _p	Rayon de la pointe primaire de dendrite	m
r _{ps}	Rayon de la pointe secondaire de dendrite	m
S	Surface	m ²
S _v	Surface spécifique, S/V ₀	m ⁻¹
T	température	°C
T _{liq}	Température de liquidus	°C
T _{sol}	Température de solidus	°C
T _f	Température de fusion du fer pur	°C
T _p	Température de début de transformation péritectique	°C
T _{fp}	Température de fin de transformation péritectique	°C
ΔT _{sol}	Intervalle de solidification	°C
t	temps	s
t _f	Temps local de solidification	s
U	vitesse	m/s
U _{pp}	Vitesse des pointes primaires de dendrites	m/s
U _{ps}	Vitesse des pointes secondaires de dendrites	m/s
V	Volume	m ³
V ⁰	Volume du domaine d'étude de la microségrégation	m ³
U ^{int}	Vitesse de l'interface entre 2 phases	m/s
w	Titre massique (d'un soluté)	%mass
\bar{w}	Titre massique moyen (d'un soluté)	%mass

wmin	Titre massique minimale utilisé pour définir la grille de tabulation nécessaire à la description du diagramme de phases	%mass
wmax	Titre massique maximale utilisé pour définir la grille de tabulation nécessaire à la description du diagramme de phases	%mass
x	Coordonnée spatiale	m

Notations grecques

φ	phase	
δ	ferrite	
γ	austenite	
α	Nombre de Fourier associé à la rétrodiffusion, $\frac{D^s t_f}{\lambda^2}$	
λ	Taille du domaine d'étude de la microségrégation	m
λ_1	Distance entre bras primaires de dendrites	m
λ_2	Distance entre bras secondaires de dendrites	m
λ_T	Conductivité thermique	
μ^l	Viscosité dynamique du liquide	Pa.s
μ	Potentiel chimique	
ρ	Masse volumique	Kg/m ³
Γ	Coefficient de Gibbs-Thomson	m.K
$\Gamma_{\varphi_1/\varphi_2}$	$\frac{1}{V_0} \int_{\varphi_1/\varphi_2} \rho^{\varphi_1} (\vec{V}^{\varphi_1} - \vec{\Omega}^{\varphi_1/\varphi_2}) \cdot \vec{n}^{\varphi_1/\varphi_2} dS$	Kg/m ³ /s
η	Coordonnée spatiale normalisée	
Ω	Sursaturation réduite	

Exposants

l	Liquide
li	Liquide intradendritique
le	Liquide extradendritique
s	Solide
0	Initial
φ_1/φ_2	À l'interface φ_1/φ_2 , où $\varphi_1, \varphi_2 = \delta, \gamma$ ou liquide
φ_1/φ_2	À l'interface φ_1/φ_2 , dans la phase φ_1 (pour les fractions massiques)
φ_2/φ_1	À l'interface φ_1/φ_2 , dans la phase φ_2 (pour les fractions massiques)
env	Enveloppe
int ou *	A l'interface
eut	Eutectique
pointe	A la pointe

Indices

i	Soluté
e	à l'équilibre

INTRODUCTION GENERALE

Dans un lingot, des variations de compositions en élément d'alliage peuvent être observées à différentes échelles : on parle de **macroségrégation** lorsque la zone ségrégée peut être observée à l'échelle du produit. A l'inverse, la **microségrégation** est une ségrégation observée à l'échelle de la structure de solidification, dont la plus commune est la dendrite. La connaissance de ces hétérogénéités de composition est essentielle puisqu'elles entraînent des différences de propriétés dans les parties du métal solidifié, dont certaines peuvent ne plus remplir le cahier des charges du produit final à fournir.

Différents phénomènes étant à l'origine de la macroségrégation ont été identifiés [48] :

- Le mouvement du liquide provoqué par des gradients thermiques et solutaux qui s'établissent en cours de solidification. La densité du liquide n'est donc plus homogène à l'échelle du lingot, ce qui provoque une convection dite thermo-solutale ;
- Le mouvement du liquide dû au retrait en cours de solidification ;
- Le mouvement de grains équiaxes qui germent de manière hétérogène dans le liquide, ou de fragments de bras de dendrites. La densité du solide étant supérieure à celle du liquide, ces grains peuvent sédimenter au fond du puits liquide et donner naissance à un cône dit de sédimentation, ségrégué négativement en pied de lingot ;
- La déformation spongieuse du squelette dendritique solide, dont les effets sont particulièrement importants en coulée continue.

En particulier, il est clairement établi que la convection thermo-solutale est contrôlée par la microségrégation, puisque celle-ci entraîne des hétérogénéités de concentration en soluté qui peut avoir une masse volumique très différente du solvant. Il en découle des différences de densités locales à l'échelle du lingot qui sont à l'origine du mouvement du liquide.

Les échanges de matière à l'échelle d'une dendrite en train de solidifier sont dus à la solubilité différente du soluté dans les phases en présence. Cette différence de composition aux interfaces conduit à une redistribution du soluté en cours de solidification et à la microségrégation finale. Celle-ci dépend donc :

- De la cinétique de croissance de la (ou des) phase(s) cristalline(s) ;
- De la solubilité des éléments d'alliage dans les phases en présence. Il faut donc connaître leur nature, ce qui suppose la prédiction des transformations de phases en cours de solidification et la connaissance du diagramme de phase de l'alliage considéré ;
- De la morphologie de l'interface entre les différentes phases.

Inversement, le mouvement du liquide perturbe les propriétés physiques du mélange pâteux à l'échelle de la dendrite, et donc la microségrégation. Melford et Granger [102] ont tenté de mettre expérimentalement en évidence le lien entre la microségrégation caractérisée en différents zones d'un lingot de 2,5 tonnes de type 100C6 (Fe-1,5%Cr-1%C) avec la nature de la texture locale colonnaire ou équiaxe. Ceux-ci ont comparé les profils de microségrégation obtenus expérimentalement avec ceux calculés à l'aide de modèles théoriques basés sur l'hypothèse que la zone d'analyse de la microségrégation a une composition moyenne en soluté égale à la composition nominale du lingot. Ils en ont conclu qu'il était difficile sur un lingot d'étudier la microségrégation indépendamment des flux convectifs de soluté qui perturbent son évolution au cours de la solidification. Cet exemple illustre le couplage très fort entre la microségrégation et la

macroségrégation. Par conséquent, une bonne description de l'une ne peut pas se faire sans une bonne description de l'autre.

Lorsque l'on passe au stade de la modélisation de la ségrégation dans un lingot, les algorithmes de calcul utilisés doivent refléter le couplage qui existe entre la microségrégation et la macroségrégation. Le Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie dispose d'un code numérique de simulation de la ségrégation dans un lingot, nommée SOLID, dont l'architecture est basée sur une distinction en deux blocs : un bloc macroscopique et un bloc microscopique. Dans ce type de configuration, le modèle de microségrégation doit pouvoir prendre en compte les échanges de masse de soluté entre la zone d'analyse de la microségrégation considérée et l'extérieur. Cette discussion amène dès maintenant à définir plusieurs notions : suivant que le domaine d'analyse de la microségrégation entretient des échanges de masse avec l'extérieur ou non, on parlera respectivement de *système ouvert* ou de *système fermé*.

Le travail effectué durant ces trois années de thèse a porté sur la conception d'un modèle décrivant la microségrégation dans une structure dendritique colonnaire intégrable dans un code de macroségrégation. Parmi les transformations de phases les plus communément observées au cours de la solidification d'un acier, la réaction péritectique a été spécifiquement étudiée. Les applications présentées dans ce travail portent toutes sur des aciers ternaires.

La première partie de ce manuscrit présente une étude bibliographique sur les différents phénomènes physiques à l'origine de la microségrégation. Ces phénomènes étant identifiés, il est alors possible de construire des modèles théoriques de microségrégation ayant pour but de quantifier leur influence. En particulier, cette étude met en évidence une classification possible des modèles de microségrégation existant en deux grandes catégories :

- les modèles dédiés à l'étude exclusive de la ségrégation à une seule échelle qui est celle des structures de solidification ;
- Les modèles dédiés au couplage avec des modèles de macroségrégation.

Dans la mesure où ce travail porte sur la conception d'un modèle de microségrégation de la seconde catégorie, il convient dès à présent de mentionner une contrainte essentielle à prendre en compte pour leur développement, liée au temps de calcul. Il est donc d'ores et déjà possible de soulever l'une des difficultés essentielles rencontrées dans ce travail : trouver un bon compromis entre le coût en temps de calcul du modèle de microségrégation et le degré d'exactitude de la solution obtenue par rapport à la réalité ou à des modèles de microségrégation plus précis de la première catégorie.

Pour répondre à cette question, le second chapitre est dédié à la construction du modèle, à savoir :

- la définition du domaine d'étude représentatif de la microségrégation. C'est en particulier au cours de cette étape qu'est définie la morphologie des interfaces entre les différentes phases ;
- l'établissement des équations constitutives du modèle ;
- le choix du mode de couplage avec le logiciel de calcul d'équilibre thermodynamiques Thermo-Calc ; la prise en compte des équilibres thermodynamiques entre phases nécessite en effet le calcul précis des diagrammes de phases correspondant ;
- l'algorithme de résolution adopté.

La troisième partie porte sur l'étude de sensibilité du modèle aux paramètres numériques et physiques. Puis une première analyse théorique des résultats générés par le modèle pendant la transformation péritectique est proposée. Elle repose en particulier sur l'allure des profils de soluté

en cours de solidification, les chemins de diffusion dans le diagramme des phases, et l'évolution des titres massiques dans le liquide en cours de solidification.

La suite de ce manuscrit a été construite de manière à montrer si le modèle de microségrégation répond à la double contrainte mentionnée plus haut.

Si le but de cette thèse est bien de développer un modèle de microségrégation intégrable dans un code macroscopique, il convient d'abord de juger de la qualité des résultats générés par le modèle de microségrégation seul. En parallèle du travail présenté ici, une thèse a été menée par Addad pour caractériser expérimentalement la microségrégation dans les aciers. Le chapitre IV propose donc de tester la qualité de l'outil numérique présenté dans le chapitre II en confrontant des résultats du modèle avec l'expérience sur des alliages ternaires Fe-Ni-C de différentes compositions. Plusieurs types de résultats relatifs à la ségrégation peuvent être obtenus aussi bien par le modèle qu'expérimentalement : les profils linéiques ou les profils de fraction cumulée par exemple. A partir de la comparaison entre les résultats numériques du modèle et les résultats expérimentaux d'Addad, le choix de la représentation la plus pertinente pour une comparaison qualitative et quantitative est plus amplement discutée.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre présente le mode de couplage du modèle de microségrégation avec le code de macroségrégation SOLID. Il montre en particulier la faisabilité d'un calcul micro-macro avec le modèle de microségrégation présenté dans le chapitre II à partir de plusieurs applications qui tendent à illustrer l'interaction entre la microségrégation et la macroségrégation :

- Influence de la microségrégation sur la macroségrégation au travers d'un cas théorique dans lequel le chemin de solidification local peut comporter une transformation péritectique en certain point du lingot ;
- Influence de la macroségrégation sur la microségrégation dans le cas d'un lingot industriel coulé par Ascométal avec une nuance d'acier de type 100C6.

I - REVUE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'ETUDE DE LA MICROSEGREGATION ET DES MICROSTRUCTURES

Ce chapitre a pour objectif de présenter une revue bibliographique des principaux problèmes liés à la modélisation de la microségrégation. Les bases théoriques de la microségrégation ainsi qu'une partie des hypothèses faites pour développer le modèle présenté dans le chapitre II sont exposées dans un premier temps. Puis une seconde partie donne les principales informations permettant de lire correctement un diagramme d'équilibre de phases pour un système ternaire mettant en jeu une réaction péritectique, ainsi que les stratégies utilisées pour exploiter les données thermodynamiques qui lui sont associées. Des confrontations entre modèles de microségrégation et expériences de solidification mettant en jeu une réaction péritectique sont ensuite analysées. Enfin, une dernière partie pose le problème de la prise en compte de l'évolution des microstructures en cours de solidification dans un modèle de microségrégation.

I - 1. APPROCHE THEORIQUE DE LA MICROSEGREGATION

I - 1.1. PHENOMENES CINETIQUEMENT LIMITANTS

Les différents phénomènes identifiés comme pouvant contrôler la cinétique de croissance d'une phase cristalline sont [94] :

- Le transfert de chaleur ;
- Les réactions interfaciales ;
- La diffusion chimique.

I - 1.1.1. Le transfert de chaleur

Le nombre de Lewis est un nombre adimensionnel défini par le rapport $N_{Lewis} = D_T/D_i^0$ (pour les notations, voir la nomenclature). Il est de l'ordre de 1000 pour les aciers : le transfert de chaleur s'opère donc beaucoup plus rapidement que le transfert chimique. Ceci explique donc que le transfert de chaleur est très rarement le phénomène limitant qui contrôle la croissance cristalline. La très grande valeur du nombre de Lewis permet également de faire l'hypothèse suivante :

H1.1 : la température T est uniforme à l'échelle du domaine d'étude de la microségrégation.

Dans ce manuscrit, la notation Hx.y a la signification suivante :

H : hypothèse,

x : numéro du chapitre,

y : numéro de l'hypothèse dans le chapitre

Cette hypothèse est faite dans tous les modèles de microségrégation présentés dans ce chapitre.

I - 1.1.2. Les réactions interfaciales

Si la vitesse de l'interface solide/liquide V^{int} est suffisamment lente ou modérée pour permettre au mouvement des atomes de maintenir l'équilibre thermodynamique local au niveau de l'interface, alors

$$w^{s/l} = k_e w^{l/s} \quad (1.1)$$

k_e est le coefficient de partage à l'équilibre. Notons **H1.2** cette hypothèse.

Par conséquent, dans le cadre des deux hypothèses H1.1 et H1.2, la diffusion chimique est le phénomène limitant de la solidification. L'hypothèse H1.2 peut cependant être mise en défaut en solidification rapide, c'est-à-dire pour des valeurs de V^{int} élevées. L'étude thermodynamique de l'interface en solidification rapide a permis à Aziz [104] de définir un nombre de Péclet interfacial $Pe^{int} = d_a V^{int} / D^{int}$ permettant de caractériser l'état thermodynamique de l'interface de la manière suivante :

$$k = w^{s/l} / w^{l/s} = (k_e + Pe^{int}) / (1 + Pe^{int}) \quad (1.2)$$

- Si Pe^{int} tend vers 0, k tend vers k_e : l'équilibre thermodynamique interfacial est atteint.
- Si Pe^{int} tend vers l'infini, k tend vers 1 : la solidification est trop rapide pour que le partitionnement puisse s'opérer, le cas extrême étant que le solide se forme avec la même composition que le liquide à l'interface.

Le modèle de microségrégation développé par Kraft et coll. [67] permet de gérer des situations de non-équilibre à l'interface en intégrant une expression de k proche de (1.2).

I - 1.1.3. Phénomènes de transport à l'échelle de la dendrite

Le soluté peut être transporté par diffusion et par convection, l'importance relative de ces deux modes de transport dépendant de la taille du domaine sur lequel on étudie la ségrégation. La convection transporte le soluté sur des distances grandes par rapport à celles liées à la diffusion, ce qui donne lieu à la macroségrégation. A l'échelle de la dendrite, en revanche, la redistribution du soluté dépend principalement de la diffusion dans le solide et le liquide. La première loi phénoménologique de Fick énonce qu'en présence d'un gradient de concentration ∇w , il s'établit un flux de particules dans le sens descendant le gradient, et que ce flux est proportionnel au gradient correspondant :

$$\mathbf{J} = -D \nabla \rho w \quad (1.3)$$

Combinée à l'équation de continuité, on obtient l'équation différentielle fondamentale de la diffusion, ou seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho w) = -\nabla(D \nabla \rho w) \quad (1.4)$$

Pour les systèmes multiconstitués, cette loi phénoménologique ne permet cependant pas de prendre en compte la possibilité qu'un gradient d'une espèce chimique peut influencer sur la diffusion de l'autre espèce chimique. Par exemple, dans l'expérience de Darken, deux aciers Fe-Si-C de teneur différente en carbone et en silicium sont soudés ensemble. Darken observe que le carbone diffuse des basses teneurs vers les plus élevées, ce qui contredit la première loi de Fick. Pour rendre compte de ce phénomène, la thermodynamique des processus irréversibles permet d'aborder le problème de la diffusion dans toute sa généralité et d'expliquer la diffusion atomique par l'existence non pas d'un gradient de concentration mais d'un gradient de potentiel chimique. L'application de ce

formalisme est à la base du logiciel DICTRA [69], ce qui en constitue son principal intérêt par rapport à d'autres codes commerciaux traitant des transformations de phases contrôlées par la diffusion chimique.

Dans la suite de ce travail, on notera H1.3 l'hypothèse suivante :

H1.3 : le transport par diffusion suit la seconde loi de Fick.

I - 1.2. MODELES DE MICROSEGREGATION

Différentes hypothèses faites sur la diffusion dans les phases solide et liquide permettent d'établir des modèles analytiques simples décrivant l'évolution de la microségrégation dans le cas où une phase solide notée s se forme à partir du liquide noté l. Le système d'étude de la microségrégation est schématiquement représenté sur la figure I-1 et sa taille est notée λ .

L'équation de base de ces modèles est le bilan global de conservation de la masse en soluté qui s'écrit :

$$\bar{w} = f^s \bar{w}^s + f^l \bar{w}^l \quad (1.5)$$

avec, par définition,

$$f^s + f^l = 1 \quad (1.6)$$

I - 1.2.1. Traitement de la diffusion dans le solide

Dans ce paragraphe, seul l'effet de la diffusion dans le solide (appelée aussi rétro-diffusion) est envisagé. Les hypothèses H1.1 et H1.2 sont adoptées et k_e sera par la suite noté k pour alléger les notations. Comme pour la plupart des solutés, $D^l \gg D^s$, on fait l'hypothèse supplémentaire suivante :

H1.4 : la diffusion dans le liquide est supposée infinie, donc le titre massique dans le liquide est uniforme d'où :

$$\bar{w}^l = w^{l/s} \quad (1.7)$$

Cette hypothèse évite d'avoir à résoudre l'équation de la diffusion (1.4) dans la phase liquide.

En l'absence de convection, la forme locale de la conservation de la masse en soluté est donnée par (1.4). En l'intégrant sur la phase solide, on obtient la relation suivante (voir annexe 2) :

$$\frac{d(\rho^s g^s \bar{w}^s)}{dt} - \rho^s w^{l/s} \frac{dg^s}{dt} + \rho^s S_v^{s/l} D_s \nabla \cdot \bar{w}^s \quad (1.8)$$

A ce stade, les deux hypothèses les plus simples concernant la diffusion à l'état solide sont :

- D^s est infini :

Le titre massique dans le solide est donc uniforme ce qui se traduit par :

$$\bar{w}^s = w^{s/l} \quad (1.9)$$

En combinant (1.5), (1.6), (1.7), (1.8) et (1.9), on obtient la loi de microségrégation suivante, dite du *bras de levier* :

$$\frac{w^{l/s}}{w} = \frac{1}{1 - (1-k) f^s} \quad (1.10)$$

Elle est souvent employée pour décrire la microségrégation des éléments qui diffusent par mécanisme interstitiel dans le solide, comme le carbone.

Cette démonstration est valable que le système considéré soit ouvert ou fermé.

- D^s est nul :

H1.5 : les densités du solide et du liquide sont égales et constantes au cours de la solidification, donc $\rho^s = \rho^l = \bar{\rho} = \text{constante}$.

Sous l'hypothèse H1.5 et comme on a la relation $f^s = (\rho^s / \bar{\rho}) g^s$, l'équation (1.8) devient :

$$\frac{d}{dt}(f^s \bar{w}^s) = w^{s/l} \frac{df^s}{dt} \quad (1.11)$$

H1.6 : le système est fermé. Par conséquent :

$$\frac{d}{dt}(\bar{\rho} \bar{w}) = \bar{\rho} \frac{d}{dt}(\bar{w}) = 0 \quad (1.12)$$

En différenciant (1.5) par rapport au temps et en y reportant (1.6), (1.7), (1.11) et (1.12), on obtient :

$$(1-k)w^{l/s} df^s = (1-f^s)dw^{l/s} \quad (1.13)$$

H1.7 : le coefficient de partage est constant au cours de la solidification.

L'intégration de (1.13) donne donc

$$\frac{w^{l/s}}{w^0} = (1-f^s)^{k-1} \quad (1.14)$$

Il s'agit de la loi établie par Gulliver en 1913 [4] et Scheil en 1942 [5]. Elle est souvent employée pour décrire la microségrégation des éléments qui diffusent par mécanisme substitutionnel dans le solide, comme la plupart des éléments d'alliage, tel que le chrome ou le nickel.

Contrairement à la règle du bras de levier, la loi de Gulliver-Scheil n'est valable qu'en système fermé. Cependant, une généralisation de cette loi au système ouvert a été présentée par Cefalu et Krane [107] dans le cas où seul le liquide participe aux échanges de matière avec l'extérieur du système. Le principe en est le suivant : comme le système est ouvert, $\bar{w}(t)$ évoluent au cours du temps. A l'instant t_0 , le domaine liquide est désigné par L_0 , la fraction liquide par $(f^l)^0$ et la composition en soluté dans le liquide par $(w^l)^0$. Basé sur le fait que la composition locale du soluté dans le solide n'évolue pas au cours de la solidification (analyse de Gulliver et Scheil), le modèle calcule la mise en équilibre du domaine liquide de composition $(w^l)^0$ comme si le solide n'existait pas, par l'utilisation de la règle du bras de levier couplée au bilan enthalpique. Ils en déduisent ainsi une fraction liquide $(f^l)^{eq}$ et une fraction solide $(f^s)^{eq}$ du domaine liquide L_0 . Ainsi, à l'instant t , ils obtiennent la nouvelle fraction liquide dans tout le domaine $f^l = (f^l)^0 (f^l)^{eq}$.

Les modèles du bras de levier et de Gulliver-Scheil reposent sur des hypothèses très fortes en ce qui concerne la diffusion à l'état solide. Brody et Flemings [6] se sont donc placés dans les hypothèses H1.1 à H1.6 mais en supposant que D^s a une valeur finie. Comme le montre l'équation (1.8), le fait de prendre en compte la diffusion à l'état solide amène à faire des hypothèses pour exprimer la surface spécifique $S_v^{s/l}$, qui dépend de la structure de solidification (voir I - 4). En supposant que la géométrie du domaine est cartésienne ($S_v^{s/l} = 1/\lambda$), que ∇w^s peut être exprimé par la quantité $dw^{s/l}/ds$ (s repère la position de l'interface s/l) et que le taux de croissance de la phase solide est parabolique ($f^s = (\frac{t}{t_f})^{1/2}$), ils établissent la loi de microségrégation analytique suivante, dite de *Brody-Flemings* :

$$\frac{w^{l/s}}{w^0} = \left[1 - f^s (1 - 2\alpha k) \right]^{k-1} \quad (1.15)$$

L'approche de Brody-Flemings permet de faire apparaître une grandeur physique très importante pour l'étude de la diffusion à l'état solide : il s'agit du nombre de Fourier $\alpha = \frac{D^s t_f}{\lambda^2}$ qui permet de comparer la taille caractéristique du système λ à la distance $(D^s t_f)^{1/2}$ sur laquelle les atomes diffusent dans le solide pendant la durée totale de solidification t_f . Si α tend vers 0 (hypothèse de Gulliver-Scheil), l'équation (1.15) doit coïncider avec (1.14), ce qui est bien le cas. En revanche, si α tend vers l'infini (hypothèse du bras de levier), l'équation (1.15) doit coïncider avec (1.10), or ce n'est pas le cas : il s'agit de l'inconvénient majeur de la loi de microségrégation de Brody-Flemings.

Cette incohérence a été analysée par Clyne et Kurz [9] qui ont alors montré que le modèle de Brody-Flemings ne peut pas conserver la masse lorsque le nombre de Fourier α est trop grand. En effet, le terme de rétro-diffusion est évalué à partir d'une couche limite de diffusion qui peut devenir plus grande que la taille caractéristique du solide, ce qui revient à dire que du soluté quitte le système à la frontière solide du domaine. Pour pallier ce problème, Clyne et Kurz introduisent un facteur correctif $\alpha^{(1)}$ calculé en supposant que le profil du soluté dans le solide est de forme exponentielle, qui remplace le nombre de Fourier α dans l'équation (1.15):

$$\alpha^{(1)} = \alpha \left[1 - \exp\left(-\frac{1}{\alpha}\right) \right] - 0.5 \exp\left(-\frac{1}{2\alpha}\right) \quad (1.16)$$

Si α tend vers 0 (Gulliver-Scheil), $\alpha^{(1)}$ tend vers 0 et l'équation (1.16) tend bien vers (1.14). Si α tend vers l'infini (bras de levier), $\alpha^{(1)}$ tend vers 0.5 et l'équation (1.16) tend vers la loi du bras de levier.

Une modification similaire a été proposée par Ohnaka [10] en supposant que la croissance est parabolique et que le profil de soluté dans le solide est quadratique :

$$w^s(\eta) = a\eta^2 + b \quad (1.17)$$

η désigne une variable spatiale normalisée par rapport à λ (ainsi que dans les équations (1.21) et (1.22) qui suivent) et les constantes a et b peuvent s'exprimer en fonction de \bar{w}^s et $w^{l/s}$.

Dans ce cas, une loi analytique du même type que l'équation (1.15) est obtenue, mais en remplaçant α par $\alpha^{(2)}$:

$$\alpha^{(2)} = \frac{1}{2} \left[\frac{2\alpha}{1+2\alpha} \right] \quad (1.18)$$

Sous l'hypothèse d'une vitesse de refroidissement constante et non plus d'une croissance parabolique, Voller [7] a étendu l'équation (1.18) au cas d'un alliage binaire présentant une réaction eutectique en remplaçant $\alpha^{(2)}$ par $\alpha^{(3)}$:

$$\alpha^{(3)} = \frac{1}{2} \left[\frac{2\alpha}{(1-f^{eut})^2 + 2\alpha} \right] \quad (1.19)$$

où f^{eut} est la fraction massique de la phase eutectique en fin de solidification.

L'hypothèse du profil quadratique en soluté dans la phase solide est souvent utilisée [11,12,14], puisqu'elle permet d'exprimer le terme de rétro-diffusion de manière simple. En effet, dans ce cas :

$$\nabla w^s = \frac{w^{s/l} - \bar{w}^s}{\delta_s} \quad (1.20)$$

où $\delta_s = \frac{d_s}{6}$ dans le cas d'une géométrie cartésienne (la relation (1.20) est établie dans l'annexe de la référence [12]). C'est en particulier la technique utilisée par Schneider et Beckermann [14] pour décrire la rétrodiffusion dans leur modèle micro-macro qu'ils ont testé sur un lingot théorique avec différents alliages contenant respectivement 2, 5 et 10 éléments.

Plus généralement, Combeau et coll. [13] suggèrent d'exprimer le profil de soluté dans le solide sous la forme d'une loi de type puissance :

$$w^s(\eta) = a'\eta^{\gamma} + b' \quad (1.21)$$

De même que dans l'équation (1.17), les constantes a' et b' peuvent s'exprimer en fonction de \bar{w}^s et $w^{l/s}$.

Cependant, ils ont montré que l'approximation par la loi puissance reproduit mal l'évolution du profil dans le cas d'une refusion. C'est pourquoi il peut être plus pertinent d'utiliser la méthode de la collocation, c'est-à-dire de supposer que le profil de soluté dans le solide est donné par une loi polynomiale du troisième degré :

$$w^s(\eta) = a'' + b''\eta^2 + c''\eta^3 \quad (1.22)$$

La détermination des trois coefficients a'' , b'' et c'' suppose d'exprimer la conservation de la masse en soluté dans la phase solide mais également dans un sous-domaine fixé de la phase solide (le détail des calculs est donné dans la référence [13]).

La même démarche pourrait conduire à utiliser des polynômes de degré plus élevé pour reproduire des profils plus compliqués. Cependant, pour un polynôme de degré n , il faudrait définir n sous-domaines sur lesquels appliquer la conservation de la masse en soluté pour calculer tous les coefficients du polynôme. Cette méthode reviendrait donc à définir un maillage particulier dans la phase solide en une dimension, comme le nécessiterait la résolution numérique directe de l'équation de la diffusion. Cette approche perdrait alors de son intérêt en terme d'économie de temps de calcul.

Les approches simplifiées exposées ci-dessus ne sont parfois pas en mesure de reproduire des profils de soluté parfois complexes, tels que ceux rencontrés lors de transformations de phases secondaires en cours de solidification : la résolution de la seconde loi de Fick (1.4) est alors inévitable. Kobayashi [57] est parvenu à trouver une solution analytique au problème de la diffusion à une dimension dans le cas non stationnaire sous les mêmes hypothèses que celles de Brody-Flemings. Pour ceci, il introduit comme variable particulière $\eta = \frac{1}{2\alpha} \left[\frac{x}{s} \right]^2$. La solution se présente alors sous la forme suivante :

$$w^s(f^s, \eta) = \sum_{n=0}^{\infty} u_n(\eta)(f^s)^n \quad (1.23)$$

(L'expression détaillée des fonctions u_n est donnée dans l'annexe II de la référence [57]).

La solution trouvée par Kobayashi est sous la forme d'une série infinie ce qui n'est pas simple d'exploitation. En effet, Kobayashi cherche des approximations de sa solution analytique pour pouvoir ensuite les utiliser dans une méthode numérique qui lui permettrait de s'affranchir des hypothèses restrictives de Brody-Flemings. A ce stade, il peut donc apparaître plus simple d'avoir directement recours à une résolution numérique de l'équation de la diffusion. Une méthode particulièrement bien adaptée au problème de la diffusion à une dimension est la transformation de Landau, présentée plus en détail dans la partie II - 2.

I - 1.2.2. Traitement de la diffusion dans le liquide

En solidification rapide, l'hypothèse H1.4 n'est plus valide. En effet, il s'établit de forts gradients de concentration dans le liquide au voisinage des pointes de dendrites en cours de croissance. Ces

forts gradients sont à l'origine d'une importante surfusion chimique, qui doit être prise en compte pour l'estimation des microségrégations.

I - 1.2.2.1. Croissance de la pointe de dendrite contrôlée par diffusion

L'assimilation de la pointe de dendrite à une paraboloïde de révolution a permis à Ivantsov [76] de traiter simplement le problème de la diffusion chimique autour de la pointe. La résolution de l'équation de la diffusion dans le liquide donne la relation suivante :

$$\Omega_i = I_v(Pe_i) \quad (1.24)$$

Ω_i est la sursaturation réduite associée à l'élément d'alliage i :

$$\Omega_i = \frac{w_i^{l/s} - w_i^0}{w_i^{l/s} (1 - k_i)} \quad (1.25)$$

Pe_i est le nombre de Péclet chimique associé à l'élément d'alliage i :

$$Pe_i = \frac{r_p U_{pp}}{2D_i^l} \quad (1.26)$$

U_{pp} désignant la vitesse de la pointe primaire de dendrite (voir nomenclature).

Sous l'hypothèse où la surfusion ΔT est uniquement due à la ségrégation chimique, il vient :

$$\Delta T = \sum_i m_i (w_i^0 - w_i^{l/s}) = \sum_i m_i w_i^0 \left(1 - \frac{1}{1 - (1 - k_i) I_v(Pe_i)}\right) \quad (1.27)$$

Langer et Müller-Krumbharr [96] ont énoncé que le rayon de pointe d'une dendrite paraboloïdale en régime de croissance stationnaire contrôlé par la diffusion de chaleur dans le liquide est très proche de la longueur d'onde de stabilité marginale l_s d'un front plan avançant dans les mêmes conditions que la dendrite :

$$r_p = l_s \quad (1.28)$$

Le critère de stabilité marginale a été généralisé au cas de alliages binaires par Kurz et coll. [110] et aux alliages multiconstitués par Bobadilla et coll. [39]. Ceux-ci ont ainsi établi la relation suivante :

$$r_p^2 = \frac{\Gamma}{\sigma} \left\{ \sum_i \frac{U_{pp}}{D_i^l} m_i (k_i - 1) \frac{w_i^0}{1 - (1 - k_i) I_v(Pe_i)} \xi(Pe_i) - \frac{1}{2} (G_T^s + G_T^l) \right\}^{-1} \quad (1.29)$$

avec :

G_T^φ le gradient de température à l'interface dans la phase φ ,

λ_T^φ la conductivité thermique dans la phase φ ,

$$\bar{\lambda}_T = \frac{\lambda_T^s + \lambda_T^l}{2},$$

$$g_T^\varphi = G_T^\varphi \frac{\lambda_T^\varphi}{\bar{\lambda}_T},$$

$$\xi(Pe_i) = \frac{Pe_i - (Pe_i^2 + 4\pi^2)^{1/2}}{Pe_i - 2k_i Pe_i - (Pe_i^2 + 4\pi^2)^{1/2}},$$

et σ est une constante.

Bobadilla et coll. ont étudié expérimentalement le mode de solidification de plusieurs aciers Fe-Ni-Cr en faisant varier leur composition et en étudiant la phase primaire qui précipite. Les résultats expérimentaux ont été ensuite comparés aux résultats calculés à partir des équations (1.27) et (1.29) : celles-ci permettent de calculer la température théorique en pointe de dendrite qui correspond respectivement à une solidification primaire en δ ou en γ . Le critère de sélection suivant est alors adopté : la phase primaire qui se dépose correspond à la température de pointe de dendrite

la plus élevée. Le modèle permet donc de prédire quelle phase primaire se déposera. A titre d'exemple, la figure I-2 montre que pour un alliage Fe-18.5%Cr-11%Ni dont la phase primaire est normalement la ferrite d'après le diagramme d'équilibre de phases, le modèle prédit qu'il existe une vitesse de croissance critique à partir de laquelle l'austénite va solidifier à la place de la ferrite. Il est alors possible d'effectuer le même travail sur des aciers de compositions différentes donc de vitesses critiques différentes. Le modèle développé permet de prédire convenablement le mode de solidification des aciers Fe-Cr-Ni connaissant la composition et la vitesse de solidification.

I - 1.2.2.2. Modèles de microségrégation prenant en compte la diffusion dans le liquide

Si l'on prend en compte la surfusion aux pointes, la composition du liquide qui se solidifie en premier n'est plus w^0 mais w^{pointe} . Si l'on applique directement cette nouvelle condition au modèle de Gulliver-Scheil, il vient qu'en début de solidification, il se dépose instantanément :

$$f^s = 1 - \left(\frac{w^{\text{pointe}}}{w^0} \right)^{1/k-1} \quad (1.30)$$

Il s'agit du modèle de *Scheil tronqué*. Afin d'éviter cette discontinuité dans le chemin de solidification due à la non prise en compte de la diffusion du soluté dans la phase liquide, Giovanola et Kurz [29] ont subdivisé la zone pâteuse en deux régions :

- la région aux pointes des cellules (ou de dendrites), où les gradients de concentrations dans le liquide sont importants. On y suppose qu'il existe une relation parabolique entre f^s et $w^{s/l}$:

$$f^s = a (w^{s/l})^2 + b w^{s/l} + c \quad (1.31)$$

w^{pointe} est estimé à l'aide de (1.24), (1.25) et (1.26).

- la région correspondant aux grandes fractions solidifiées, dans laquelle le liquide résiduel peut être considéré comme chimiquement homogène. Une démarche analogue au modèle de Gulliver-Scheil est adoptée pour décrire la redistribution du soluté dans cette zone. Les inconnues a, b et c sont déterminées en exprimant des relations de continuité entre les deux zones.

Le modèle de Tong et Beckermann [30] décrit la redistribution du soluté dans une direction perpendiculaire à la direction de croissance, sur un élément de volume de longueur $\lambda_1/2$, en supposant l'interface plane et le régime de croissance quasi-stationnaire, ce qui permet d'établir :

$$\frac{w^l - w^0}{w^{s/l} - w^0} = \exp \left[- \frac{V^{\text{int}} \cdot x}{\sigma_2 D^l} \right] \quad (1.32)$$

où σ_2 est une constante d'ajustement.

En faisant l'hypothèse de la croissance parabolique, l'application du bilan de conservation de soluté sur le domaine d'étude permet d'établir la relation suivante :

$$F_1(f^s) \frac{dw^{s/l}}{df^s} = F_2(f^s, w^{s/l}) \quad (1.33)$$

(F_1 et F_2 sont deux fonctions dont les expressions sont données par les relations (13) et (14) de la référence [30]).

Si l'on fait tendre f^s vers 0 dans l'équation (1.33), on obtient :

$$w^{s/l} = \frac{1+2\sigma\alpha}{1+2\sigma\alpha/k} w^0 \quad (1.34)$$

Comme $w^{s/l}(f^s \rightarrow 0)$ doit être égale à kw^{pointe} calculé à partir des relations (1.24), (1.25) et (1.26), on obtient une relation pour déterminer la constante σ :

$$\sigma = \frac{1 - \text{Iv}(\text{Pe})}{2 \text{Iv}(\text{Pe}) \alpha} \quad (1.35)$$

Cette première partie a montré les différents modèles permettant de traiter de la microségrégation dans le cas où seules deux phases sont présentes dans le volume d'étude. Dans le cadre de ce travail, une étude particulière de la transformation péritectique pouvant se produire au cours de la solidification a été faite pour un système multiconstitué. Une bonne compréhension de celle-ci passe par une connaissance de quelques éléments théoriques simples sur les diagrammes d'équilibre de phases. La partie suivante s'attache surtout à la description d'alliage ternaire : ce sont en effet les systèmes les plus complexes qui puissent encore être représentés en totalité dans l'espace. Ils présentent donc un réel intérêt didactique pour comprendre qualitativement les chemins de solidification dans les systèmes multiconstitués.

I - 2. DIAGRAMMES D'EQUILIBRE DE PHASES

I - 2.1. REGLE DES PHASES DE GIBBS

La règle des phases de Gibbs énonce qu'à l'état d'équilibre thermodynamique complet :

$$v = c + 2 - \varphi \quad (1.36)$$

avec

- v la variance qui dénombre les variables indépendantes choisies parmi les fractions molaires (ou massiques) de tous les constituants dans toutes les phases, plus les variables pression et température que représente le 2 dans la formule,
- c le nombre de constituants indépendants du système qui est le nombre d'espèces chimiques distinctes dans l'alliage,
- φ le nombre de phases coexistantes en équilibre entre elles.

Si la pression a été fixée à une valeur constante souvent choisie égale à $P^0 = 10^5$ Pa, la relation (1.36) prend la forme modifiée suivante :

$$v = c + 1 - \varphi \quad (1.37)$$

I - 2.2. APPLICATION A UN SYSTEME BINAIRE DIPHASE OU TRIPHASE

Pour un système binaire, $c = 2$. En cours de solidification, les deux phases mises en jeu sont la phase solide et la phase liquide, d'où $\varphi = 2$. En appliquant (1.37), $v = 1$: il y a donc un seul degré de liberté dans le système en cours de solidification si l'on suppose les deux phases à l'équilibre thermodynamique total. Cela signifie qu'il est par exemple possible d'exprimer la température T en fonction d'une seule variable d'état, par exemple \bar{w}^1 :

$$T = \text{fct}(\bar{w}^1) \quad (1.38)$$

La ligne de liquidus dans un diagramme binaire est par définition donnée par l'équation (1.38). Si l'on considère à présent une réaction mettant en jeu non plus 2 mais 3 phases en équilibre, $v = 0$: il n'y a plus de degré de liberté dans le système et les variables d'état sont définies de manière unique. C'est par exemple le cas de la réaction péritectique au cours de laquelle une phase solide α réagit avec une phase liquide l au cours du refroidissement pour donner une seconde phase solide β :



Comme montré précédemment, la température à laquelle a lieu cette réaction est unique et est noté T_p : la réaction péritectique apparaît donc sous la forme d'un palier dans le diagramme de phase binaire et les titres massiques des phases en équilibre sont également définis de manière unique, comme le montre la figure I-3.

Plusieurs diagrammes de phases binaires présentent un palier péritectique tel que celui représenté sur la figure I-3. Pour les systèmes Fe-Ni et Fe-C, la phase solide primaire α est la ferrite notée δ , et la phase solide β est l'austénite notée γ .

I-2.3. APPLICATION A UN SYSTEME TERNAIRE DIPHASE OU TRIPHASE-EQUILIBRE MONOVARIENT

Pour un système ternaire, $c = 3$. En cours de solidification, $\phi = 2$. En appliquant (1.37), $v = 2$: il y a donc un degré de liberté supplémentaire dans le système en cours de solidification si l'on suppose les deux phases à l'équilibre thermodynamique total, par rapport au système binaire. Cela signifie qu'il est par exemple possible d'exprimer la température T en fonction de deux variables d'état, par exemple la composition du liquide en soluté A \bar{w}_A^1 , et la composition du liquide en soluté B, \bar{w}_B^1 :

$$T = \text{fct}(\bar{w}_A^1, \bar{w}_B^1) \quad (1.40)$$

La nappe de liquidus dans un diagramme ternaire est par définition donnée par l'équation (1.40). Si l'on considère à présent la réaction péritectique mettant en jeu 3 phases en équilibre, $v = 1$: à la différence d'un système binaire, le système ternaire possède 1 degré de liberté. C'est pourquoi la réaction péritectique, dans un système ternaire, peut théoriquement se produire sur toute une gamme de température plus ou moins large, alors que dans un système binaire, la température à laquelle se produit la réaction péritectique est unique. En conséquence :

- Si l'on se place dans une coupe isotherme du diagramme d'équilibre (T est fixée), la variance est nulle et les compositions des trois phases en équilibre sont fixées : dans une coupe isotherme du diagramme de phases apparaît donc un triangle qui donne les compositions des trois phases en équilibre, comme le montre la figure I-4.
- Dans le diagramme d'équilibre d'un alliage ternaire, les titres massiques des phases en équilibre pendant la réaction péritectique suivent une ligne monovariante, c'est-à-dire une ligne le long de laquelle $v = 1$.

Dans un système binaire, la présence d'une réaction péritectique qui s'écrit $\alpha + l \rightarrow \beta$ est immédiatement reconnaissable par rapport à un autre type de réaction invariante, la réaction eutectique, qui s'écrit $l \rightarrow \alpha + \beta$. Dans un système ternaire, ces deux types de réaction mettent en équilibre 2 phases solides et une phase liquide et correspondent toutes les deux à un équilibre monovariant. Au cours d'un refroidissement ΔT , elles peuvent donc toutes deux s'écrire sous la forme généralisée suivante :



La réaction eutectique est définie comme étant celle au cours de laquelle les quantités de α et β augmentent, tandis que la réaction péritectique est celle pour laquelle la quantité de α ou β diminue. Sahu [87] a proposé un critère pour distinguer ces deux types de réactions dans un diagramme ternaire en faisant l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique total : la relation (1.5) généralisée aux 3 phases α , β et l donne pour chaque soluté :

$$\bar{w} = f^\alpha \bar{w}^\alpha + f^\beta \bar{w}^\beta + f^l \bar{w}^l \quad (1.42)$$

qui après différentiation donne:

$$f^\alpha \Delta \bar{w}^\alpha + f^\beta \Delta \bar{w}^\beta + f^l \Delta \bar{w}^l + \Delta f^\alpha \bar{w}^\alpha + \Delta f^\beta \bar{w}^\beta + \Delta f^l \bar{w}^l = 0 \quad (1.43)$$

$$f^\alpha + f^\beta + f^l = 1 \quad (1.44)$$

$$\bar{w}^\phi = w^{\phi\phi} \quad (1.45)$$

En combinant (1.42) à (1.45), Sahu obtient la relation suivante :

$$\begin{bmatrix} \Delta f^\alpha \\ \Delta f^\beta \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} w_A^{\alpha p} - w_A^{lp} & w_A^{\beta p} - w_A^{lp} \\ w_B^{\alpha p} - w_B^{lp} & w_B^{\beta p} - w_B^{lp} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} \Delta w_A^{\alpha p} & \Delta w_A^{\beta p} & \Delta w_A^{lp} \\ \Delta w_B^{\alpha p} & \Delta w_B^{\beta p} & \Delta w_B^{lp} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} f^\alpha \\ f^\beta \\ f^l \end{bmatrix} \quad (1.46)$$

Si l'on se place dans une coupe isotherme du diagramme de phase telle que celle représentée sur la figure I-5, les valeurs des deux premières matrices du membre de droite sont données par le diagramme de phases. Les valeurs de f^α , f^β , et f^l dépendent de la position du point représentatif des titres massiques nominaux dans le diagramme d'équilibre : il en est donc de même du type de réaction rencontrée.

La relation (1.46) n'étant pas simple d'exploitation, Hillert [2] a proposé une analyse géométrique du problème en opérant un changement de repère astucieux à partir du système de coordonnées $(w_A, w_B) \rightarrow (w_A', w_B')$ tel que : $w_A^{\beta p'} = w_A^{lp'} > w_A^{\alpha p'}$. Dans ces nouvelles coordonnées, la relation (1.43) devient :

$$\Delta f^\alpha (w_A^{\beta p'} - w_A^{\alpha p'}) = f^\alpha \Delta w_A^{\alpha p'} + f^\beta \Delta w_A^{\beta p'} + f^l \Delta w_A^{lp'} \quad (1.47)$$

Dans l'hypothèse où $\Delta w_A^{\alpha p'} = 0$ et $\Delta w_A^{\beta p'} = 0$ (cas considéré comme étant équivalent au fait que le soluté ne diffuse pas dans les phases solides), il vient que Δf^α est du même signe que $\Delta w_A^{lp'}$ dont la représentation graphique est donnée sur la figure I-5. On aboutit ainsi à un critère simple déjà établi par Ricci [105] et repris par West [106] permettant de distinguer une réaction péritectique d'une réaction eutectique : la réaction est péritectique si les compositions des deux phases solides sont du même côté de la ligne monovariante liquide, contrairement à la réaction eutectique dans laquelle la ligne monovariante coupe celle joignant les compositions des deux solides.

Quel que soit le critère retenu, rien n'empêche que le long d'une même ligne monovariante, on puisse observer une transition entre une réaction eutectique et une réaction péritectique ou inversement. Comme signalé par Hillert, l'équilibre parfait est une hypothèse très forte et difficile à obtenir dans les cas pratiques, ce qui rend le critère de Sahu inapplicable. Le critère de Ricci se justifie dans les cas où la diffusion de chaque soluté est nulle dans les phases solides α et β , mais dans la plupart des cas, les solutés peuvent avoir des coefficients de diffusion très différents, comme pour les systèmes ternaires Fe-C-X où X est un élément substitutionnel. Par conséquent, le calcul du chemin de solidification devient décisif pour connaître la nature de la réaction dont la détermination a priori par des critères simples n'est plus pertinente.

Les différents éléments théoriques présentés dans cette partie permettent de mieux comprendre les travaux de Krane et coll. [51] qui ont développé pour des alliages ternaires un modèle de microségrégation dont les principales hypothèses sont les suivantes :

- Le diagramme ternaire est linéarisé et les principaux cas de figure pouvant être rencontrés dans les chemins de solidification sont les suivants : la solidification primaire, la solidification secondaire monovariante eutectique ou péritectique, la présence d'un point invariant eutectique ou péritectique dans le diagramme des phases.
- Les taux des différentes phases au cours de la solidification sont calculés par la règle du bras de levier, c'est-à-dire que toutes les phases sont supposées à l'équilibre thermodynamique complet.

Krane et Incropera [52] ont appliqué ce modèle de microségrégation pour prédire la solidification et les phénomènes convectifs dans 4 alliages théoriques Pb-Sb-Sn dans une cavité rectangulaire de dimension (30cm×100cm). Les chemins de solidification pour les différents alliages sont les suivants :

- 1) Alliage Pb-9%Sb-3%Sn : solidification primaire + point eutectique ternaire ;
- 2) Alliage Pb-9%Sb-1%Sn : solidification primaire + réaction eutectique monovariante + point eutectique ternaire. Le chemin de solidification atteint la ligne eutectique quand $f^S = 30\%$;
- 3) Alliage 3 Pb-11%Sb-1,5%Sn : solidification primaire + réaction eutectique monovariante + point eutectique ternaire. Le chemin de solidification atteint la ligne eutectique quand $f^S = 10\%$;
- 4) Alliage Pb-5%Sb-35%Sn : solidification primaire + réaction péritectique monovariante.

Entre les alliages 2 et 3, les auteurs ont fait varier les compositions nominales de manière à ce que la réaction eutectique monovariante se produise plus ou moins tôt durant la solidification. Si cette réaction se produit suffisamment tôt ($f^S < 30\%$), celle-ci peut avoir un effet significatif sur la macroségrégation résultante. Pour l'alliage 4, les macroségrégations en zinc et antimoine sont inversées. En effet, au cours du refroidissement, si le chemin de solidification suit la ligne péritectique monovariante, le liquide s'enrichit en zinc mais s'appauvrit en antimoine.

On notera ici les principales limites du modèle :

- L'hypothèse de l'équilibre thermodynamique complet est très restrictive puisque des éléments comme le nickel ou le chrome diffusent très peu à l'état solide. De plus, les taux de phases calculés en fin de solidification par la méthode du bras de levier diffèrent complètement de ceux calculés par Gulliver-Scheil.
- Le diagramme de phase est linéarisé, ce qui constitue dans certains systèmes ternaires une approximation grossière, d'où l'intérêt d'avoir recours à des logiciels de calculs d'équilibre thermodynamiques.

I - 2.4. METHODE DE CALCUL DES DIAGRAMMES D'EQUILIBRE DE PHASES : LA METHODE CALPHAD

Pour la plupart des alliages multiconstitués, les diagrammes de phases ne sont pas disponibles et l'approche habituelle consiste à déduire les coefficients de partage et les pentes de liquidus relatifs à chaque soluté à partir des informations sur les alliages binaires. Une approche plus robuste, comme la méthode CALPHAD (CALculation of PHase Diagrams), est cependant requise pour inclure les importantes interactions entre les différents éléments d'alliage et limiter dans le même temps les expériences à réaliser sur les alliages multiconstitués. Elle consiste dans un premier temps à calculer l'énergie de Gibbs G^ϕ de la phase ϕ pour les sous-systèmes binaires en utilisant l'expression suivante :

$$G^\phi = G^0 + G^{\text{ideal}} + G^{\text{ex}} \quad (1.48)$$

Avec

G^0 la somme des énergies de Gibbs des constituants présents dans la phase et considérés à l'état pur, soit pour un système binaire $x_A \mu_A^0 + x_B \mu_B^0$,

x_A la fraction molaire du constituant A,

x_B la fraction molaire du constituant B,

μ_A^0 le potentiel chimique du constituant A à l'état pur,

μ_B^0 le potentiel chimique du constituant A à l'état pur,

G^{ideal} l'entropie de mélange pour une solution idéale, soit $G^{\text{ideal}} = RT(x_A \ln x_A + x_B \ln x_B)$

G^{ex} l'entropie d'excès décrite pour un système binaire sous la forme d'un polynôme dit de Redlich-Kistler $G^{ex} = \sum_{i=0}^n G_i(x_A-x_B)^i$, où G_i désigne les termes d'interaction et n le degré du polynôme.

Ce formalisme est appliqué aux alliages binaires à base de cuivre par Miettinen [46] dans le cadre de la conception d'un nouveau modèle de microségrégation, CASBOA. Une banque de données des termes d'interactions G_i est reportée dans la référence [46].

De manière plus générale, la méthode CALPHAD suppose que l'on peut calculer l'énergie de Gibbs G^ϕ de la phase ϕ pour un système contenant i constituants à partir de la relation (1.48) avec $G^0 = \sum_i x_i G_i^0$ et $G^{ideal} = \sum_i x_i \ln(x_i)$.

Seul le calcul de G^{ex} pose problème, aussi la méthode CALPHAD opère-t-elle l'extrapolation suivante :

$$G_{ter}^{ex} = \sum_{bin} G_{bin}^{ex} \quad (1.49)$$

G_{ter}^{ex} l'entropie d'excès pour un système ternaire

G_{bin}^{ex} l'entropie d'excès pour un sous-système binaire

Les résultats donnés par cette extrapolation sont comparés aux expériences, et si nécessaire, des fonctions d'interaction G_{ter}^{int} sont ajoutées :

$$G_{ter}^{ex} = \sum_{bin} G_{bin}^{ex} + G_{ter}^{int} \quad (1.50)$$

Pour calculer G^{ex} , la même procédure est appliquée pour passer d'un système contenant i constituants à un système contenant $i+1$ constituants.

Le modèle de microségrégation IDS (InterDendritic Solidification model) développé par Miettinen [45] et appliqué aux aciers faiblement alliés ou inoxydables est basé sur le même formalisme. A partir de l'expression de l'énergie de Gibbs, le potentiel chimique de chaque constituant i dans la phase ϕ μ_i^ϕ peut être calculé. L'équilibre thermodynamique s'exprime alors de la manière suivante :

$$\mu_i^{\phi 1}(T, x_1^{\phi 1}, \dots, x_n^{\phi 1}) = \mu_i^{\phi 2}(T, x_1^{\phi 2}, \dots, x_n^{\phi 2}) \quad (1.51)$$

Pour chaque élément i .

Ce modèle, parce qu'il inclut le calcul de la diffusion chimique et des données thermodynamiques, donne des températures de solidus proches de celles mesurées par des expériences d'ATD (Analyse Thermique Différentielle) pour une large gamme d'aciers. Gu et Beckermann [42] ont testé le code de solidification micro-macro de Schneider et Beckermann [14] sur un lingot industriel, et ont utilisé le modèle de microségrégation de Miettinen pour déterminer la température de solidus de l'alliage correspondant.

De nombreux logiciels commerciaux basés sur la méthode CALPHAD pour calculer des diagrammes d'équilibre ont été développés. Parmi les plus utilisés, on peut citer PANDAT, MTDATA, Thermo-Calc ou les programmes dits de Lukas, comme PMLFKT ou TERFKT. Ce dernier programme a permis de générer une banque de données thermodynamiques pour des superalliages à base nickel contenant jusqu'à 10 éléments. Boettinger et coll. [43] présentent des cas de couplage de cette banque de données via une sous-routine spécifique avec le modèle de Gulliver-Scheil et un modèle de microségrégation incluant la diffusion à l'état solide. Cette sous-routine a été

couplée avec succès au code de solidification multi-échelle développé par Schneider et Beckermann [44]. Le code obtenu a été appliqué à l'étude de la solidification dirigée d'un superalliage à base nickel dans une cavité rectangulaire à deux dimensions. En conclusion, il soulève le problème du temps de calcul excessif que peut nécessiter un tel couplage. Cependant, cette subroutine a été simplifiée et seule la solidification primaire est considérée, la fin de solidification étant simulée par une réaction eutectique isotherme.

I - 2.5. METHODES DE COUPLAGE DES MODELES DE MICROSEGREGATION AVEC LES LOGICIELS DE CALCUL D'EQUILIBRE THERMODYNAMIQUE

La partie I - 1 a présenté des lois analytiques de microségrégation dont la plupart sont basées sur une description grossière des diagrammes de phases. On suppose en effet souvent que le coefficient de partage et la pente de liquidus relatifs à chaque soluté i sont constants, ce qui peut se révéler préjudiciable, surtout lorsque l'on veut tenir compte des transformations de phases en cours de solidification pour des alliages multiconstitués. Même pour des alliages binaires, tels Al-Mg, Combeau et Mo [82] ont montré que le chemin de solidification était modifié de manière notable selon que le diagramme de phases était linéarisé ou non.

L'intégration de calculs d'équilibres thermodynamiques dans un modèle de microségrégation peut se faire par plusieurs moyens :

I - 2.5.1. Couplage direct

Parmi les logiciels existants, certains mettent à disposition une interface grâce à laquelle des variables importantes peuvent être transférées d'un langage à un autre. C'est le cas de Thermo-Calc avec l'interface TQ qui permet un couplage direct avec un programme développé en langage FORTRAN à l'aide de bibliothèques et de commandes spécifiques. Cet interfaçage direct est appliqué dans DICTRA [69] et dans les travaux de X. Yan et coll. [72], pour le calcul de la température de liquidus et des coefficients de partage pour un alliage Al-4,5%Cu. En utilisant des données thermodynamiques relatives au diagramme binaire Al-Cu établies par différents auteurs, Yan et coll. ont montré que le choix de celles-ci n'était pas sans influence sur les profils de microségrégation calculés. Le même type de couplage a également été testé par F.-X. Xie et coll. [73] dans le cas de l'alliage ternaire Al-Cu-Mg, mais son influence sur les résultats calculés ne donne pas lieu à de discussion particulière. Dans les travaux de X. Yan et coll. [74], le logiciel PANDAT, également basé sur la méthode CALPHAD, a été testé sur l'alliage quaternaire Al-Cu-Mg-Si.

Le fait de coupler directement un modèle de microségrégation avec un logiciel de calculs d'équilibres thermodynamiques alourdit cependant les calculs, ce qui a amené certains auteurs à réfléchir à d'autres méthodes de couplage plus efficaces.

I - 2.5.2. Méthode tabulaire

Elle a été appliquée dans les travaux de Doré et coll. [1] et est basée sur le principe suivant : un logiciel de calculs d'équilibres thermodynamiques, ici Thermo-Calc, est d'abord utilisé pour générer un fichier de données relatif à un équilibre s/l. Par exemple, pour un système ternaire A-B-C, ce fichier contient, pour chaque couple de valeurs (w_A^l, w_B^l) :

- La température de liquidus T_{liq} ;
- Les deux coefficients de partage (k_A, k_B) ;

- Les pentes de liquidus (m_A, m_B).

Les couples de valeurs (w_A^1, w_B^1) sont choisis sur une grille de points qui quadrille de manière plus ou moins fine une zone du diagramme d'équilibre ternaire. Ces fichiers de données sont ensuite utilisés comme des valeurs d'entrée du modèle de microségrégation. A chaque pas de temps, les données thermodynamiques correspondant aux valeurs (w_A^1, w_B^1) sont calculées en utilisant une interpolation bilinéaire à partir des données du fichier généré. Ce type de couplage a été testé sur l'alliage ternaire Al-Mg-Si pour décrire la solidification primaire en α et le dépôt de la phase Mg_2Si le long de la ligne monovariante liquide. Le chemin de solidification aboutit en cours de refroidissement au point eutectique invariant correspondant à l'équilibre l- α Al-Mg₂Si-Si.

La méthode tabulaire a également été testée par Kraft et coll. [67]. Les programmes thermodynamiques utilisés sont ceux dits de Lukas, TERFKT et PMLFKT qui sont utilisés respectivement pour les alliages ternaires et quaternaires (voir également [43]). Les auteurs affirment qu'une réduction importante du temps de calcul peut être obtenue par la méthode tabulaire. Une grille de 1000 points pour les systèmes ternaires et de 20000 points pour les systèmes quaternaires donne un temps de calculs divisé par 10 pour un système ternaire et par 100 pour un système quaternaire par rapport à un couplage direct.

Plus de détails sur la méthode tabulaire sont donnés dans la partie II - 3.

I - 3. REACTION ET TRANSFORMATION PERITECTIQUE

Dans la plupart des alliages industriels, il est assez rare que les séquences de solidification ne soient constituées que de la formation d'une seule phase solide primaire. Des transformations de phases ont généralement lieu, telle la formation de phases eutectiques ou péritectiques, ou encore le dépôt de carbures en fin de solidification pour des aciers de fort tonnage comme le 100C6. La formation de ces phases bouleverse la microségrégation pour plusieurs raisons :

- Celles-ci présentent généralement des propriétés physiques complètement différentes de la phase solide primaire, en terme de solubilité ou de transport par diffusion ;
- Elles présentent des microstructures très spécifiques qui influent sur les chemins de diffusion dans les différentes phases.

I - 3.1. TRAVAUX EXPERIMENTAUX SUR LA REACTION ET LA TRANSFORMATION PERITECTIQUE

Blanc et Tricot [60] ont été parmi les premiers à s'intéresser expérimentalement à l'influence de la présence de ferrite sur la microségrégation dans les aciers inoxydables Fe-Ni-Cr. Leurs observations ont porté sur des alliages à l'état brut de coulée sous forme de lingots de 250 kg, avec 5 compositions nominales différentes désignées par les lettres A, B, C, D et E, de manière à obtenir un dépôt de ferrite primaire croissant. Ils ont ainsi constaté que :

- l'alliage D comportait de la ferrite localisée sur les axes des dendrites ;
- l'alliage B comportait de la ferrite située entre les branches austénitiques de la zone basaltique ;
- L'alliage A était entièrement austénitique ;

Ils analysent les ségrégations finales en distinguant trois grandes origines et utilisent donc la terminologie suivante :

- la ségrégation dite dendritique qui se traduit par un enrichissement des espaces interdendritiques en chrome et nickel ;
- La ségrégation dite de partage correspondant à l'enrichissement de la ferrite en chrome et son appauvrissement en Ni (le nickel est gammagène et le chrome est deltagène). Ainsi, la présence de ferrite masque en partie la ségrégation dendritique ;
- La ségrégation dite de régression qui laisse subsister une ségrégation en sens inverse pour les éléments Ni et Cr.
-

Les observations faites par Blanc et Tricot illustrent que le taux de ferrite résiduel qui s'est déposé en cours de solidification primaire est à l'origine des deux derniers types de ségrégation. Or, ce taux de ferrite évolue au cours de la réaction péritectique dont une description fine est requise pour prédire convenablement la ségrégation finale.

Fredriksson et Nylén [16] ont observé expérimentalement le déroulement de la réaction péritectique en solidification dirigée sur un alliage Cu-70wt%Sn. Dans les premiers stades de la solidification, les trois phases restent en contact à une jonction triple I, comme montré schématiquement sur la figure I-6, et la croissance de β s'accompagne de la dissolution et de la resolidification successives de la phase α .

Ce premier stade de la croissance péritectique, que l'on nommera par la suite **réaction péritectique**, se termine lorsque la couche β entoure complètement la phase primaire α . Peut alors commencer le second stade de la croissance péritectique correspondant à l'épaississement de la couche β entre α et le liquide et qui sera notée par la suite **transformation péritectique**. A ce stade, on comprend mieux pourquoi ce type de croissance a été qualifié de péritectique, qui étymologiquement provient du grec *peri* (autour) et *tectos* (fondre). Ainsi, la transformation péritectique peut être décrite comme la combinaison de deux transformations de phases à haute température :

- la régression de la phase solide primaire $\alpha \rightarrow \beta$;
- la solidification directe de $\beta \rightarrow l$.

Il est expérimentalement difficile de distinguer la réaction de la transformation péritectique.

La transformation péritectique étant définie comme l'épaississement de la couche β entre la phase primaire α et le liquide, elle s'opère donc par un mécanisme de diffusion à travers la couche β . Matsuura et coll. [18] ont étudié la diffusion à travers la couche péritectique dans le système Fe-C au moyen de l'expérience du couple de diffusion, dont le dispositif expérimental est représenté sur la figure I-7.

Deux types d'alliages sont alors préparés :

- l'alliage A contenant 1.61%mass de carbone est fondu dans un creuset puis refroidi jusqu'à 1696 K. une petite quantité d'austénite cristallise ce qui maintient la composition en carbone du liquide résiduel à la composition d'équilibre à 1696 K ;
- L'alliage B constitué de ferrite δ à 1696 K (contenant 0.03%mass de carbone) est placé dans le four juste au-dessus du creuset, et mis en contact avec l'alliage A.

La température du milieu est maintenue à 1696 K. Au bout de différents laps de temps, le couple de diffusion ainsi formé est rapidement trempé à l'eau glacée. Le type de microstructure obtenu après trempé montre qu'il n'y a pas de joints de grains au niveau de l'interface initiale ce qui suggère que les grains d'austénite se sont bien développés à la fois à partir du liquide et de la ferrite. D'autre part, en se référant à la position initiale de l'interface entre les deux alliages A et B, on peut

quantifier la quantité d'austénite formée à partir de la ferrite et celle formée à partir du liquide. En effectuant des trempes au bout de laps de temps différents, il est alors possible de dresser une courbe expérimentale qui donne l'épaisseur de la phase d'austénite formée d'une part à partir de la ferrite et d'autre part à partir du liquide, en fonction du temps. Les courbes obtenues peuvent alors être décrites comme suit :

$$\begin{aligned} X1 &= 5.4t^{0.57} \\ X2 &= 80.0t^{0.50} \\ X3 &= 85.7t^{0.50} \end{aligned}$$

t est la durée de la réaction (en s), X1 et X2 sont les épaisseurs (en μm) de la phase austénitique respectivement formée à partir du liquide et de la ferrite, et X3 est l'épaisseur totale de l'austénite.

Il est observé que 90% de la phase austénitique sont issus de la ferrite. Ceci s'explique assez facilement au vu de la figure I-8. En effet, $w_c^{l/\gamma} - w_c^{\gamma/l} > w_c^{\gamma/\delta} - w_c^{\delta/\gamma}$: pour rejeter une même quantité de soluté lors de la croissance, l'interface γ/l doit moins avancer que l'interface δ/γ . L'échantillon trempé est partagé selon des épaisseurs de 2mm, puis chaque tranche est analysée par la méthode EPMA afin de pouvoir établir le profil de concentration du carbone sur une section longitudinale de l'échantillon. Les valeurs de la concentration aux interfaces sont celles lues sur le diagramme de phase, ce qui justifie l'hypothèse H1.2 souvent faite dans les modèles de microségrégation. Les effets de la température ont également été étudiés et il se révèle que lorsque la température de réaction baisse, la vitesse de croissance de l'austénite augmente. Ceci est en fait le résultat de deux effets antagonistes : le coefficient d'interdiffusion du carbone dans l'austénite diminue mais la différence de concentration $w_c^{\gamma/l} - w_c^{\gamma/\delta}$ augmente. Or c'est ce dernier effet qui l'emporte. En effet, la différence de concentration en carbone à 1700 K est 13 fois plus grande que celle à 1760 K, alors que le coefficient d'interdiffusion dans l'austénite ne diminue que de 70% entre ces deux températures.

I - 3.2. TRAVAUX ANTERIEURS SUR LA MODELISATION DE LA REACTION ET DE LA TRANSFORMATION PERITECTIQUE

D'après la partie I - 2, à l'équilibre thermodynamique total :

- pour un alliage binaire, la composition du liquide et la température sont fixées pendant la réaction péritectique ;
- pour un alliage ternaire, la composition du liquide suit une ligne monovariante dans le diagramme d'équilibre de phases. D'après cette analyse, le chemin de solidification se confond donc avec la ligne monovariante pendant la réaction péritectique.

Cependant, l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique total est rarement atteinte dans la pratique. Pour décrire la croissance péritectique dans les aciers, l'hypothèse suivante est souvent faite :

H1.8 : la phase de réaction est négligée et seule la transformation est considérée. La deuxième phase solide formant une couche entre la phase primaire et le liquide, on suppose donc comme corollaire de l'hypothèse H1.2 que l'équilibre thermodynamique local est atteint aux interfaces δ/γ et γ/l (figure I-8).

Sous l'hypothèse H1.8, la règle des phases de Gibbs ne s'applique plus et les compositions des phases en présence ne sont donc pas celles données par le palier péritectique dans le cas binaire ou par le triangle d'équilibre dans le cas ternaire. Par conséquent, le chemin de solidification, pendant la transformation péritectique, n'est plus forcé de suivre la ligne monovariante d'où la nécessité de le déterminer en ne prenant en compte que l'équilibre thermodynamique local aux interfaces δ/γ et γ/l . L'hypothèse H1.8 est adoptée dans la plupart des modèles traitant de la croissance péritectique.

Fredriksson et Stjern Dahl [21] montrent l'importance de l'hypothèse H1.8 et la manière dont elle peut influencer sur le déroulement de la solidification dans le cas de l'alliage ternaire Fe-Mn-S. La projection des nappes de liquidus du coin riche en fer dans le diagramme de phases est représentée sur la figure I-9. En choisissant convenablement les compositions nominales, la ferrite delta précipite et la composition du liquide s'enrichit en Mn et S jusqu'à atteindre la ligne monovariante liquide L1 ((1) sur la figure I-9). A ce stade, l'austénite peut se former de deux manières différentes :

- L'austénite recouvre entièrement la ferrite primaire : le chemin de solidification est alors représenté par la ligne pointillée (2) sur la figure I-9. Comme mentionné ci-dessus, le chemin de solidification n'est pas forcément confondu avec L1 mais s'en écarte pour atteindre la ligne L2 à droite de son maximum en température noté M sur la figure I-9 : c'est alors le sulfure FeS qui se forme.
- L'austénite ne recouvre que partiellement la ferrite primaire : le liquide est donc en contact avec la ferrite primaire et l'austénite. Sous l'hypothèse que le liquide est homogène en composition et que l'équilibre thermodynamique local est maintenu aux interfaces, le chemin de solidification suit la ligne monovariante L1 ((3) sur la figure I-9) jusqu'à disparition totale de la ferrite. Puis la solidification de l'austénite se poursuit ((4) sur la figure I-9) jusqu'à ce que le chemin de solidification atteigne L2 à gauche de son maximum : c'est alors le sulfure MnS qui se forme.

I - 3.2.1. Modélisation de la transformation péritectique dans les alliages binaires

St-John et Hogan [17] ont étudié deux types de systèmes péritectiques, Al-Al₃Ti et Cd-Cd₃Ag (ces deux systèmes ont un coefficient de partage $k > 1$), en solidification dirigée. Sous l'hypothèse H1.8, la loi de croissance isotherme de la phase β qui se forme au cours de transformation péritectique est établie à l'aide de la formule de Wagner [28]:

$$e = a(2t)^{1/2} \quad (1.52)$$

Avec e l'épaisseur de la couche d'austénite,

$$a = D^\beta \left[\frac{(w^{\beta/\alpha} - w^{\beta/1})(w^{\alpha/\beta} - w^{1/\beta})}{(w^{\alpha/\beta} - w^\beta)(w^\beta - w^{1/\beta})} \right]^{1/2},$$

$$w^\beta = \frac{w^{\beta/\alpha} + w^{\beta/1}}{2},$$

t le temps de réaction.

Expérimentalement, ils ont constaté que la régression de la phase primaire α joue un rôle mineur dans le système Al-Al₃Ti et que la plus grande partie de la phase β est formée par solidification directe à partir du liquide : par conséquent, la relation (1.52) n'est pas adaptée à la description de l'évolution de la couche β . En revanche, pour le système Cd-Cd₃Ag, la régression de la phase primaire est notable et celle-ci est réduite approximativement à sa proportion d'équilibre à la température considérée. Dans ce cas, la relation (1.52) est validée.

Un modèle numérique dans le cas des alliages Cd-Ag et Pb-Bi et a été proposé par Das et coll. [84] pour traiter les cinétiques interfaciales en régime non stationnaire pour une géométrie sphérique. Les équations de conservation de soluté dans chaque phase et aux interfaces sont résolues par la méthode des éléments finis dans la phase primaire α et la phase péritectique β . Les résultats obtenus offrent une bonne corrélation avec l'expérience par rapport à d'autres modèles basés sur l'hypothèse quasi-stationnaire par exemple.

I - 3.2.2. Modélisation de la transformation péritectique dans les alliages multiconstitués

Fredriksson a modélisé la transformation péritectique dans les aciers Fe-Ni-Cr [20,22] et Fe-C-X [19], où X est un élément substitutionnel, en utilisant des modèles simples préexistants pour traiter la solidification primaire (voir I - 1). Il adopte l'hypothèse H1.8 et suppose également que :

- le titre massique en soluté C et X est uniforme dans le liquide ainsi que dans la phase primaire ferritique ;
- le titre massique en carbone est uniforme dans l'austénite. En particulier :

$$w_c^{\gamma/l} = w_c^{\gamma/\delta}$$

- la diffusion des éléments substitutionnels dans l'austénite est nulle ;
- Les coefficients de partage des différents solutés sont supposés constants.

Ces hypothèses lui permettent d'utiliser la loi de Gulliver-Scheil pour les éléments substitutionnels afin de décrire les mouvements respectifs des interfaces δ/γ et $\gamma/\text{liquide}$ en cours de solidification.

Pour les aciers Fe-C-X, deux cas peuvent se présenter :

- cas n°1 : $w_X^{\gamma/l} > w_X^{\gamma/\delta}$

La figure I-10 montre alors que $w_X^{\gamma/l}$ est dans le triangle d'équilibre. Fredriksson suggère que dans ce cas, il peut être difficile de former une couche complète d'austénite, car il est thermodynamiquement favorable de former de la ferrite et de l'austénite en même temps.

- cas n°2 : $w_X^{\gamma/l} < w_X^{\gamma/\delta}$

La figure I-10 montre que c'est $w_X^{\gamma/\delta}$ qui tombe à l'intérieur du triangle d'équilibre. Ceci implique la formation de liquide à l'interface ferrite/austénite via une réaction métatectique, $\delta \rightarrow \gamma + \text{liquide}$. Il a été montré expérimentalement qu'une réaction métatectique est associée à une réaction péritectique dans les alliages Fe-Ni-S, Fe-Ni-Mn-S et Fe-C-P.

Ueshima et coll. [24] ont traité la transformation péritectique dans les alliages multiconstitués sans considérer d'interaction entre les différents solutés, en supposant H1.1 à H1.8. La méthode numérique est basée sur la discrétisation de l'équation de la diffusion par la méthode des différences finies dans les phases solides. La géométrie adoptée est représentée sur la figure I-11 : les sections transversales des dendrites primaires sont assimilées à des hexagones réguliers. La même description a été utilisée par Miettinen [26]. En fait le choix de la géométrie adoptée dans ce modèle est le fruit de plusieurs simulations qui ont été effectuées sur des formes différentes des bases de dendrites (carrée au lieu d'hexagonale par exemple). La forme hexagonale, parmi toutes celles qui ont été essayées, donne les résultats les plus proches de l'expérience. Ces différents essais révèlent la difficulté de connaître précisément la géométrie des microstructures en cours de solidification. Pour valider leur modèle, des expériences de solidification dirigée ont été menées sur des aciers Fe-C-Si-Mn-P-S. Les échantillons ont été découpés et les sections transverses analysées afin d'établir des profils de concentration. De manière générale, il y a un bon accord entre le modèle et l'expérience. Cependant, leur démarche rend difficile une étude fine de l'influence de chacun des solutés sur le déroulement de la transformation péritectique. Leur étude a permis de conclure que :

- Le phosphore est redistribué du liquide interdendritique vers le centre de la dendrite ;
- Le manganèse est redistribué du centre de la dendrite vers le liquide interdendritique, mais cette redistribution est moins intense ;
- La redistribution du phosphore au centre de la dendrite s'accroît lorsque la vitesse de refroidissement diminue ;
- Quand la concentration initiale en carbone est plus faible, les concentrations finales en manganèse et en phosphore dans la région interdendritique diminuent.

Schneider et Beckermann [50] ont également abordé de front le problème couplé de la microségrégation et de la macroségrégation dans le cas de la solidification péritectique. Ils utilisent les mêmes hypothèses que dans la référence [14] pour leur couplage micro-macro. Là encore, les auteurs utilisent l'hypothèse H1.8 ainsi que l'approximation du profil de concentration dans la ferrite et l'austénite sous la forme d'une loi quadratique. Une simulation de la solidification d'un acier comprenant dix éléments d'alliage a été menée dans une cavité rectangulaire refroidie par les parois. Les résultats de ces travaux n'ont cependant pas permis de faire une analyse spécifique de la transformation péritectique sur la macroségrégation.

I-3.3. DISCUSSION SUR LA NATURE DE L'EQUILIBRE δ/γ LORS DE LA REGRESSION DE LA FERRITE

La régression de la ferrite correspond à une transformation à l'état solide à haute température au cours de laquelle la ferrite se transforme en austénite. Dans la littérature, de nombreux travaux ont été consacrés à la transformation $\gamma \rightarrow \delta$ qui se produit pour des alliages Fe-C-X où X est un élément substitutionnel à plus basses températures. Les études antérieures faites sur les transformations à basse température à l'état solide contrôlées par la diffusion chimique peuvent permettre de mieux comprendre les phénomènes dont l'interface δ/γ est le siège. Dehoff [40] a théoriquement étudié la croissance d'une particule P dans une matrice M contrôlée par diffusion dans un système multiconstitué sous les hypothèses suivantes :

- la croissance est isotherme ;
- l'interface est à l'équilibre thermodynamique local ;
- Le coefficient de diffusion du soluté i dans la matrice M D_i^M est indépendant de la composition ;
- La particule P de rayon r croît dans la matrice M supposée semi-infinie.

Dehoff établit alors pour chaque soluté i la relation suivante :

$$r = \beta_i (D_i^M t)^{1/2} \quad (1.53)$$

où β_i est une fonction de la supersaturation $\Omega_i = \frac{w_i^{M/P} - w_i^0}{w_i^{M/P} - w_i^P}$ et t est le temps de réaction.

Comme r doit être le même pour chaque soluté i, il vient :

$$\beta_c (D_c^M)^{1/2} = \beta_x (D_x^M)^{1/2} \quad (1.54)$$

A partir de la relation (1.54) et pour une connode donnée (c'est-à-dire pour $w_i^{M/P}$ et w_i^P donnés), on peut ainsi tracer w_x^0 en fonction de w_c^0 , comme montré sur la figure I-12. Coates a appelé les courbes ainsi obtenues « interface composition contours » ou plus brièvement « IC contours ».

Inversement, pour les compositions nominales données (w_c^0, w_x^0) comprises dans la zone d'équilibre P+M, il existe une seule connode telle que les flux de chaque soluté à l'interface donnent la même croissance de la phase fille. Dans le cas où $D_c^M \gg D_x^M$, les courbes IC ont l'allure représentée sur la figure I-12b) et se divisent nettement en deux parties dont l'une est parallèle à l'axe w_x (notée I) et l'autre à l'axe w_c (notée II). Deux cas peuvent alors se présenter :

- le point nominal (w_c^0, w_x^0) appartient à la zone I : le titre massique moyen en X (titre dans M loin de l'interface M/P) est différent du titre massique en X dans P (figure I-13a)

- le point nominal (w_c^0, w_X^0) appartient à la zone II : le titre massique moyen en X est le même que le titre massique en X dans P (figure I-13b)

Dans le cas du profil en X établi dans la région II, il peut arriver que la couche limite de diffusion soit de l'ordre de grandeur de quelques distances interatomiques, auquel cas parler de couche limite de diffusion n'a plus aucun sens. Physiquement, ce cas signifie que le partitionnement n'a plus le temps de s'opérer au niveau de l'interface. Le profil est alors donné par la figure I-14. Cette situation est désignée par le terme paraéquilibre [41] : au niveau de l'interface, le potentiel chimique du carbone est le même dans les deux phases. En revanche, pour le soluté X, c'est le titre massique et non plus le potentiel chimique qui est le même à l'interface. A partir de ces données, il est possible de calculer un diagramme de « paraéquilibre » de phases.

Cependant, la situation suivante peut également se rencontrer : la phase fille se forme avec la même composition que la phase parente, mais il y a présence d'un pic de soluté à l'interface suffisamment large, ce qui la distingue du paraéquilibre. C'est la raison pour laquelle on désigne cette situation par le terme « faux paraéquilibre ».

Généralisation à une croissance non isotherme :

Au cours du refroidissement, le point nominal (w_c^0, w_X^0) peut changer de zone (I ou II) et le régime de croissance peut alors être modifié au cours de la transformation de phase.

I - 4. MICROSTRUCTURES

Les échanges de matière aux interfaces sont bien sûr dépendants de la géométrie de celles-ci et donc de la morphologie de la structure de solidification. Comme le montre l'équation (1.8), l'évaluation du terme de rétrodiffusion nécessite une bonne connaissance de la géométrie interfaciale ainsi que des tailles de structures mises en jeu via le terme $S_v^{s/l} \nabla w^s |^{s/l}$.

Généralement, on distingue trois grandes catégories de modèles permettant la résolution couplée de la microségrégation et des microstructures en cours de solidification :

- Les modèles déterministes ;
- Les modèles de type « automates cellulaires » ;
- Les modèles de champ de phases

Comme cela a déjà été mentionné dans l'introduction, l'objet de cette thèse vise la mise au point d'un modèle de microségrégation performant en terme de temps de calcul. Cela écarte donc d'emblée les deux derniers types de modèle. C'est la raison pour laquelle dans cette partie sont principalement présentées des méthodes plus ou moins sophistiquées de modélisation des microstructures dans des modèles de type déterministe.

Dans un lingot, on observe souvent deux types de structure au cours de la solidification :

- Une structure colonnaire qui se forme à partir de la zone de peau sur la paroi des moules et qui se caractérise par une forte anisotropie : la croissance s'effectue selon une direction privilégiée qui dépend du flux d'extraction de chaleur ;
- Une structure équiaxe qui se développe dans le bain liquide : dans ce type de croissance, l'évacuation de la chaleur n'a pas de direction privilégiée, il en est donc de même pour la croissance.

Chacun de ces types de croissance peut présenter une structure bien différente suivant l'aspect de l'interface solide/liquide : une éventuelle destabilisation de l'interface peut en effet donner naissance à des structures plus ou moins ramifiées appelées dendrites.

Ainsi, en croissance colonnaire, on peut distinguer :

- une structure cellulaire qui provient de la destabilisation d'une interface plane. Il est alors possible dans ce cas de caractériser cette structure par la donnée d'une seule distance caractéristique, la distance entre bras primaires de dendrites, notée λ_1 ;
- Une structure dendritique caractérisée par une ramification plus ou moins fine de l'interface solide/liquide. A ce stade, la donnée d'une seule distance n'est plus suffisante pour décrire la morphologie obtenue et une description plus précise de la structure exige l'introduction de la distance entre bras secondaires de dendrites, notée λ_2 .

A ce stade, au vu de la multiplicité des distances caractéristiques mises en jeu dans le réseau dendritique, il devient difficile de savoir quelle est la grandeur pertinente sur laquelle s'effectue le transport par diffusion. Ainsi, Kobayashi [57] choisit successivement comme grandeur spatiale caractéristique l'espacement entre bras primaires de dendrite λ_1 , l'espacement entre bras secondaires λ_2 , et même $(\lambda_1 + \lambda_2)/2$.

Il en est de même pour la géométrie : en une dimension, laquelle des géométries cartésienne, axisymétrique ou sphérique est la plus adaptée ?

I - 4.1. MODELES DE MICROSEGREGATION 1D AVEC PRISE EN COMPTE DE MICROSTRUCTURES DENDRITIQUES COMPLEXES

Dans les modèles présentés précédemment, on supposait que la solidification commençait en $x = 0$ (voir figure I-1). On peut cependant imaginer que la solidification commence en $x = \lambda$, c'est-à-dire sur le pourtour de la structure. Si ces deux possibilités sont équivalentes pour une géométrie plane (P), il n'en est pas de même pour une géométrie axisymétrique ou sphérique. Si la solidification commence en $x = \lambda$, on parlera de géométries *axisymétrique à solidification externe* (AE) et *sphérique à solidification externe* (SE). Pour chacune de ces géométries, Xu [77] calcule le paramètre ϕ^G tel que :

$$\int_0^{f^s} \frac{\partial(\rho^s \omega^s)}{\partial t} d\eta = \phi^G f^s \frac{\partial(\rho^s \omega^s)^*}{\partial t} \quad (1.55)$$

où $G = P, A, S, AE$ ou SE .

L'idée de Xu est de caractériser l'évolution morphologique colonnaire ou équiaxe à l'aide des cinq géométries de base citées précédemment. Il introduit donc la nouvelle grandeur :

$$\bar{\phi}^G = \xi^P(f^s)\phi^P + \xi^A(f^s)\phi^A + \xi^S(f^s)\phi^S + \xi^{AE}(f^s)\phi^{AE} + \xi^{SE}(f^s)\phi^{SE}$$

$$\text{avec } \xi^P(f^s) + \xi^A(f^s) + \xi^S(f^s) + \xi^{AE}(f^s) + \xi^{SE}(f^s) = 1$$

Les coefficients ξ^G ($G = P, A, S, AE$ ou SE) permettent de quantifier en cours de solidification la part que chaque géométrie peut jouer dans la description de la structure dendritique.

La relation (1.55) est alors modifiée comme suit :

$$\int_0^{f^s} \frac{\partial(\rho^s \omega^s)}{\partial t} d\eta = \bar{\phi}^G f^s \frac{\partial(\rho^s \omega^s)^*}{\partial t} \quad (1.56)$$

La limite d'une telle approche est que le choix des fonctions $\xi^G(f^s)$ est totalement arbitraire.

Rappaz et Thévoz [61] ont développé un modèle de microségrégation en croissance équiaxe dendritique pour un alliage binaire. A cet effet, ils ont divisé le milieu en trois parties : la fraction de solide g^s comprise dans une fraction de grain g^{env} contenant le solide et le liquide interdendritique, elle-même contenue dans une sphère de rayon R_{tot} contenant le liquide environnant extradendritique. Un modèle numérique et un modèle analytique ont été proposés : la figure I-16 donne une illustration des profils de soluté dans ces modèles. Dans les deux cas, le grain croît avec une composition du solide à l'interface en équilibre avec le liquide à la température, supposée uniforme, régnant dans le grain. Le liquide interdendritique est supposé homogène, à la composition d'équilibre notée w^{li} et la rétro-diffusion est négligée. Dans le modèle numérique, le profil de soluté est établi en résolvant l'équation de la diffusion entre la frontière du grain R_g et le rayon total R_{tot} . Dans le modèle analytique, qui est plus avantageux en terme de temps de calcul, une couche limite de diffusion a été déterminée (d'épaisseur $\delta_1 = 2D/V$) dans laquelle on impose une loi linéaire de composition. La croissance du grain est régie par la cinétique des pointes de dendrites. La fraction interne de solide g_i , définie comme le rapport g^s/g^{env} , est déduite du bilan global de soluté. Pour un alliage binaire, les hypothèses du modèle conduisent à $w^{pointe} = w^{li}$. Rappaz et Boettinger [64] ont montré que l'extension de ce modèle aux alliages multiconstitués conduit à ce que w^{pointe} n'est pas forcément égale à w_i^{li} .

Wang et Beckermann [11; 12] ont généralisé cette approche à la croissance dendritique colonnaire et en prenant en compte la diffusion à l'état solide. Les profils de soluté sont supposés suivre une loi quadratique en géométrie cartésienne dans le solide et dans le liquide extradendritique : la relation (1.20) est alors valable et les distances δ_s et δ_l (voir figure I-16) peuvent être calculées assez facilement. La prise en compte de la diffusion à l'état solide suppose la définition de la surface spécifique $S_v^{s/li}$. Considérant les branches dendritiques comme des plaques infinies espacées d'une distance moyenne λ_2 , Wang et Beckermann emploient la relation suivante :

$$S_v^{s/li} = 2/\lambda_2 g^{env} \quad (1.57)$$

En suivant la même démarche, une relation similaire peut être établie en supposant les branches dendritiques non plus comme des plaques infinies mais comme des cylindres à section circulaire :

$$S_v^{s/li} = 4/\lambda_2 g_i^{1/2} g^{env} \quad (1.58)$$

Intéressant pour sa simplicité, cette expression souffre néanmoins d'une limitation importante : quand la structure dendritique a disparu, la surface du solide n'est pas égale à celle de l'enveloppe du grain. Quand la fraction volumique interne de solide g_i^s est proche de 1, l'approximation géométrique des branches cylindriques n'est plus pertinente. Par conséquent, la relation suivante a été proposée par Appolaire [34] en tenant compte de la valeur limite de la surface lorsque le cristal n'est pas dendritique :

$$S_v^{s/li} = (4/\lambda_2 g_i^{1/2} g^{env})(1-g_i^m) + g_i^m S_v^{env} \quad (1.59)$$

Où m est un exposant strictement positif qui détermine en partie le comportement de la surface de solide lors d'un changement de volume.

Une relation analogue a été proposée pour décrire la distance caractéristique du solide :

$$d_s = \lambda_2 g_i^{1/2} (1-g_i^p) + g_i^p d_{eq} \quad (1.60)$$

Où p est un exposant strictement positif et d_{eq} une distance représentative du volume occupé par l'enveloppe.

Le modèle microscopique de Wang et Beckermann [11,12] a été couplé avec un code macroscopique, en supposant des vitesses de liquide différentes dans le liquide intradendritique et le liquide extradendritique [86]. Au niveau des équations de transport macroscopique, il est donc nécessaire de traiter les deux liquides comme deux phases distinctes.

I - 4.2. DISTANCE ENTRE BRAS PRIMAIRES DE DENDRITES

I - 4.2.1. Modèles théoriques

En supposant que la forme de la cellule (ou dendrite) est un ellipsoïde et en utilisant le critère de stabilité marginal, Kurz et Fisher [31] établissent la relation théorique suivante pour un système binaire :

$$\lambda_1 = 4,3 [m(k-1)D\Gamma/k^2]^{0,25} w_0^{0,25} G_T^{-0,5} V^{-0,25} \quad (1.61)$$

Où V est la vitesse du front de solidification.

D'autres auteurs ont obtenu différemment la relation (1.61) avec les mêmes exposants pour G_T et V , même si le coefficient multiplicatif 4,3 peut différer.

Pour valider ces formules théoriques, de nombreux chercheurs ont mené des essais de solidification dirigée. Les corrélations empiriques qu'ils obtiennent sont de la forme suivante :

$$\lambda_1 = CG_T^{-m_1} V^{-n_1} \quad (1.62)$$

Le tableau I-1 montre les valeurs de C , m_1 et n_1 trouvées dans la bibliographie.

Une récapitulation plus exhaustive de relations empiriques du même type que (1.61) proposées dans la littérature est donnée dans [109].

Bouchard et Kirkaldy [98] mettent l'accent sur le fait que des expressions validées en régime stationnaire ne le sont pas forcément en régime non stationnaire. Ils établissent pour leur part que la relation suivante est celle qui reproduit le mieux les résultats obtenus en régime non stationnaire :

$$\lambda_1 = 120 \left(\frac{16w_0^{1/2} G_0 \varepsilon \Gamma D}{(1-k)mG_T U} \right)^{1/2} \quad (1.63)$$

où ε est une constante.

I - 4.3. DISTANCE ENTRE BRAS SECONDAIRES DE DENDRITES

I - 4.3.1. La maturation

On désigne par maturation (*coarsening* en anglais) l'augmentation en cours de solidification de la distance entre bras secondaires de dendrites comme illustré sur la figure I-17.

Young et Kirkwood [99] ont identifié deux mécanismes contribuant à la maturation :

- La refusion des branches dendritiques les plus petites (*ripening* en anglais), conduisant à une diminution moyenne du nombre de branches secondaires et ainsi à une augmentation de la distance entre elles. Pour une température T du milieu étudié, le bras de dendrite dont le

rayon est le plus élevé à une surfusion due à la courbure ΔT_a plus faible que celle du bras de dendrite plus petit ΔT_r (figure I-18). Par conséquent, La concentration en soluté du liquide à la surface de la grosse dendrite C_L^a est plus élevée que la concentration C_L^r à la surface de la plus petite dendrite. Un gradient de concentration s'établit donc dans le liquide, gradient qui favorise la croissance de la grosse dendrite et la dissolution de la plus petite.

- L'agglomération des branches dendritiques secondaires entre elles en fin de solidification, dénommée coalescence (même terme en anglais).

Le modèle obtenu par Kattamis et al. [97] pour un système binaire permet d'obtenir une expression de $(\lambda_2)_f$ ainsi que l'évolution au cours du temps de λ_2 . Ce modèle a été étendu aux alliages multiconstitués : Rappaz et Boettinger [64] obtiennent ainsi la relation suivante :

$$(\lambda_2)_f = 5,5(Mt_f)^{1/3} \quad (1.64)$$

$$\text{avec } M = \frac{-\Gamma}{\sum_i m_i(1-k_i)(w_i^f - w_i^0)/D_i} \ln \frac{\sum_i m_i(1-k_i)w_i^f/D_i}{\sum_i m_i(1-k_i)w_i^0/D_i} \text{ et } w_i^f \text{ est la composition du liquide en fin de}$$

solidification.

Appolaire [34] a généralisé l'expression de Mortensen [33] pour la maturation et aboutit à l'équation suivante :

$$\lambda_2^2 \frac{d\lambda_2}{dt} = AB \frac{4(b-1)(1+a(b-1))^2}{b^2 g_i (1-g_i^{1/2})} \quad (1.65)$$

$$\text{avec } AB = \frac{-\Gamma}{\sum_i m_i (1-k_i^{s/l}) w_i^{l/s} / D_i^l},$$

a le rapport du nombre de dendrites se dissolvant sur le nombre de dendrites s'épaississant,
b le rapport de leur taille moyenne.

En supposant que a, b, et g_i varie suffisamment lentement sur un pas de temps pour pouvoir les considérer constants, l'intégration de la relation (1.65) donne :

$$d\lambda_2^3 = AB \frac{4(b-1)(1+a(b-1))^2}{b^2 g_i (1-g_i^{1/2})} dt \quad (1.66)$$

En prenant a = 0,5 et b = 2 on trouve :

$$d\lambda_2^3 = \frac{27AB}{4g_i(1-g_i^{1/2})} dt \quad (1.67)$$

La maturation n'est pas évidente à caractériser expérimentalement et la plupart des travaux portent sur la détermination de $(\lambda_2)_f$. Les corrélations empiriques obtenues par Jacobi et coll. [113] sont :

$$(\lambda_2)_f = C (G_T)^{-m_2} V^{-n_2} \text{ mm} \quad (1.68)$$

Pour les aciers Fe-0,59%C-1,1%Mn, C = 11,2, $m_2 = 0,51$ et $n_2 = 0,41$ dans l'intervalle expérimental $30 < G_T < 108^\circ\text{C/cm}$, $30 < V < 750\text{mm/h}$.

Pour les aciers Fe-1,48%C-1,1%Mn, C = 17,4, $m_2 = 0,51$ et $n_2 = 0,49$ dans l'intervalle expérimental $50 < G_T < 88^\circ\text{C/cm}$, $30 < V < 750\text{mm/h}$.

Constatant que les exposants de G_T et V pour les expressions de $(\lambda_2)_f$ sont les mêmes, Jacobi et coll. en déduisent :

$$(\lambda_2)_f = Ct_f^n \quad (1.69)$$

I - 4.3.2. Influence de la maturation sur la microségrégation

La maturation dans les modèles de microségrégation est modélisée dans le cas le plus simple de la manière suivante : si l'on considère que la taille caractéristique du domaine est λ_2 , alors la taille du domaine varie avec le temps, ce qui n'était pas le cas dans tous les modèles présentés jusqu'à maintenant (voir figure I-19).

Pour montrer l'effet de la maturation sur la microségrégation et plus particulièrement sur l'interaction qu'il peut y avoir entre rétro-diffusion et maturation, Voller et Beckermann [35] ont mené l'analyse suivante : considérant un domaine mono dimensionnel de longueur λ et introduisant comme variables réduites $\tau = t/t_f$ et $\xi = x/\lambda$, l'équation de conservation du soluté s'écrit :

$$\int_0^{f^S} \frac{\partial w^S}{\partial \tau} d\xi + (k-1) w^l \frac{df^S}{\partial \tau} + (1-f^S) \frac{dw^l}{\partial \tau} = 0 \quad (1.70)$$

Si $\lambda = \lambda(t)$, $\xi = \xi(x,t)$ et la transformation de Landau appliquée à la seconde loi de Fick donne :

$$\frac{\partial w^S}{\partial \tau} = \alpha \frac{\partial^2 w^S}{\partial \xi^2} + \frac{\xi}{\lambda} \frac{d\lambda}{d\tau} \frac{\partial w^S}{\partial \xi} \quad (1.71)$$

En reportant respectivement (1.71) dans (1.70), il vient :

$$\alpha \left[\frac{\partial w^S}{\partial \xi} \right]_{\xi=f^S} + (k-1) w^l \frac{df^S}{\partial \tau} + (1-f^S) \frac{dw^l}{\partial \tau} + \frac{\xi}{\lambda} \frac{d\lambda}{d\tau} \int_0^{f^S} \xi \frac{\partial w^S}{\partial \xi} d\xi = 0 \quad (1.72)$$

A ce stade, il s'agit d'évaluer le dernier terme du membre de gauche. Pour ce faire, Voller et Beckermann supposent que le profil du solide dans le solide peut être évalué par un polynôme (voir partie I - 1) :

$$w^S = a(\tau) \xi^m + b(\tau) \quad (1.73)$$

Une intégration par partie donne alors :

$$\int_0^{f^S} \xi \frac{\partial w^S}{\partial \xi} d\xi = \frac{(f^S)^2}{m+1} \left[\frac{\partial w^S}{\partial \xi} \right]_{\xi=f^S} \quad (1.74)$$

En posant $\alpha^C = \frac{\xi}{\lambda} \frac{d\lambda}{d\tau} \frac{(f^S)^2}{m+1}$, l'équation (1.67) prend la forme suivante :

$$(\alpha + \alpha^C) \left[\frac{\partial w^S}{\partial \xi} \right]_{\xi=f^S} + (k-1) w^l \frac{df^S}{\partial \tau} + (1-f^S) \frac{dw^l}{\partial \tau} = 0 \quad (1.75)$$

- 1^{er} cas : si λ est constant au cours du temps (pas de maturation), $\alpha^C = 0$.
- 2^e cas : $\lambda = \lambda(t)$, les auteurs font alors les hypothèses supplémentaires suivantes :
 - 1) le taux de croissance est parabolique, d'où $f^S = (\tau)^{0.5}$
 - 2) la loi de maturation est donnée par : $\lambda = \lambda_f \tau^n$

il en découle $\alpha^C = \frac{n}{m+1}$; pour $n=1/3$ et $m=2,333$, $\alpha^C = 0,1$.

L'équation (1.68) permet de mettre en évidence deux effets antagonistes associés à la maturation via la quantité $\alpha + \alpha^C$ qui caractérise la rétro-diffusion :

- Au cours de la solidification, la taille de structure λ augmente, donc le nombre de Fourier α diminue : l'homogénéisation en soluté entre bras secondaires tend à être freinée ;
- la maturation s'accompagne d'une homogénéisation inhérente au phénomène puisque par rapport à l'analyse en domaine fixe, tout se passe comme si le nombre de Fourier était augmenté de la valeur α^C .

Le modèle de Voller et Beckermann suggère que la prise en compte de la maturation dans un modèle de microségrégation est simple puisqu'il suffit de remplacer le nombre de Fourier α par $\alpha^+ = \alpha + \alpha^C$. Ainsi, Won et Thomas [8] ont proposé un modèle analytique de microségrégation basé sur celui de Clyne et Kurz (voir I - 1.2.1) mais où $\alpha^{(1)}$ est remplacé par $\alpha^{(4)}$:

$$\alpha^{(4)} = \alpha^+ [1 - \exp(-\frac{1}{\alpha^+})] - 0.5 \exp(-\frac{1}{2\alpha^+}) \quad (1.76)$$

Yoo et Viskanta [37] ont développé une solution analytique pour décrire l'effet de la maturation sur la microségrégation en l'absence de rétro-diffusion. Si l'on exprime l'équation de conservation en soluté en coordonnées réelles x et non plus en coordonnées réduites comme dans (1.67), on obtient :

$$(k-1) w^1 \frac{ds}{dt} + (\lambda-s) \frac{dw^1}{dt} + D^s \left[\frac{\partial w^s}{\partial x} \right]_{x=s} + (w^1 - w^0) \frac{d\lambda}{dt} = 0 \quad (1.77)$$

(voir figure I-1 pour les notations)

Comme mentionné précédemment, l'analyse de Voller et Beckermann [35] a conduit à définir le terme α^C lié à l'homogénéisation inhérente au phénomène de maturation. Dans l'équation (1.75), l'analogue de ce terme est $(w^1 - w^0) \frac{d\lambda}{dt}$.

En supposant un taux de refroidissement constant et une loi de maturation analogue à celle de Voller et Beckermann, il vient :

$$f^s = \frac{1}{1-k} (1-wr^{-1}) - \frac{k}{(1-k)^2} wr^{-1/(1-k)} (wr-1)^{-n} F(wr, k, n) \quad (1.78)$$

avec $wr = w^1/w^0$ et $F(wr, k, n) = \int_1^{wr} \zeta^{-(1-2k)/(1-k)} (\zeta-1)^{n+1} d\zeta$.

Il apparaît que l'équation de Gulliver-Scheil est un cas particulier de l'équation (1.78). Surtout, quand f^s tend vers 1, w^1 tend vers une valeur finie selon l'équation (1.78), contrairement à la loi de Gulliver-Scheil. Cette observation est cohérente avec l'analyse menée par Voller et Beckermann qui ont conclu par une démarche numérique différente que la maturation s'accompagnait d'un effet d'homogénéisation. Dans le cas d'un diagramme binaire eutectique, la loi de Gulliver-Scheil prévoit que la phase eutectique se forme toujours en fin de solidification. L'application de la formule (1.78) permet d'aboutir à des conclusions plus nuancées. Andreas Mortensen [100] a construit à partir des mêmes hypothèses que Yoo et Viskanta une solution analytique dans les cas plan, axisymétrique et sphérique.

Comme le montrent les modèles précédents, les lois analytiques obtenues dépendent de la loi de maturation qui a été choisie. Voller [36] reprend son modèle analytique de microségrégation établie dans la référence [7] et propose la loi de maturation suivante :

$$\lambda_2 - (\lambda_2)^0 = C1 s \quad (1.79)$$

à l'aide de l'équation de Kirkwood [111], $(\lambda_2)_f = 9,4 t_f^{1/3} \mu\text{m}$, et en posant $(\lambda_2)^0 = C2 t_f^{1/n}$, Voller calibre C1 de manière à ce que le $(\lambda_2)_f$ soit compatible avec (1.79).

Avec les hypothèses faites précédemment, il établit la loi de microségrégation suivante :

$$f^s = \frac{F-1}{2\alpha^{(3)}k + FB - 1} \quad (1.80)$$

avec $F = \left[\frac{w^0 B - w^1 (k+B-1)}{(1-k)w^0} \right]^{2\alpha^{(3)}k + (B-1)/k + (B-1)}$,

B une constante.

Afin de déterminer la constante B, le modèle est comparé à la solution analytique obtenue par Mortensen dans le cas particulier où la diffusion dans le solide est nulle. L'auteur admet cependant qu'utiliser une expression linéaire de la fraction solide pour décrire la loi de maturation ne se justifie que dans la mesure où elle permet de trouver une solution analytique.

Roosz, et coll. [38] proposent un modèle numérique qui résout l'équation de la diffusion dans le solide et qui prend en compte la maturation dans le cas d'une géométrie plane à une dimension (figure I-19). En définissant le coefficient d'homogénéisation H comme suit :

$$H(t) = \frac{w^{\min} - w^{s/1}}{w^0 - w^{s/1}}$$

Où w^{\min} est le titre massique au centre de la dendrite au temps t, les calculs montrent que le coefficient H(mat) calculé en prenant en compte la maturation est plus élevé que celui trouvé sans maturation H. En moyenne :

$$H(\text{mat}) = H + 0,02$$

L'effet de la maturation reste donc limité et a pour effet d'augmenter l'homogénéisation dans le bras secondaire de dendrite, ce qui est cohérent avec ce qui a été dit précédemment.

I - 5. CONCLUSIONS

Les différents modèles de microségrégation présentés dans cette étude bibliographique se distinguent par la nature de leurs hypothèses, qui concernent la diffusion dans le solide ou dans le liquide, le nombre d'éléments que comporte l'alliage, la géométrie de la microstructure qui se développe, le nombre de phases mises en jeu au cours de la solidification, la maturation ou encore la surfusion. La classification de ces modèles proposée par les tableaux I-2 et I-3 met l'accent sur leur finalité. Les termes en gras indiquent les phénomènes physiques particulièrement visés par le modèle.

Dans le tableau I-2 figurent les modèles de microségrégation développés en système fermé et ne prenant pas en compte les phénomènes dus à la macroségrégation, tandis que le tableau I-3 regroupe les modèles de microségrégation destinés à être couplés avec un code de calcul macroscopique. Dans ce dernier cas et comme cela sera expliqué dans le chapitre 5, les modèles doivent être performants en terme de temps de calcul. C'est la raison pour laquelle les modèles du tableau I-2 sont majoritairement numériques tandis que ceux du tableau I-3 sont dans la plus grande partie analytiques ou semi-analytiques.

II - MODELISATION DE LA MICROSEGREGATION EN CROISSANCE DENDRITIQUE COLONNAIRE

L'étude bibliographique a permis de mettre en évidence les principales difficultés que pose la prédiction quantitative de la microségrégation dans un lingot, à savoir :

- La résolution de l'équation de la diffusion qui requiert la connaissance des coefficients de diffusion de chaque élément dans chaque phase, ainsi que des microstructures très complexes et des distances caractéristiques à l'échelle dendritique ;
- La prise en compte des transformations de phases en cours de solidification ;
- La détermination de quantités thermodynamiques qui nécessite, surtout pour des alliages multiconstitués, la connaissance du diagramme d'équilibre de phases correspondant ;
- La prise en compte du mouvement du liquide (dans le cadre de ce travail, le solide est supposé fixe) qui induit des modifications des propriétés physiques du mélange pâteux à l'échelle dendritique (les conditions de refroidissement ainsi que les teneurs moyennes en soluté, qui résultent respectivement du transport macroscopique de l'énergie et de la masse en soluté, sont différentes en chaque point du lingot).

L'objectif de ce chapitre est de présenter un modèle de microségrégation abordant ces différents problèmes.

Comme mentionné précédemment, la modélisation de la ségrégation dans un lingot est basée sur une approche multi-échelle permettant de découpler le traitement des phénomènes de transport diffusif et convectif. Concrètement, la diffusion est traitée au niveau du modèle de microségrégation tandis que la convection est traitée au niveau du code de macroségrégation. Ainsi, nous présenterons dans un premier temps le modèle en système fermé (prise en compte de la diffusion uniquement), puis en système ouvert.

II - 1. SPECIFICATION DU DOMAINE D'ETUDE DE LA MICROSEGREGATION

Il s'agit dans cette partie de définir un domaine microscopique qui soit représentatif du comportement de la zone pâteuse au cours de la solidification dendritique. Cette étape est essentielle puisqu'elle détermine la manière dont l'évolution microstructurale est modélisée et distingue deux types de morphologies définies ci-dessous. Elles seront désignées par la suite « morphologie simplifiée » et « morphologie complexe ». Quel que soit le type de morphologie adopté, la température est supposée uniforme dans le domaine d'étude de la microségrégation, ce qui a été amplement justifié dans la partie I-2.1. (hypothèse H1.1).

II - 1.1. MORPHOLOGIE SIMPLIFIEE

En première approximation, le domaine est supposé comporter une seule dimension caractéristique au regard de la diffusion, notée λ . Dans ce cas, l'étude de la microségrégation se réduit à un problème à une dimension. La coordonnée spatiale est notée r .

L'étude bibliographique a révélé que dans une structure dendritique, le choix de λ n'est pas évident en raison de la multiplicité des distances caractéristiques de la diffusion, dont les plus importantes sont λ_1 et λ_2 (voir I - 4).

Il en est de même du choix de la géométrie 1D à adopter. Le modèle a été développé pour les trois géométries suivantes : plane, axisymétrique ou sphérique. Certaines structures de solidification peuvent présenter des morphologies suffisamment simples pour être correctement décrites par l'une de ces trois géométries. Par exemple, les bras secondaires de dendrites bien développés ou les troncs primaires de cellules colonnaires peuvent être approchés par une géométrie axisymétrique. De même, les structures globulitiques typiques d'alliages fortement inoculés peuvent être décrites par une géométrie sphérique. En revanche, pour caractériser une structure dendritique, il est a priori difficile de savoir laquelle des géométries plane, axisymétrique ou sphérique est la plus adaptée. C'est la raison pour laquelle ce modèle de microségrégation a été qualifié de modèle à morphologie simplifiée, puisque le domaine de calcul est ici une simplification des microstructures dendritiques réelles.

Pendant la croissance péritectique, la phase de réaction telle qu'elle a été définie au paragraphe I - 3 est négligée et l'hypothèse H1.7 est adoptée : l'austénite γ forme une couche entre la ferrite δ et le liquide au cours du refroidissement.

Le domaine d'étude de la microségrégation dans le cas d'une morphologie simplifiée est représenté sur la figure II-1 dans deux configurations : en solidification primaire et pendant la transformation péritectique.

L'étude bibliographique a montré que le choix de la taille du système est lié au phénomène physique influant sur la microségrégation que l'on veut étudier.

Premier cas : $\lambda = \lambda_1/2$ (cas 1 sur la figure II-2). Ce choix est souvent adopté pour les modèles développés pour étudier la solidification rapide. Dans ce cas, la diffusion dans le liquide ne peut plus être supposée infinie et la surfusion aux pointes primaires de dendrites ne peut plus être négligée [29,30].

Dans le modèle à géométrie simplifiée, le calcul de la surfusion aux pointes primaires de dendrites à partir des valeurs du gradient thermique moyen \bar{G}_T et de la vitesse des pointes primaires U_{pp} est réalisé au moyen de l'algorithme développé par B. Appolaire [34] et présenté dans l'annexe 1 (partie A1.1). La surfusion est calculée uniquement dans le cas où la croissance de la pointe primaire est contrôlée par la diffusion et repose sur les relations établies par Bobadilla et coll. [39] (voir chapitre I).

Deuxième cas : $\lambda = \lambda_2/2$ (cas 2 sur la figure II-2). Ce choix est souvent adopté dans les modèles développés pour étudier la maturation. Contrairement au premier cas, λ est alors fonction du temps. L'étude de la maturation se fait à l'échelle des bras secondaires de dendrites. Par conséquent, et contrairement à l'étude de la surfusion aux pointes, il paraît raisonnable de supposer la diffusion dans le liquide infinie, hypothèse qui est faite par la plupart des modèles présentés dans le chapitre I traitant de la maturation.

H2.1 : dans le cas où la maturation est prise en compte, le modèle à morphologie simplifiée suppose que le titre massique dans le liquide est uniforme et que la maturation suit la loi de Mortensen généralisée aux alliages multiconstitués (équation 1.64). La limite de validité du modèle se situe à une fraction solide de 80%, fraction au-delà de laquelle la maturation est principalement influencée par la coalescence. Par conséquent :

- Si $g^s < 80\%$, la loi de maturation (1.64) s'applique ;
- Si $g^s > 80\%$, $\lambda_2 = \lambda_2(g^s = 80\%)$.

II - 1.1.1. Calcul des distances caractéristiques et des surfaces spécifiques

Les expressions des distances caractéristiques et des surfaces spécifiques ont été indiquées dans les tableaux II-1 et II-2 correspondant respectivement à la solidification primaire et à la transformation péritectique. Le paramètre géométrique N introduit a la signification suivante :

- si la géométrie est plane, $N = 0$
- si la géométrie est axisymétrique, $N = 1$
- si la géométrie est sphérique, $N = 2$

Les différents symboles sont indiqués dans la nomenclature. Dans le cas de la transformation péritectique, les expressions des grandeurs morphologiques s'expliquent par l'hypothèse H1.7.

II - 1.2. MORPHOLOGIE COMPLEXE

La partie II - 1.1 a bien insisté sur les limites du modèle à morphologie simplifié dans la mesure où la morphologie des dendrites est une structure fortement anisotrope comportant plusieurs distances caractéristiques, à savoir λ_1 et λ_2 . Le but de cette partie est d'intégrer dans un même modèle de microségrégation dédié à la croissance dendritique colonnaire les deux principaux cas exposés dans la partie précédente.

La revue bibliographique a révélé que des approches inspirées de la croissance équiaxe ont permis de prendre en compte l'aspect multi-dimensionnel du problème (voir I - 4). Ces méthodes ont donc été généralisées à la croissance colonnaire.

La figure II-4 montre la définition du nouveau système représentatif à géométrie complexe inspirée de l'observation des coupes longitudinales et transversales d'une dendrite obtenue par Addad [88] à partir d'un barreau de TSD de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. Elle introduit une nouvelle surface par rapport au cas précédent appelée enveloppe : celle-ci est définie comme étant la surface joignant les extrémités des pointes secondaires de dendrites. Elle permet ainsi de distinguer un liquide intradendritique (situé entre les bras secondaires de dendrites) et un liquide extradendritique (situé à l'extérieur de l'enveloppe). Dans cette modélisation, les phénomènes physiques relatifs au cas 1 et au cas 2 de la partie II - 1.1 sont respectivement associés au liquide extradendritique et au liquide intradendritique.

H2.2 : le titre massique dans le liquide intradendritique est supposé uniforme.

A ce stade, la grandeur $g_{i,s}$ est introduite :

$$g_{i,s} = \frac{V^s}{V^{env}} \quad (2.1)$$

Elle désigne la fraction volumique interne de solide dans l'enveloppe:

- Plus $g_{i;s}$ tend vers 0, plus la structure est dendritique ;
- Plus $g_{i;s}$ tend vers 1, plus la structure est compacte.

De même, on définit $g_{i;\delta}$ et $g_{i;\delta+\gamma}$ au cours de la transformation péritectique de la manière suivante :

$$g_{i;\delta} = \frac{V^\delta}{V^{env}} \quad (2.2)$$

$$g_{i;\delta+\gamma} = \frac{V^\delta + V^\gamma}{V^{env}} \quad (2.3)$$

H2.3 : dans le cas où la maturation est prise en compte, la même loi de maturation que dans H2.1 est appliquée mais la limite de validité se situe à une **fraction interne de solide** de 80%. Par conséquent :

- Si $g_{i;s} < 80\%$, la loi de maturation (1.64) s'applique ;
- Si $g_{i;s} > 80\%$, $\lambda_2 = \lambda_2(g_{i;s} = 80\%)$.

II - 1.2.1. Modèle géométrique de l'enveloppe pour la croissance colonnaire

H2.4 : les dendrites primaires sont supposées former un réseau de base carrée dont une cellule élémentaire a été représentée sur la figure II-4.

Cette géométrie a été adoptée pour sa simplicité. D'autres choix auraient bien sûr été possibles et un certain nombre d'entre eux ont été explorés par Ueshima et coll. [24] ou Matsumiya et coll. [91], comme celui d'une base hexagonale par exemple.

Chaque côté de ce carré a pour dimension λ_1 . Les pointes secondaires de dendrites croissent le long des diagonales de ce carré. La longueur d'une pointe secondaire par rapport au coeur de la dendrite primaire est notée l_1 . L'enveloppe est elle-aussi supposée de section carrée et homothétique de la cellule élémentaire.

Sous ces hypothèses, les relations suivantes peuvent être facilement établies :

$$V^{env} = 2 l_1^2 H \text{ d'où } g^{env} = 2 (l_1/\lambda_1)^2 \quad (2.4)$$

$$S^{env} = 4 \sqrt{2} l_1 \text{ d'où } S_v^{env} = 4 \sqrt{2} l_1/\lambda_1^2 \quad (2.5)$$

A ce stade, on définit le rayon équivalent R_{eq} du cylindre à section carrée que constitue l'enveloppe comme le rayon du cylindre à section circulaire occupant le même volume. Il en découle :

$$R_{eq} = \sqrt{2/\pi} l_1 \quad (2.6)$$

En différentiant la relation (2.1) par rapport au temps t , il vient :

$$\frac{d}{dt}(g^{env}) = (S_v^{env}/\sqrt{2}) \frac{d}{dt}(l_1) = (S_v^{env}/\sqrt{2}) U_{ps} \quad (2.7)$$

où U_{ps} est la vitesse des pointes secondaires de dendrites. Ce modèle de croissance suppose donc la détermination de U_{ps} .

II - 1.2.2. Calcul de la vitesse des pointes secondaires de dendrites

La partie I - 1.2.2.1 a montré comment pouvait être calculée la vitesse de la pointe primaire de dendrite contrôlée par diffusion chimique dans le cas d'un alliage multiconstitué. Dans cette modélisation, la composition chimique loin devant les pointes primaires demeurent égales à la composition nominale de l'alliage notée w_i^0 . Pour calculer la vitesse des pointes secondaires de dendrites, le même formalisme a été adopté. En revanche, la composition chimique loin devant les pointes secondaires n'est pas constante et égale à la composition nominale w_i^0 . Pour calculer U_{ps} , Rappaz et Thévoz [61] et Rappaz et Boettinger [64] remplacent w_i^0 par le titre massique du liquide le long de la frontière extérieure du domaine représentatif de la microségrégation, noté w_i^{ext} , tandis que Wang et Beckermann [11,12] remplacent w_i^0 par le titre massique moyen dans le liquide extradendritique \bar{w}_i^{le} . Cependant, que ce soit w_i^{ext} ou \bar{w}_i^{le} , le titre massique choisi pour remplacer w_i^0 évolue au cours de la solidification en raison de l'enrichissement du liquide extradendritique. Dans le modèle, les expressions (1.24) à (1.29) sont appliquées pour calculer U_{ps} , en considérant que le gradient thermique est nul (corollaire de l'hypothèse H1.1) et que le titre massique «vu» par les pointes secondaires de dendrites n'est pas w_i^0 , mais \bar{w}_i^{le} , d'où les nouvelles expressions de la sursaturation réduite et du nombre de Péclet chimique associé à l'élément d'alliage i , de la surfusion ΔT et du rayon à la pointe de dendrites secondaires :

$$\Omega_i = \frac{w_i^{l/s} - \bar{w}_i^{le}}{w_i^{l/s} (1 - k_i)} \quad (2.8)$$

$$Pe_i = \frac{\Gamma_{ps} U_{ps}}{2D_i} \quad (2.9)$$

$$\Omega_i = Iv(Pe_i) \quad (2.10)$$

$$\Delta T = \sum_i m_i (\bar{w}_i^{le} - w_i^{l/s}) = \sum_i m_i \bar{w}_i^{le} \left(1 - \frac{1}{1 - (1 - k_i) Iv(Pe_i)}\right) \quad (2.11)$$

$$r_{ps}^2 = \frac{\Gamma}{\sigma} \left\{ \sum_i \frac{U_{ps}}{D_i} m_i (k_i - 1) w_i^{l/s} \xi(Pe_i) \right\}^{-1} \quad (2.12)$$

$$\text{avec } \xi(Pe_i) = \frac{Pe_i - (Pe_i^2 + 4\pi^2)^{1/2}}{Pe_i - 2k_i Pe_i - (Pe_i^2 + 4\pi^2)^{1/2}}$$

Dans l'annexe 1 est présenté l'algorithme de calcul de U_{ps} . Même si les équations constitutives sont formellement les mêmes, cet algorithme diffère de celui présenté pour calculer la surfusion aux pointes primaires de dendrites à partir de U_{pp} et de G_T . Comme cela sera montré dans la partie II - 2, \bar{w}_i^{le} est calculé par un modèle de diffusion et est donc une valeur d'entrée du modèle permettant de calculer U_{ps} .

Pendant la transformation péritectique, c'est l'austénite qui est supposée être en contact avec le liquide, les valeurs de m_i et k_i sont donc prises relativement à la nappe de liquidus austénitique et $\Gamma = \Gamma(\gamma)$ dans les expressions (2.5) à (2.9).

II - 1.2.3. Calcul des distances caractéristiques et des surfaces spécifiques

II - 1.2.3.1. Solidification primaire

La partie I - 4 a montré l'intérêt du mode de calcul des grandeurs morphologiques dans le modèle d'Appolaire [34] par rapport à celui de Wang et Beckermann [11,12]. En solidification primaire, ce sont donc les expressions établies par Appolaire qui ont été adoptées dans ce modèle et qui sont rappelées ici :

$$r^s = (\lambda_2/2) g_{i;s}^{1/2} (1-g_{i;s}^p) + g_{i;s}^p R_{eq} \quad (2.13)$$

$$S_v^{s/l} = (4/\lambda_2) g_{i;s}^{1/2} g^{env} (1-g_{i;s}^p) + g_{i;s}^p S_v^{env} \quad (2.14)$$

p est un exposant strictement positif pris arbitrairement égal à 10.

L'influence de $g_{i;s}$ sur $d^s = 2r^s$ est représentée sur la figure II-5 pour une taille d'enveloppe donnée par $l_1 = 2\lambda_2$. La courbe est croissante mais non linéaire. L'augmentation de d^s avec $g_{i;s}$ est relativement modérée pour $g_{i;s} < 80\%$ puis s'accroît fortement pour $g_{i;s} > 80\%$.

Pour une enveloppe donnée caractérisée par la donnée de l_1 qui reste fixe et donc pour une surface d'enveloppe donnée, la figure II-6 montre une évolution non monotone de $S^{s/l}$, que l'on peut diviser en 2 régimes :

- **Régime I** : pour $g_{i;s} < 80\%$, c'est-à-dire jusqu'à un certain niveau de compaction, $S^{s/l}$ augmente avec la fraction interne de solide et atteint sa valeur maximale $(S^{s/l})_{max} = 2,4 S^{env}$.
- **Régime II** : pour $g_{i;s} > 80\%$, $S^{s/l}$ diminue lorsque la fraction interne de solide augmente et atteint S^{env} pour $g_{i;s} = 1$.

II - 1.2.3.2. Généralisation à la transformation péritectique

La coupe longitudinale de dendrite représentée sur la figure II-3a) montre que pendant la transformation péritectique, la structure de solidification peut être décrite comme la superposition d'un réseau dendritique ferritique δ et d'un réseau dendritique austénitique γ . La structure dendritique ferritique y est beaucoup plus déchetée que la structure austénitique qui apparaît pratiquement compacte, si bien que chacun de ces réseaux peut être caractérisé par des valeurs différentes de λ_2 , respectivement notées $[\lambda_2]_\delta$ et $[\lambda_2]_\gamma$.

Les relations (2.10) et (2.11) ont été généralisées en introduisant les grandeurs $g_{i;\delta}$ et $g_{i;\delta+\gamma}$ ainsi que $[\lambda_2]_\delta$ et $[\lambda_2]_\gamma$:

$$r^\delta = [\lambda_2]_\delta/2 g_{i;\delta}^{1/2} (1-g_{i;\delta}^p) + g_{i;\delta}^p R_{eq} \quad (2.15)$$

$$r^\gamma = [\lambda_2]_\gamma/2 g_{i;\delta+\gamma}^{1/2} (1-g_{i;\delta+\gamma}^p) + g_{i;\delta+\gamma}^p R_{eq} \quad (2.16)$$

$$S_v^{\delta/\gamma} = (4/[\lambda_2]_\delta) g_{i;\delta}^{1/2} g^{env} (1-g_{i;\delta}^p) + g_{i;\delta}^p S_v^{env} \quad (2.17)$$

$$S_v^{\gamma/l} = (4/[\lambda_2]_\gamma) g_{i;\delta+\gamma}^{1/2} g^{env} (1-g_{i;\delta+\gamma}^p) + g_{i;\delta+\gamma}^p S_v^{env} \quad (2.18)$$

II - 2. ÉQUATIONS CONSTITUTIVES DU MODELE DE MICROSEGREGATION

II - 2.1. ÉQUILIBRE THERMODYNAMIQUE INTERFACIAL

Les hypothèses H1.1 ainsi que H1.2 sont adoptées. Il en découle ainsi la relation suivante pour toute interface ϕ_1/ϕ_2 présente dans le volume d'étude de la microségrégation :

$$dT = \sum_i m_i^{\phi_1/\phi_2} dw_i^{\phi_1/\phi_2} \quad (2.19)$$

L'application de (2.19) donne :

- En solidification primaire :

$$dT = \sum_i m_i^{s/l} dw_i^{s/l} \quad (2.20)$$

- Pendant la transformation péritectique, les interfaces δ/γ et γ/l évoluent simultanément dans le volume d'étude d'où :

$$dT = \sum_i m_i^{l/\gamma} dw_i^{l/\gamma} = \sum_i m_i^{\gamma/\delta} dw_i^{\gamma/\delta} \quad (2.21)$$

II - 2.2. ÉQUATION CARACTERISTIQUE DU REFROIDISSEMENT

Le refroidissement du domaine d'étude de la microségrégation peut être caractérisé par deux données différentes :

II - 2.2.1. L'évolution temporelle de la température $T(t)$

C'est par exemple le cas dans les expériences de solidification dirigée. En effet, l'intérêt de ce dispositif est de pouvoir faire varier indépendamment le gradient thermique G_T dans la zone pâteuse et la vitesse du front V , ce qui permet d'accéder à la vitesse de refroidissement \dot{T} par la relation :

$$\dot{T} = G_T V \quad (2.22)$$

Dans ce cas, dT est une valeur d'entrée du modèle et l'équation (2.19) est directement utilisable.

II - 2.2.2. L'évolution temporelle de l'enthalpie spécifique moyenne $\bar{h}(t)$

C'est le cas dans l'algorithme de couplage micro-macro décrit dans le chapitre V, où l'équation de conservation de l'énergie est résolue par la méthode enthalpique.

La nouvelle équation caractéristique du refroidissement peut être établie à partir de la relation entre l'enthalpie spécifique moyenne \bar{h} et les enthalpies spécifiques h^{ϕ} des différentes phases ϕ présentes dans le volume d'étude :

$$\bar{h} = \sum_{\varphi} f^{\varphi} h^{\varphi} \quad (2.23)$$

En différentiant,

$$d\bar{h} = \sum_{\varphi} [h^{\varphi}]^t df^{\varphi} + \sum_{\varphi} [f^{\varphi}]^t dh^{\varphi} \quad (2.24)$$

Pour calculer dh^{φ} , l'hypothèse supplémentaire suivante est adoptée :

H2.5 : l'enthalpie massique h^{φ} est supposée uniforme dans chaque phase φ . Ainsi, si $\varphi = \varphi 1$, alors $h^{\varphi} = h^{\varphi 1}(T, w_i^{\varphi 1/\varphi 2})$.

Sous H2.2, il vient :

$$dh^{\varphi 1} = \frac{\partial h^{\varphi 1}}{\partial T} dT + \sum_i \frac{\partial h^{\varphi 1}}{\partial w_i^{\varphi 1/\varphi 2}} dw_i^{\varphi 1/\varphi 2} \quad (2.25)$$

En reportant (2.19) dans (2.25), on obtient :

$$dh^{\varphi 1} = \sum_i \left(m_i^{\varphi 1/\varphi 2} \frac{\partial h^{\varphi 1}}{\partial T} + \frac{\partial h^{\varphi 1}}{\partial w_i^{\varphi 1/\varphi 2}} \right) dw_i^{\varphi 1/\varphi 2} = \sum_i h_i^{\varphi 1'} dw_i^{\varphi 1/\varphi 2} \quad (2.26)$$

Finalement, en reportant (2.26) dans (2.24), on obtient la nouvelle équation caractéristique du refroidissement :

$$d\bar{h} = \sum_{\varphi} [h^{\varphi}]^t df^{\varphi} + \sum_{\varphi} [f^{\varphi}]^t \sum_i h_i^{\varphi 1'} dw_i^{\varphi 1/\varphi 2} \quad (2.27)$$

$h_i^{\varphi 1'}$ est une quantité thermodynamique pouvant être directement calculée par le couplage avec un logiciel de calcul d'équilibre thermodynamique (voir II - 3). Les seules inconnues de cette équation sont donc df^{φ} ainsi que $dw_i^{\varphi 1/\varphi 2}$.

II - 2.3. BILAN DE CONSERVATION DE MASSE EN SOLUTE A L'INTERFACE ENTRE DEUX PHASES $\varphi 1/\varphi 2$

Ces bilans ont été établis en faisant les hypothèses suivantes :

H2.6 : au sein d'une phase φ , le coefficient de diffusion D_i^{φ} de chaque soluté i et la densité ρ^{φ} sont uniformes. Le coefficient de diffusion D_i^{φ} du soluté i dans la phase φ suit la loi d'Arrhénius suivante :

$$D_i^{\varphi} = D_i^{\varphi 0} \exp\left(-\frac{Q_i^{\varphi}}{RT}\right) \quad (2.28)$$

$D_i^{\varphi 0}$ est un facteur de fréquence préexponentiel (m^2/s), Q_i^{φ} est l'énergie molaire d'activation (J/mol), R est la constante des gaz parfaits ($R=8.314J.mol^{-1}.K^{-1}$).

La notation indicielle i a été abandonnée dans cette partie pour alléger les expressions obtenues. Cependant, elles sont valables pour chaque soluté i . Dans l'annexe 2 est établi le bilan de conservation de la masse de soluté à l'interface φ_1/φ_2 :

$$(1-k^{\varphi_1/\varphi_2})w^{\varphi_1/\varphi_2}\Gamma_{\varphi_1/\varphi_2} = S^{\varphi_1/\varphi_2}(J^{\varphi_1/\varphi_2} + J^{\varphi_2/\varphi_1}) \quad (2.29)$$

(voir l'annexe 2 et la nomenclature pour les notations)

L'application de l'équation (2.29) permet d'écrire :

- En solidification primaire à l'interface s/l :

$$(1-k^{l/s})w^{l/s}\frac{\partial}{\partial t}(\rho^s g^s) = S^{s/l}(J^{s/l} + J^{l/s}) \quad (2.30)$$

- Pendant la transformation péritectique, aux interfaces δ/γ et γ/l :

$$(1-k^{\delta/\gamma})w^{\gamma/\delta}\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta) = S^{\delta/\gamma}(J^{\delta/\gamma} + J^{\gamma/\delta}) \quad (2.31)$$

$$(1-k^{l/\gamma})w^{l/\gamma}\left(\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta)\right) = S^{\gamma/l}(J^{\gamma/l} + J^{l/\gamma}) \quad (2.32)$$

Comme le montre la partie II - 1, les expressions des surfaces spécifiques dépendent du type de morphologie adoptée dans le modèle. A ce stade, les flux massiques diffusifs moyens aux interfaces sont des inconnues.

II - 2.4. BILAN DE CONSERVATION DE LA MASSE EN SOLUTE DANS LA PHASE φ

H2.7 : le solide est immobile : les phénomènes tels que le mouvement des grains dans un lingot n'est pas pris en compte.

II - 2.4.1. La phase est immobile (s , δ ou γ)

Selon l'hypothèse H2.7, le bilan de conservation de masse en soluté dans la phase φ supposée immobile prend la forme de la seconde loi de Fick représentée par l'équation (1.4).

II - 2.4.1.1. Cas d'une morphologie simplifiée

Pour les géométries plane, axisymétrique ou sphérique, l'équation de la diffusion dans la phase φ prend la forme simplifiée suivante :
$$\frac{\partial(\rho^\varphi w^\varphi)}{\partial t} = \frac{1}{r^N} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^N \rho^\varphi D \frac{\partial w^\varphi}{\partial r} \right) \quad (2.33)$$

Avec

- $N=0$ en géométrie plane
- $N=1$ en géométrie axisymétrique
- $N=2$ en géométrie sphérique

Pour traiter l'équation (2.33), la transformation de Landau est appliquée. Elle consiste à effectuer le changement de coordonnées indiqué dans le tableau A3-1 et visualisé sur la figure II-7. Dans le

nouveau repère, les interfaces ont des coordonnées fixes et ζ , η et χ sont toujours comprises entre 0 et 1. Si on pose $V(\xi) = \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} \right]_r$, où $\xi = \zeta$, η ou χ , l'équation (2.33) devient dans ces nouvelles coordonnées, au terme de manipulations mathématiques exposées dans l'annexe 3 :

$$r^N \frac{\partial(\rho^\phi w^\phi)}{\partial t} + \frac{\partial(r^N \rho^\phi w^\phi V(\xi))}{\partial \xi} = \frac{1}{X^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(r^N \rho^\phi D^\phi \frac{\partial w^\phi}{\partial \xi} \right) + w^\phi \frac{\partial(r^N \rho^\phi V(\xi))}{\partial \xi} \quad (2.34)$$

X est la taille de la phase considérée et est indiquée dans le tableau A3-2.

Le mode de discrétisation de l'expression (2.34) est basé sur la méthode des volumes finis [58] et est exposé en détail dans l'annexe 3. La signification physique des différents termes de l'équation (2.34) apparaît plus clairement une fois cette équation discrétisée. Cette discrétisation suppose la définition d'un maillage microscopique. Dans l'approche de Landau, celui-ci est attaché à chacune des phases, donc évolue au cours du temps. En particulier, chaque volume élémentaire Vol_p du maillage varie avec les fractions volumiques des différentes phases. La figure II-7a) et II-7b) donne une représentation d'un tel maillage. Le nombre de mailles microscopiques dans le solide 1 (solide primaire), le solide 2 (austénite qui se forme au cours de la transformation péritectique) et le liquide est respectivement noté NM1, NM2 et NML dans la suite de ce travail.

II - 2.4.1.2. Généralisation de l'approche de Landau au cas d'une morphologie complexe

Dans ce cas, la forme simplifiée (2.33) de la seconde loi de Fick n'est plus exploitable et il faut intégrer celle-ci dans sa forme la plus générale sur chaque volume élémentaire Vol_p du maillage microscopique :

$$\int_{Vol_p} \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} dV = - \int_{Vol_p} \nabla J dV \quad (2.35)$$

Dans ce cas-là, l'approche de Landau a également été adoptée, c'est-à-dire que le maillage microscopique adopté est attaché à chacune des phases. Par conséquent, dans l'intégration (2.35), il faut tenir compte de la variation temporelle de Vol_p au cours de la solidification. La forme discrétisée de (2.35) est donnée dans l'annexe 3 et est une généralisation de la forme discrétisée établie à partir de (2.34).

II - 2.4.2. La phase est mobile (liquide)

II - 2.4.2.1. Le titre massique est uniforme dans la phase (liquide intradendritique)

Si le liquide en contact avec les phases solides est intradendritique, dans lequel la composition en soluté est supposée uniforme, alors $J^{l/s}$ est une forme indéterminée. Les équations (2.30) et (2.32) ne sont donc pas utilisables et sont remplacées par le bilan de masse de soluté dans le liquide intradendritique établi dans l'annexe 2 en présence ou non de liquide extradendritique.

Bilan de masse du soluté dans le liquide intradendritique sans liquide extradendritique :

$$\rho^{li} g^{li} \frac{\partial(w^{li})}{\partial t} - w^{li} \vec{\nabla}(\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle_{li}) + \vec{\nabla}(\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle_{li} w^{li}) = - S_v^{s/li} J^{s/li} + (w^{s/li} - w^{li/s}) \Gamma_{s/li} \quad (2.36)$$

Bilan de masse du soluté dans le liquide intradendritique en présence de liquide extradendritique :

$$\rho^{li} g^{li} \frac{\partial}{\partial t} (w^{li}) - w^{li} \vec{\nabla} (\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle^{li}) + \vec{\nabla} (\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle^{li} w^{li}) = - S_v^{s/li} \bar{J}^{s/li} + (w^{s/li} - w^{li/s}) \Gamma_{s/li} + S_v^{li/e} \bar{J}^{le/li} \quad (2.37)$$

Le terme $- w^{li} \vec{\nabla} (\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle^{li}) + \vec{\nabla} (\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle^{li} w^{li})$ est un terme source fourni par la résolution de la macroségrégation et sera dans la suite de ce travail désigné par Src^{li} .

II - 2.4.2.2. Le titre massique est non uniforme dans la phase (liquide extradendritique)

Dans ce cas-là, les méthodes de résolution de l'équation de la diffusion présentées dans les parties II - 2.4.1.1 et II - 2.4.1.2 (suivant le type de morphologie adoptée) sont appliquées au liquide extradendritique. L'apport de soluté dû au transport de liquide est traité comme un terme source supplémentaire dans l'équation discrétisée (voir annexe 3).

II - 2.5. PRISE EN COMPTE DE LA MATURATION

Le but de cette partie est de montrer comment la prise en compte de la maturation modifie le bilan massique de soluté dans le liquide intradendritique dont il est rappelé que la composition en soluté est supposée uniforme.

II - 2.5.1. Bilan de masse de soluté dans le liquide intradendritique sans liquide extradendritique

Dans la partie I - 4.3.2 a été exprimé le bilan de conservation de masse en soluté dans un domaine de microségrégation de taille caractéristique λ qui varie au cours du temps sous les hypothèses simplificatrices suivantes :

- Seules la phase solide s et la phase liquide l sont considérées dans le volume d'étude ;
- Le titre massique en soluté dans le liquide w^l est uniforme ;
- Le système est fermé ;
- La géométrie du domaine est plane ;
- Les densités des différentes phases sont supposées égales.

Il vient :

$$(k-1) w^l \frac{ds}{dt} + (\lambda-s) \frac{dw^l}{dt} + D^s \left[\frac{\partial w^s}{\partial x} \right]_{x=s} + (w^l - w^0) \frac{d\lambda}{dt} = 0 \quad (1.75)$$

Où s repère la position de l'interface s/l .

Comme mentionné dans l'étude bibliographique, la prise en compte de la maturation induit la présence du terme supplémentaire $(w^l - w^0) \frac{d\lambda}{dt}$ dans l'équation (1.75). En divisant (1.75) par $\lambda^{t+\delta t}$, il vient :

$$\begin{aligned} [(k-1) w^l]^t \frac{[s]^{t+\delta t} - [s]^t}{\lambda^{t+\delta t} dt} + (\lambda)^t \frac{[w^l]^{t+\delta t} - [w^l]^t}{\lambda^{t+\delta t} dt} \\ + \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} D^s \left[\frac{\partial w^s}{\partial x} \right]_{x=s} + (w^l - w^0) \frac{d\lambda}{dt} \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} = 0 \end{aligned} \quad (2.38)$$

Ce qui donne en terme de fraction volumique de phases :

$$[(k-1) w^l]^t \left[g^{sl}{}^{t+\delta t} - g^{sl}{}^t \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right] \frac{1}{dt} + g^{ll}{}^t \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \frac{[w^{ll}{}^{t+\delta t} - w^{ll}{}^t]}{dt} + \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} D^s \left[\frac{\partial w^s}{\partial x} \right]_{x=s} + (w^l - w^0) \frac{d\lambda}{dt} \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} = 0 \quad (2.39)$$

Ou encore

$$[(k-1) w^l]^t \left[g^{sl}{}^{t+\delta t} - (g^{sl}{}^t)_{\text{reinit}} \right] \frac{1}{dt} + (g^{ll}{}^t)_{\text{reinit}} \frac{[w^{ll}{}^{t+\delta t} - w^{ll}{}^t]}{dt} + \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} D^s \left[\frac{\partial w^s}{\partial x} \right]_{x=s} + (w^l - w^0) g^{\text{mat}} = 0 \quad (2.40)$$

Avec :

$$(g^{sl}{}^t)_{\text{reinit}} = g^{sl}{}^t \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \quad (2.41)$$

$$(g^{ll}{}^t)_{\text{reinit}} = g^{ll}{}^t \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \quad (2.42)$$

$$g^{\text{mat}} = \frac{d\lambda}{dt} \frac{1}{\lambda^{t+\delta t}} \quad (2.43)$$

En généralisant cette approche à notre modèle, le bilan de masse du soluté dans le liquide intradendritique s'exprime de la manière suivante :

$$\rho^{\text{li}} (g^{\text{li}}{}^t)_{\text{reinit}} \frac{[w^{\text{li}}{}^{t+\delta t} - w^{\text{li}}{}^t]}{dt} + S_{\text{rc}}^{\text{li}} = - S_{\text{v}}^{s/\text{li}} \bar{J}^{s/\text{li}} + (w^{s/\text{li}} - w^{\text{li}/s}) \rho^s \left[g^{sl}{}^{t+\delta t} - (g^{sl}{}^t)_{\text{reinit}} \right] \frac{1}{dt} + (\rho^{\text{li}} w^{\text{li}} - \bar{\rho} \bar{w}) g^{\text{mat}} \quad (2.44)$$

Numériquement, la prise en compte de la maturation peut donc être traitée comme suit : à partir de la connaissance de λ^t et de $\lambda^{t+\delta t}$ fournies par la loi de maturation, les fractions volumiques des phases en présence sont réinitialisées à l'aide de (2.41) et (2.42) tandis que g^{mat} est calculé par (2.43). Cependant, ces formules ne sont valables que pour une géométrie plane. Les formules de réinitialisation pour les autres types de géométrie sont données dans le tableau II-5 et généralisées à la transformation péritectique dans le tableau II-6.

En fait, cette démarche revient à dissocier les différents phénomènes ayant lieu entre les bras secondaires de dendrites, à savoir :

- La maturation dont il a été montré dans le chapitre I qu'elle correspondait en fait à une refusion de bras secondaires plus petits ; cette refusion est traitée numériquement par la réinitialisation des fractions volumiques de phase.
- La solidification dont le déroulement est donné partiellement par la résolution de l'équation (2.44).

II - 2.5.2. En présence de liquide extradendritique

Le même raisonnement est appliqué non pas au volume entier du domaine de la microségrégation, mais seulement à l'enveloppe d'où :

$$\rho^{li} (g^{li})^{reinit} \frac{[w^{li}]^{t+\delta t} - w^{li}]^t}{dt} + Src^{li} = - S_{\nu}^{s/li} \bar{J}^{s/li} + S_{\nu}^{li/e} \bar{J}^{li/e} + (w^{s/li} - w^{li/s}) \rho^s [g^s]^{t+\delta t} - (g^s)^{reinit} \frac{1}{dt} + (\rho^{li} w^{li} - \rho^{env} w^{env}) g^{mat} \quad (2.45)$$

Les formules de réinitialisation sont données dans le tableau II-5 et II-6.

II - 3. PRISE EN COMPTE DES EQUILIBRES THERMODYNAMIQUES ENTRE PHASES CALCULES PAR THERMO-CALC DANS LE CALCUL DE MICROSEGREGATION

L'étude bibliographique a révélé plusieurs moyens d'exploiter le logiciel de calcul d'équilibre thermodynamique Thermo-Calc :

- l'appel direct de Thermo-Calc dans le programme de microségrégation via l'interface TQ ;
- l'utilisation de Thermo-Calc pour générer des fichiers de données thermodynamiques. Ces fichiers sont ensuite traités comme de simples fichiers de données par le modèle de microségrégation (**approche tabulaire**).

Seule la deuxième méthode a été testée dans le cadre de ce travail pour des raisons de gain de temps de calcul soulignées dans la partie I - 2.5.

Dans le présent travail, le modèle est appliqué aux aciers, dont le diagramme d'équilibre des phases peut comporter une réaction péritectique. Par conséquent, les équilibres suivants ont été considérés : ferrite/liquide, austénite/liquide et ferrite/austénite. Pour un système à n constituants, une grille de tabulation est établie pour chaque équilibre ϕ_1/ϕ_2 ($\phi_1/\phi_2 = l/\delta$, l/γ ou γ/δ), et chaque point de cette grille est défini par ses coordonnées, qui sont les titres massiques de chaque soluté ($w_1^{\phi_1}, w_2^{\phi_1}, \dots, w_{n-1}^{\phi_1}$). Un exemple d'une telle grille est représenté sur la figure II-8 pour le système ternaire Fe-Ni-C. La finesse d'une telle grille est caractérisée par le paramètre $ndiv(i)$, qui indique le nombre de graduations selon chaque axe du diagramme des phases pour chaque soluté i. Sur la figure II-8, $ndiv(carbone) = ndiv(nickel) = 11$. Le nombre de points que comporte la grille est donc $\prod_i ndiv(i)$.

A l'aide de Thermo-Calc, les grandeurs thermodynamiques suivantes sont déterminées pour chaque point de la grille et pour chaque équilibre thermodynamique ϕ_1/ϕ_2 :

- la température de liquidus $T_{liq}(w_1^l, w_2^l, \dots, w_{n-1}^l)$ si $\phi_1/\phi_2 = l/\delta$ ou l/γ ;
- la température de transus austénitique $T_{sol}(w_1^\gamma, w_2^\gamma, \dots, w_{n-1}^\gamma)$ si $\phi_1/\phi_2 = \gamma/\delta$;

(Après la détermination du champ de température, il est possible d'estimer la pente locale $m_i^{\phi_1/\phi_2}$ de la surface d'équilibre ϕ_1/ϕ_2 pour chaque soluté i)

- Les coefficients de partage relatifs à chaque soluté i, $k_i^{\phi_1/\phi_2}(w_1^{\phi_1}, w_2^{\phi_1}, \dots, w_{n-1}^{\phi_1})$;
- Les enthalpies h^ϕ de la phase ϕ

(Après la détermination du champ h^{ϕ_1} , il est possible d'estimer la pente locale $h_i^{\phi_1}$ de la surface d'équilibre ϕ_1/ϕ_2 pour chaque soluté i)

Les valeurs de ces grandeurs thermodynamiques sont stockées dans des fichiers de données avant de commencer le calcul de microségrégation en tant que tel. La forme du fichier de données est

représentée par le tableau II-7. Pour chaque équilibre, un fichier de $2(n-1) + 3$ colonnes et de $\prod_i \text{ndiv}(i)$ lignes est généré par Thermo-Calc. Ensuite, à partir de ces fichiers, les données thermodynamiques pour n'importe quel point $(w_1^{\phi 1}, w_2^{\phi 1}, \dots, w_{n-1}^{\phi 1})$ peuvent être calculées par une interpolation linéaire d'ordre $(n-1)$.

A titre d'illustration, des fichiers de données thermodynamiques relatifs aux équilibres l/δ et l/γ ont été générés pour le système Fe-Ni-C dans le coin riche en fer. Les bornes et le nombre de graduations de la grille de tabulation relatifs à chaque soluté sont spécifiés dans le tableau II-8. A partir de ces fichiers de données, il est aisé à l'aide d'un logiciel de représentation 3D de visualiser sur la figure II-9 les nappes de liquidus ferritique et austénitique. Sur cette figure, la ligne monovariante apparaît comme l'intersection des deux nappes de liquidus correspondant aux deux équilibres bivariants l/δ et l/γ . La ligne monovariante peut alors s'interpréter comme la délimitation entre deux zones du plan (w_c, w_{Ni}) :

- Si (w_c^0, w_{Ni}^0) appartient à la région I, la nappe de liquidus ferritique se situe au-dessus de la nappe de liquidus austénitique et l'alliage se solidifie en ferrite ;
- Si (w_c^0, w_{Ni}^0) appartient à la région II, la nappe de liquidus ferritique se situe au-dessous de la nappe de liquidus austénitique et l'alliage se solidifie en austénite.

La partie I - 1.2.2.1 a cependant bien montré que la surfusion aux pointes primaires de dendrites peut remettre en cause ces conclusions.

II - 4. ALGORITHME

L'algorithme de calcul de l'évolution de la microségrégation au cours de la solidification est dans un premier temps présenté dans le cas d'une morphologie simplifiée où l'équation de la diffusion est résolue dans toutes les phases. Il peut se diviser en 5 séquences :

Séquence 1 : calcul des grandeurs morphologiques

à partir des valeurs de $f^{\phi}|^t$ et de $\lambda|^t$ à l'instant t , on calcule de manière explicite les grandeurs morphologiques $S_v^{\phi 1/\phi 2}$ et r^{ϕ} .

Séquence 2 : calcul des grandeurs thermodynamiques

A partir des valeurs de $w_i^{\phi 1/\phi 2}|^t$, on calcule par interpolation linéaire à partir des fichiers de données thermodynamiques (voir II - 3) :

- $m_i^{\phi 1/\phi 2}$ pour chaque soluté i et pour chaque équilibre $\phi 1/\phi 2$;
- Les coefficients de partage $k_i^{\phi 1/\phi 2}$ relatifs à chaque soluté i et à chaque équilibre $\phi 1/\phi 2$;
- Les enthalpies massiques h^{ϕ} de chaque phase ϕ en présence,
- la quantité $h_i^{\phi 1}$ relative à la surface d'équilibre $\phi 1/\phi 2$ pour chaque soluté i .

Séquence 3 : calcul des coefficients de diffusion

A partir de la valeur de la température $T|_t$, on détermine D_i^{φ} à l'aide de (2.28).

A ce stade, les inconnues à déterminer pour décrire la solidification sont $w_i^{\varphi 1/\varphi 2}|_{t+dt}$ et df^{φ} . Le modèle de microségrégation qui présente le plus de similitude avec celui développé dans ce travail est celui de Doré et coll. [1]. Essayons donc d'appliquer en l'état leur algorithme de résolution qui est rappelé ci-dessous.

Séquence 4 de Doré et coll. :

Ils supposent que le titre massique est uniforme dans le liquide et que le système est fermé. Par conséquent, l'équation (2.29) est ici remplacée par :

$$\rho^{\text{li}} g^{\text{li}} \frac{\partial}{\partial t}(w^{\text{li}}) = - S_v^{\text{s/li}} J^{\text{s/li}} + (1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2}) w_i^{\text{li}} \Gamma_{\text{s/li}} \quad (2.46)$$

Pour linéariser cette équation, le flux $J^{\text{s/li}}$ est exprimé explicitement ainsi que w_i^{li} dans le deuxième terme de droite. L'équation (2.46) prend donc la forme suivante :

$$\rho^{\text{li}} g^{\text{li}} \frac{\partial}{\partial t}(w^{\text{li}}) = - S_v^{\text{s/li}} |_t J^{\text{s/li}}|_t + (1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t) w_i^{\text{li}} |_t \Gamma_{\text{s/li}} \quad (2.47)$$

L'équation caractéristique du refroidissement ainsi que l'équation (2.47) permettent ainsi de déterminer $w_i^{\text{li}}|_{t+\delta t}$ et $df^{\varphi}|_{t+\delta t}$.

Séquence 5 de Doré et coll. :

L'équation de la diffusion est résolue à l'aide de la méthode de Landau pour chaque soluté i en utilisant $w_i^{\text{li}}|_{t+\delta t}$ et $df^{\varphi}|_{t+\delta t}$ comme condition aux limites. La détermination du profil de soluté permet ainsi de calculer $J_i^{\text{s/li}}|_{t+\delta t}$ qui est ensuite utilisé dans la séquence 4.

Essayons de généraliser cet algorithme au cas où le titre massique n'est pas supposé uniforme dans le liquide. Dans ce cas, l'équation (2.38) est remplacée par :

$$(1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2}) w_i^{\varphi 1/\varphi 2} \Gamma_{\varphi 1/\varphi 2} = S_v^{\varphi 1/\varphi 2} (J_i^{\varphi 1/\varphi 2} + J_i^{\varphi 2/\varphi 1}) \quad (2.48)$$

Si la même méthode que celle de la séquence 4 de Doré et coll. est appliquée, c'est-à-dire si les flux massiques moyens aux interfaces sont explicités, alors il vient :

$$(1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t) w_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t \Gamma_{\varphi 1/\varphi 2} = S_v^{\varphi 1/\varphi 2} |_t (J_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t + J_i^{\varphi 2/\varphi 1} |_t) \quad (2.49)$$

D'où l'on peut déduire $\Gamma_{\varphi 1/\varphi 2} = S_v^{\varphi 1/\varphi 2} |_t (J_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t + J_i^{\varphi 2/\varphi 1} |_t) / [(1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t) w_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t]$ pour chaque soluté i .

Or l'algorithme n'assure pas que le terme $S_v^{\varphi 1/\varphi 2} |_t (J_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t + J_i^{\varphi 2/\varphi 1} |_t) / [(1-k_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t) w_i^{\varphi 1/\varphi 2} |_t]$ soit le même pour chaque soluté. Cet algorithme doit donc être adapté lorsqu'aucune des phases de part et d'autre de l'interface n'est en état de mélange complet. Par conséquent, les séquences 4 et 5 précédentes ont été remplacées par les séquences 4' et 5' suivantes.

Séquence 4' :

$J_i^{\varphi_1/\varphi_2}$ est exprimé à l'aide d'un développement de Taylor d'ordre 2, c'est-à-dire en fonction du titre massique à l'interface $w_i^{\varphi_1/\varphi_2}$ ainsi que des titres massiques dans les deux mailles les plus proches de l'interface dans la phase φ_1 (annexe 3) :

$$\left(\frac{\partial w_i^{\varphi_1}}{\partial r}\right)_{\varphi_1/\varphi_2} = aw_i^{\varphi_1}(I1) + bw_i^{\varphi_1}(I2) + cw_i^{\varphi_1/\varphi_2} \quad (2.50)$$

a, b et c dépendent seulement des propriétés géométriques du maillage dans la phase φ_1 et leur expression est donnée dans l'annexe 3. $\{I1 ; I2\} = \{1 ; 2\}$, $\{NM1 ; NM1-1\}$, $\{NM2 ; NM2-1\}$, ou $\{NML ; NML-1\}$ selon l'interface et la phase où cette méthode est appliquée.

Les valeurs de $w_i^{\varphi_1}(I1)$ and $w_i^{\varphi_1}(I2)$ sont prises à l'itération iter-1 et $w_i^{\varphi_1/\varphi_2}$ demeure donc une inconnue du système à l'itération iter :

$$\left(\frac{\partial w_i^{\varphi_1}}{\partial r}\right)_{\varphi_1/\varphi_2} = aw_i^{\varphi_1}(I1)|^{iter-1} + bw_i^{\varphi_1}(I2)|^{iter-1} + cw_i^{\varphi_1/\varphi_2} \quad (2.51)$$

Cette expression est reportée dans les équations de conservation de masse en soluté aux interfaces, ce qui leur permet de conserver leur linéarité. A ce stade, les seules inconnues demeurent $w_i^{\varphi_1/\varphi_2}$ et $\Gamma^{\varphi_1/\varphi_2}$.

Séquence 5' :

Elle est identique à la séquence 5 de Doré et coll., mais ce sont $w_i^{\varphi_1}(I1)|^{iter}$ et $w_i^{\varphi_1}(I2)|^{iter}$ qui sont ensuite utilisés dans la séquence 4', et non $J_i^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter}$. Une boucle itérative sur les séquences 4' et 5' permet de faire converger le système. Le critère de convergence utilisé est le suivant :

$$\sum_{\varphi_1/\varphi_2} \left| \frac{\Gamma^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter} - \Gamma^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter-1}}{\Gamma^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter-1}} \right| + \sum_{\varphi_1/\varphi_2} \sum_i \left| \frac{w_i^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter} - w_i^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter-1}}{w_i^{\varphi_1/\varphi_2}|^{iter-1}} \right| < \varepsilon \quad (2.52)$$

Où ε est une constante fixée à 10^{-5} .

Remarque : au niveau de la séquence 5', il est tout à fait possible d'utiliser une autre méthode pour obtenir le profil de soluté, comme par exemple la collocation dans le cas où celui-ci peut être approché par un polynôme de degré 3.

Cet algorithme reste valable dans le cas d'une morphologie complexe. Cependant, une étape supplémentaire que l'on notera séquence 4'bis doit être rajoutée à la suite de la séquence 4' pour calculer l'évolution de la fraction volumique d'enveloppe dg^{env} .

Séquence 4'bis :

A partir des valeurs de $\bar{w}_i^{l/c}|^{iter-1}$ et $w_i^{l/s}|^{iter-1}$, il est possible de calculer la surfusion $\Delta T|^{iter-1}$ par la relation (2.11). A l'aide de l'algorithme présenté dans l'annexe 1, en on déduit U_{ps} et ainsi dg^{env} grâce à la relation (2.7).

L'algorithme général du calcul de l'évolution de la microségrégation sur un pas de temps microscopique δt est représenté sur la figure II-10.

II - 5. DYNAMIQUE DE SOLIDIFICATION

Dans le cadre de ce travail, le domaine d'étude de la microségrégation peut être dans 7 « états » différents :

1. entièrement liquide (l) ;
2. pâteux en présence de ferrite (l+ δ) ;
3. pâteux en présence d'austénite (l+ γ) ;
4. pâteux en présence de ferrite et d'austénite (transformation péritectique : l+ δ + γ) ;
5. entièrement ferritique (δ) ;
6. entièrement austénitique (γ) ;
7. solide avec les deux phases δ et γ ($\delta + \gamma$).

A partir de ces 7 états, il est donc possible d'envisager 49 transitions numérotées dans le tableau II-9.

On suppose que l'équation caractéristique du refroidissement est donnée par l'évolution temporelle de l'enthalpie \bar{h} (II - 2.2.2). $\delta \bar{h}$ et $\delta \bar{w}_i$ étant des données d'entrée du modèle, on en déduit directement $\bar{h}|^{t+\delta t}$ et $\bar{w}_i|^{t+\delta t}$. A l'aide de l'approche tabulaire décrite plus haut, il est possible de calculer les enthalpie de liquidus relatives à chaque phase δ et γ , notée respectivement $h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})$ et $h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})$. Dans le module de microségrégation, les cas de figure suivants ont été envisagés :

0. $\bar{h}|^{t+\delta t} > \max(h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}), h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}))$: alors le domaine est entièrement liquide quelle que soit l'état initial du domaine ce qui permet de gérer les transitions 1, 8, 15, 22, 29, 36, et 43.

1. Le domaine est entièrement liquide au temps t : si $\bar{h}|^{t+\delta t} < \max(h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}), h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}))$, deux cas peuvent se présenter :

- 1.1. $\max(h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}), h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})) = h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})$: alors le volume devient pâteux. La fraction solide δ est initialisée à une petite valeur $f^{\delta,0} \ll 1$ (transition 2).
- 1.2. $\max(h_{liq}^{\delta}(\bar{w}_i|^{t+\delta t}), h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})) = h_{liq}^{\gamma}(\bar{w}_i|^{t+\delta t})$: alors le volume devient pâteux. La fraction solide γ est initialisée à une petite valeur $f^{\gamma,0} \ll 1$ (transition 3).

2. Le domaine est à l'état pâteux l+ δ :

2.1. $f^l|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^l|^{t+\delta t}$ est fixée à 0, et $f^{\delta}|^{t+\delta t} = 1$: le domaine est entièrement ferritique (transition 12). La valeur de l'enthalpie en dessous de laquelle le domaine est entièrement solide est stockée et notée h^{sol} . Les profils de solutés sont stockés.

2.2. $f^{\delta}|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^l|^{t+\delta t}$ est fixée à 1, et $f^{\delta}|^{t+\delta t} = 0$: le domaine est entièrement liquide (transition 8).

Si les conditions 2.1 et 2.2 ne sont pas remplies, alors :

2.3. Connaissant $w_i^{l/\delta}|^t$, on calcule $h_{liq}^{\delta}(w_i^{l/\delta}|^t)$ et $h_{liq}^{\gamma}(w_i^{l/\delta}|^t)$ pour repérer l'instant où la transformation péritectique commence :

2.3.1. $h_{liq}^{\delta}(w_i^{l/\delta}|^t) > h_{liq}^{\gamma}(w_i^{l/\delta}|^t)$: cela signifie que le chemin de solidification n'a pas encore atteint la ligne monovariante et le domaine demeure à l'état l+ δ (cas 9).

2.3.2. $h_{liq}^{\delta}(w_i^{l/s}|^t) < h_{liq}^{\gamma}(w_i^{l/s}|^t)$: le chemin de solidification a atteint la ligne monovariante et la transformation péritectique commence. Le domaine passe à l'état $l+\delta+\gamma$ et la fraction solide γ qui apparaît est initialisée à une petite valeur $f^{\gamma,0} \ll 1$ (transition 11).

3. Le domaine est à l'état pâteux $l+\gamma$:

3.1. $f^l|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^l|^{t+\delta t}$ est fixée à 0, et $f^{\gamma}|^{t+\delta t} = 1$: le domaine est entièrement austénitique (transition 20). La valeur de l'enthalpie en dessous de laquelle le domaine est entièrement solide est stockée et notée h^{sol} . Les profils de solutés sont stockés.

3.2. $f^{\gamma}|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^l|^{t+\delta t}$ est fixée à 1, et $f^{\gamma}|^{t+\delta t} = 0$: le domaine est entièrement liquide (transition 15).

3.3. Sinon, le domaine demeure à l'état pâteux $l+\gamma$ (cas 17).

4. Le domaine est à l'état pâteux $l+\delta+\gamma$:

4.1. $f^{\delta}|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^{\delta}|^t = 0$, $f^l|^t = 1 - f^{\gamma}|^t$ et on relance le calcul à l'état $l+\gamma$ pour calculer correctement l'évolution des grandeurs microscopiques (transition 23).

4.2. $f^{\gamma}|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^{\gamma}|^t = 0$, $f^l|^t = 1 - f^{\delta}|^t$ et on relance le calcul à l'état $l+\delta$ (transition 24).

4.3. $f^l|^{t+\delta t} < 0$: alors $f^{\gamma}|^{t+\delta t} = 1 - f^{\delta}|^{t+\delta t}$ et le domaine passe à l'état $\delta+\gamma$ (transition 28). La valeur de l'enthalpie en dessous de laquelle le domaine est entièrement solide est stockée et notée h^{sol} . Les profils de solutés sont stockés.

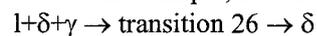
4.4. Sinon, on reste à l'état $l+\delta+\gamma$ (cas 25).

5. Le domaine est entièrement solide :

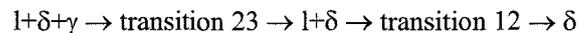
5.1. $\bar{h}|^{t+\delta t} < h^{sol}$: le domaine demeure entièrement solide. Dans le modèle, on ne tient pas compte de l'homogénéisation, et l'équation de la diffusion n'est plus résolue. δT est obtenue facilement à partir de l'incrément de l'enthalpie (cas 33, 41, et 49).

5.2. $\bar{h}|^{t+\delta t} > h^{sol}$: alors on initialise la fraction de liquide $f^l|^{t+\delta t}$ à une valeur très faible $f^{l,0} \ll 1$ (transition 30, 38 et 46) et l'évolution de la microségrégation est calculée à partir des profils de solutés gardés en mémoire juste avant la disparition complète du liquide.

Toutes les transitions indiquées dans le tableau II-9 peuvent être décomposées en transitions élémentaires qui ont été décrites ci-dessus. Par exemple, si l'on considère la transition 26 :



Elle peut se décomposer en deux transitions élémentaires :



Dans le tableau II-9, les transitions élémentaires sont indiquées en noir. Par la suite, on choisit le pas de temps δt relatif à la gestion de la microségrégation suffisamment petit pour qu'une seule transition élémentaire puisse se produire dans le laps de temps δt . En conséquence, seules les transitions élémentaires sont gérées par le modèle de microségrégation.

Remarque : si le refroidissement est donné par l'évolution temporelle de la température T (II - 2.2.1), alors il suffit de remplacer h par T dans ce qui précède.

II - 6. CONCLUSION

Le tableau II-10 résume les bases du modèle numérique de microségrégation développé dans ce chapitre.

III - ANALYSE THEORIQUE DES RESULTATS GENERES PAR LE MODELE

L'objectif de ce chapitre est dans un premier temps d'étudier la sensibilité du modèle de microségrégation présenté dans le chapitre II aux paramètres numériques (influence du pas de temps δt , finesse du maillage microscopique) à partir d'un cas de référence. Dans un deuxième temps, l'influence des paramètres physiques tels que la taille des microstructures ou le type de morphologie adopté sera étudié plus en détail.

III - 1. DEFINITION DU CAS DE REFERENCE

On considère un alliage Fe-Ni-C, dont le coin riche en fer du diagramme d'équilibre de phase a déjà été représenté sur la figure II-9. Dans le cas de référence, les propriétés de la grille de tabulation utilisées pour décrire le diagramme de phase sont spécifiées dans le tableau III-1. Pour chaque équilibre l/δ , l/γ et γ/δ , un fichier thermodynamique de 10201 lignes et de 7 colonnes est généré.

Au temps $t = 0$, le domaine d'étude de la microségrégation est supposé entièrement liquide. Les titres massiques nominaux sont les suivants : $w_C^0 = 0,069\%$ mass et $w_{Ni}^0 = 4\%$ mass. Les coefficients de diffusion de chaque soluté dans chaque phase sont indiqués dans le tableau A4-1.

Le pas de temps δt choisi pour effectuer les calculs est de 0,1s et le maillage microscopique est défini dans le tableau III-2. Dans l'annexe 3, il a été montré qu'un maillage adaptatif est utilisé dans le modèle. Au début des calculs, le maillage est régulier dans chaque phase, puis devient géométrique si le critère (A3.32) n'est plus respecté. La raison du maillage géométrique est alors calculée par le modèle. Dans le cas de référence, il y a 30 mailles dans la phase solide primaire et 30 mailles dans le liquide. Vu la nature du maillage adopté aux interfaces (figure A3.2), cela signifie que le profil de soluté dans ces phases sera représenté par 1 composition pour chaque maille plus la composition aux interfaces, soit au total 31 compositions. De même, s'il y a 50 mailles dans le solide 2 durant la transformation péritectique, le profil sera représenté par 50+2 (1 composition par interface) compositions.

La géométrie est supposée axisymétrique (morphologie simplifiée) et la taille du domaine de microségrégation λ est 275 μ m. L'équation du refroidissement est donnée par :

$$\dot{T} = -0.1^\circ\text{C/s} \quad (3.1)$$

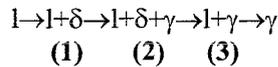
La surfusion aux pointes primaires de dendrites ainsi que la maturation ne sont pas prises en compte dans le cas de référence.

III - 2. RESULTATS OBTENUS POUR LE CAS DE REFERENCE

III - 2.1. CHEMIN DE SOLIDIFICATION - EVOLUTION DES TAUX DE PHASES

Comme le montre la figure III-2, la phase primaire qui se dépose est la ferrite pour les fractions nominales choisies. La température de liquidus calculée par le modèle est 1517°C. Durant la solidification primaire, le liquide s'enrichit en carbone et nickel ($k_C^{\delta/l} < 1$ et $k_{Ni}^{\delta/l} < 1$ comme le montre la figure III-1).

La solidification primaire est indiquée par le chiffre 1 sur la figure III-2. La représentation des nappes de liquidus δ et γ montre que pendant ce stade, $T_{liq}^{\delta}(w_i^{l|\delta}) > T_{liq}^{\gamma}(w_i^{l|\delta})$. Lorsque l'enrichissement du liquide est suffisant, $T_{liq}^{\delta}(w_i^{l|\delta}) = T_{liq}^{\gamma}(w_i^{l|\delta})$, ce qui se traduit visuellement par le fait que le chemin de solidification* atteint la ligne monovariante : la transformation péritectique commence donc à cet instant et est désignée par le chiffre 2 sur la figure III-2. La température de transition calculée est de 1513°C et la fraction de ferrite déposée à cet instant (que l'on notera par la suite $(f^{\delta})_p$) est de 33%. La transformation s'achève lorsque l'une des deux phases consommées par la croissance de l'austénite disparaît. L'évolution des taux de phases au cours de la solidification est représentée sur la figure III-3. Cette dernière montre que la phase limitante de la transformation péritectique est la ferrite qui disparaît complètement à la température $T = 1504^\circ\text{C}$. La fraction de liquide résiduel est alors de 10%. La solidification de ce liquide résiduel en austénite correspond au 3^{ème} stade et est désigné par le chiffre 3 sur la figure III-2 et la figure III-3. Durant les stades 2 et 3, $T_{liq}^{\delta}(w_i^{l|\gamma}) < T_{liq}^{\gamma}(w_i^{l|\gamma})$. La température de solidus est de 1499°C. Par conséquent, l'intervalle de solidification ΔT^{sol} est de 18°C et le temps total de solidification est de 180s. En résumé, la séquence de solidification calculée est la suivante :



* On désigne ici par chemin de solidification le lieu des points $(w_C^{l/s}, w_{Ni}^{l/s}, T)$ dans le diagramme d'équilibre des phases. Dans la suite de ce travail, l'expression chemin de solidification pourra également désigner la courbe $T = fct(f^{\delta})$. Le contexte précisera alors sans ambiguïtés de quel « chemin de solidification » il s'agit.

III - 2.2. PROFILS DES TITRES MASSIQUES EN SOLUTE AU COURS DE LA SOLIDIFICATION

Les profils des titres massiques en carbone et en nickel dans chaque phase durant les différents stades de la solidification ont été représentés sur la figure III-4. Les profils a) et b) ont été tracés juste avant le début de la transformation péritectique, c'est-à-dire lorsque le domaine d'étude de la microségrégation est encore à l'état pâteux {liquide+ δ }. Ensuite, au cours de la transformation péritectique, la couche d'austénite s'épaissit entre la ferrite et le liquide : les courbes pointillées représentent les profils après la transition. Les profils c), d), e), et f) illustrent que la croissance de l'austénite peut être divisée en deux phénomènes : la régression de la ferrite et la solidification de l'austénite.

Avant d'interpréter physiquement les résultats obtenus, il convient de s'assurer de leur validité en étudiant la sensibilité du modèle aux paramètres numériques introduits :

- Le pas de temps de calcul microscopique δt ;
- Le nombre de mailles microscopiques utilisées dans chaque phase.

III - 3. ETUDE DE SENSIBILITE AUX PARAMETRES NUMERIQUES DU MODELE

Quel que soit le paramètre étudié, l'étude de sensibilité se base sur la comparaison des résultats suivants :

- L'évolution des taux de phases en cours de solidification ;
- Les profils de solutés.

III - 3.1. INFLUENCE DU PAS DE TEMPS

Le calcul de référence défini dans la partie III - 1 a été réitéré en prenant comme pas de temps de calcul $\delta t = 10^{-2}$ s, 10^{-1} s, et 1s. Rappelons que pour le cas de référence, le temps de solidification obtenu est de 180s.

III - 3.1.1. Comparaison des taux de phases

De la figure III-5 on peut conclure que pour la gamme de pas de temps utilisé qui peut varier jusqu'à un rapport 100, il n'y a pas d'influence notable sur l'évolution des taux de phases générée par le modèle.

III - 3.1.2. Comparaison des profils

De la figure III-6 on peut conclure que pour la gamme de pas de temps utilisés, il n'y a pas d'influence notable sur les profils de solutés générés par le modèle.

En résumé, la précision des résultats ne semble pas être altérée si on reste dans une gamme de pas de temps microscopiques allant de 0,01s à 1s. En particulier, les résultats générés par le cas de référence sont de ce point de vue tout à fait valides. Cependant, cette conclusion ne vaut que pour la vitesse de refroidissement choisie qui est de $-0,1^{\circ}\text{C/s}$. En effet, des calculs complémentaires ont montré que dans le cas extrême où on impose une vitesse de refroidissement très élevée de -10°C/s , le calcul ne converge pas si $\delta t = 1\text{s}$. Il est alors nécessaire de choisir un pas de temps δt très faible (10^{-2}s).

III - 3.2. INFLUENCE DU MAILLAGE

A partir du cas de référence décrit précédemment, l'étude de l'influence du nombre de mailles sur les résultats calculés a été menée à partir des trois maillages définis dans le tableau III-3.

III - 3.2.1. Comparaison des taux de phases

La figure III-7b) montre que :

- les 3 maillages prédisent la même évolution de la fraction de ferrite en solidification primaire ;

- Pendant la transformation péritectique, la régression de la ferrite calculée est la même pour les maillages M1 et M2. En revanche, le maillage M3 sous-estime la régression de la ferrite par rapport aux autres maillages en début de transformation péritectique, puis la tendance s'inverse ensuite. Cette différence constatée dans le calcul de la fraction de ferrite est maximale pour la température $T = 1507^\circ\text{C}$ et atteint 5%. Pour cette température, la fraction de liquide résiduelle est de l'ordre de 20%. Finalement, avec le maillage M3, la température de disparition de la ferrite se situe à 1505°C tandis que avec les maillages M1 et M2, celle-ci est de 1504°C .

Cependant, les différences constatées à l'interface δ/γ ne sont pas assez importantes pour affecter significativement les phénomènes à l'interface γ/l : l'évolution de la fraction solide représentée sur la figure III-7a) ne dépend pas du type de maillage.

III - 3.2.2. Comparaison des profils

La figure III-8 représente les profils de solutés calculés pour chacun des maillages à des fractions de liquide résiduel données. Pour le maillage M3, les points représentent les titres à chaque nœud du maillage microscopique ainsi que les titres aux interfaces.

Pendant la solidification primaire, à $g^l = 75\%$, 3 mailles dans la ferrite et 3 mailles dans le liquide (soit 4 points représentatifs du profil dans chaque phase) sont parfaitement satisfaisantes pour décrire correctement les profils de solutés et il n'y a pas de perte de précision par rapport aux maillages plus fins M1 et M2. Ceci concorde avec le fait que l'évolution de la fraction de ferrite en phase de solidification primaire est la même pour les trois maillages étudiés.

En revanche, comme mentionné précédemment, pendant la transformation péritectique à $g^l = 20\%$, il y a une différence maximale de 5% dans le calcul du taux de ferrite par les maillages {M1, M2} et le maillage M3. Les profils de solutés dans chacune des phases ont donc été représentés pour cette fraction liquide sur la figure III-8c) et d). On peut effectivement remarquer :

- une position différente de l'interface δ/γ selon le maillage utilisé ;
- les mêmes titres massiques interfaciaux à cette interface.

Dans le modèle et comme cela est décrit par l'équation (2.29), le mouvement des interfaces est contrôlé par les flux diffusifs de part et d'autre de celle-ci. Chaque flux $J_i^{\varphi_1/\varphi_2}$ est exprimé à l'aide d'un développement de Taylor d'ordre 2 (annexe 3), c'est-à-dire en fonction de $w_i^{\varphi_1/\varphi_2}$, $w_i^{\varphi_1}(\bar{I}1)$, et $w_i^{\varphi_1}(\bar{I}2)$, où $\{\bar{I}1 ; \bar{I}2\} = \{1 ; 2\}$, $\{NM1 ; NM1-1\}$, $\{NM2 ; NM2-1\}$, ou $\{NML ; NML-1\}$. Ainsi, la figure III-8d) montre que $|J_{Ni}^{\delta/\gamma}|_{\text{maillage1}} > |J_{Ni}^{\delta/\gamma}|_{\text{maillage3}}$, ce qui est cohérent avec la sous-estimation de la régression de la ferrite par le maillage 3 pour $g^l = 20\%$.

Cependant, là encore, les différences constatées à l'interface δ/γ ne sont pas assez importantes pour affecter significativement les phénomènes à l'interface γ/l : la position de l'interface γ/l ainsi que les titres massiques en soluté dans la phase liquide sont les mêmes pour les 3 maillages.

Le traitement de la solidification primaire par un maillage grossier comme M3 se révèle tout à fait satisfaisant par rapport à des maillages plus fins comme M1 ou M2. En revanche, la transformation $\delta \rightarrow \gamma$ est beaucoup plus sensible aux valeurs des flux massiques moyens de part et d'autre de l'interface que ne l'est la solidification $l \rightarrow \gamma$ ou $l \rightarrow \delta$.

Plus généralement, cette analyse est cohérente avec l'étude bibliographique sur le traitement de la rétrodiffusion : de même que les profils simples en solidification classique peuvent être approchés par des polynômes de degré 2 ou 3, de même un nombre limité de mailles microscopiques est exigé pour avoir une bonne précision de la solution. En revanche, l'application de ces mêmes méthodes à une transformation solide/solide où les profils de solutés aux interfaces peuvent être très abrupts ne donne pas les mêmes conclusions.

En conclusion, le maillage du cas de référence M2 donne les mêmes résultats que le maillage fin M1. Par conséquent, les résultats générés par le cas de référence sont de ce point de vue tout à fait valides.

L'étude de sensibilité du modèle aux paramètres numériques a montré que le cas de référence défini ci-dessus donnait des résultats en concordance avec ceux générés au moyen de pas de temps très petit ou de maillage très fin. Par conséquent, les résultats donnés par le cas de référence sont considérés comme numériquement fiables et suffisamment précis pour se prêter à une analyse théorique plus poussée.

III - 4. ANALYSE THEORIQUE DES RESULTATS OBTENUS PENDANT LA TRANSFORMATION PERITECTIQUE DANS LE CAS DE REFERENCE

III - 4.1. ANALYSE DES PROFILS

La figure III-9 montre le profil des titres massiques en soluté juste avant le début de la transformation péritectique ($T = 1513^\circ\text{C}$) ainsi que l'évolution de ces profils au cours de celle-ci ($T = 1510, 1507$ et 1504°C) :

- Pour le carbone, les profils dans chacune des phases sont pratiquement plats, excepté dans l'austénite où le profil est linéaire et amorce une légère pente ;
- Pour le nickel, les profils présentent deux particularités :
 1. il y a un appauvrissement du titre massique en nickel dans la ferrite à l'interface δ/γ . Dans la ferrite, le titre massique en nickel à l'interface δ/γ est plus faible que le titre massique loin de l'interface alors que $k_{\text{NI}}^{\delta/\gamma} < 1$.
 2. il y a une rupture de pentes dans le profil du titre massique en nickel au niveau de la position de l'interface δ/γ juste avant le début de la transformation péritectique. Cette rupture tend à s'atténuer légèrement au cours de la solidification.

De plus, pour le nickel comme pour le carbone, les titres massiques $w^{\gamma/\delta}$ et $w^{\delta/\gamma}$ varient très peu lors de la régression de la ferrite.

A partir des expressions du tableau A4-1, l'évolution des coefficients de diffusion durant la solidification a été représentée sur la figure III-10. En raison de la faible valeur de ΔT_{sol} , ceux-ci n'évoluent pratiquement pas au cours de la solidification. En prenant une valeur approchée $(D_i^\varphi)^{\text{app}}$ de la moyenne temporelle de D_i^φ au cours de la solidification, les nombres de Fourier $\alpha_i^\varphi = \frac{(D_i^\varphi)^{\text{app}} t_f}{\lambda^2}$ relatifs à la phase φ et au soluté i ont été calculés et reportés dans le tableau III-4 afin d'interpréter les résultats obtenus sur les profils.

Les valeurs obtenues sont cohérentes avec l'allure des profils de la figure III-9. En effet :

- $\alpha_c^\delta, \alpha_c^l$ et $\alpha_{Ni}^l \gg 1$: par conséquent, le profil du titre massique en carbone dans la ferrite et le liquide ainsi que le profil du titre massique en nickel dans le liquide sont pratiquement uniformes ;
- α_{Ni}^γ et $\alpha_{Ni}^\delta \ll 1$: il y a apparition d'une couche limite de diffusion étroite dans la ferrite au cours de sa régression et du fait de la faible diffusion du nickel dans l'austénite, il est possible de distinguer l'austénite issue de la régression de la ferrite de celle provenant de la solidification directe du liquide ;
- $\alpha_c^\gamma \cong 1$: le profil du carbone est linéaire dans l'austénite au cours de la transformation péritectique mais non uniforme, $w_c^{\gamma/l}$ est légèrement supérieur à $w_c^{\gamma/\delta}$.

La figure III-11 montre l'évolution des pentes de liquidus ferritique et austénitique pour chacun des solutés, ainsi que les pentes de la nappe de solvus austénitique relative à l'équilibre δ/γ . $m_c^{l/s}$, $m_{Ni}^{l/s}$ et $m_{Ni}^{\delta/\gamma}$ varient assez peu au cours de la solidification, à la différence de $m_c^{\delta/\gamma}$ qui augmente de près de 20% au cours de la transformation péritectique. Pour chacun des solutés i , $|m_i^{\gamma/\delta}| \gg |m_i^{\gamma/l}|$, or d'après l'égalité (2.21), pour une même variation de la température dT :

$$\sum_i m_i^{l/\gamma} dw_i^{l/\gamma} = \sum_i m_i^{\gamma/\delta} dw_i^{\gamma/\delta} \quad (2.21)$$

Par conséquent, au cours de la solidification, $|dw_i^{\gamma/\delta}| \ll |dw_i^{\gamma/l}|$ ce qui est cohérent avec l'observation de la figure III-9.

III - 4.2. ANALYSE DES CHEMINS DE DIFFUSION

Une autre manière de représenter les informations fournies par les profils de la figure III-9 est de construire le chemin de diffusion* dans des coupes isothermes du diagramme d'équilibre des phases ternaire Fe-Ni-C.

* Le chemin de diffusion dans une coupe isotherme du diagramme de phase est le lieu des points $(w_c^{\phi(j)}, w_{Ni}^{\phi(j)})$ où j représente un nœud du maillage microscopique défini dans la partie III - 1.

Ce travail a été réalisé sur la figure III-12 pour les 2 températures $T = 1510^\circ\text{C}$ et $T = 1507^\circ\text{C}$. Les chemins de diffusion sont représentés en trait rouge gras. Leur observation permet de vérifier les points suivants :

- l'équilibre thermodynamique est localement atteint au niveau des deux interfaces δ/γ et γ/l . pour les deux températures, les connodes ont été représentées en trait rouge fin pour les deux équilibres. Comme l'équilibre thermodynamique n'est supposé atteint par le modèle qu'aux interfaces, les compositions interfaciales ne sont donc pas données par les sommets du triangle d'équilibre des phases, ce qui serait le cas si le domaine d'étude de la microségrégation était supposé à l'équilibre thermodynamique complet. Plus la température diminue, plus $w_i^{l/\gamma}$ s'écarte de $w_i^{l/p}$, ce qui était déjà visible sur la figure III-2.

- le chemin de diffusion calculé dans l'austénite est entièrement compris dans la zone d'équilibre de l'austénite : l'austénite est donc thermodynamiquement stable. A ce stade, il est intéressant de revenir aux travaux de Fredriksson sur la transformation péritectique (voir I - 3.2.2) qui avait conclu que pour les aciers Fe-C-X, deux cas pouvaient se présenter, dans lesquels il n'était pas thermodynamiquement favorable de former une couche d'austénite. En effet, une partie du chemin de diffusion dans l'austénite théoriquement calculé par Fredriksson était incluse dans le triangle d'équilibre. Ces résultats avaient été obtenus sur les systèmes Fe-Ni-S, Fe-Ni-Mn-S et Fe-C-P. Rien de tel n'est cependant constaté pour le système Fe-Ni-C.
- Le chemin de diffusion dans la ferrite est entièrement inclus dans la zone d'équilibre $\delta+\gamma$: la ferrite est donc thermodynamiquement instable d'où sa régression au cours de la transformation péritectique. Il apparaît nettement sur ces figures que le titre massique minimal en nickel est atteint dans la ferrite à l'interface δ/γ .

III - 4.3. DISCUSSION SUR LA NATURE DE L'EQUILIBRE THERMODYNAMIQUE LOCAL A L'INTERFACE δ/γ

Comme mentionné ci-dessus, le profil du titre massique en nickel dans la ferrite pendant la transformation péritectique se caractérise par le fait que le titre massique à l'interface δ/γ est plus faible que le titre massique loin de cet interface alors que $k_{Ni}^{\delta/\gamma} < 1$. Cette caractéristique a déjà été observée par exemple dans la simulation de la refusion d'une phase solide. Par conséquent, la représentation d'un cycle solidification - refusion induit la présence d'une boucle dans le chemin de solidification [13].

Les chemins de diffusion représentés sur la figure III-12 ont été agrandis dans la figure III-13 sur la zone d'équilibre $\delta+\gamma$. Dans notre cas de référence, on constate que la régression de la ferrite se divise en deux étapes :

- $w_{Ni}^{\gamma/\delta}$ est différent du titre massique en nickel dans la ferrite loin de l'interface δ/γ (figure III-4d) ;
- $w_{Ni}^{\gamma/\delta}$ est le même que le titre massique en nickel dans la ferrite loin de l'interface δ/γ (figure III-4f).

Sur ces chemins de diffusion ont été superposées les courbes IC associées théoriquement à la transformation $\delta \rightarrow \gamma$ (voir I - 3.3) :

- A la température $T = 1510^\circ\text{C}$, le titre massique du nickel dans la ferrite loin de l'interface se situe dans la zone I de la courbe IC selon la terminologie employée dans la partie I - 3.3, ce qui correspond à la zone d'établissement de la couche limite de diffusion du nickel dans la ferrite qui régresse. A ce stade, il y a un partitionnement entre le titre de l'austénite qui se forme et le titre dans la ferrite en dehors de la couche limite (figure III-13a).
- A la température $T = 1507^\circ\text{C}$, le titre massique du nickel dans la ferrite loin de l'interface se situe dans la zone II de la courbe IC. A ce stade, il n'y a plus de partitionnement entre le titre de l'austénite qui se forme et le titre dans la ferrite en dehors de la couche limite (figure III-

13b). Ce comportement correspond donc au régime de faux para-équilibre défini dans le chapitre I et bien connu des spécialistes des transformations à l'état solide.

III - 4.4. EVOLUTION DES TITRES MASSIQUES DANS LE LIQUIDE A L'INTERFACE L/S

La figure III-14 représente l'évolution du titre massique des différents solutés dans le liquide à l'interface l/s où $s = \delta$ ou γ au cours de la solidification. La ligne verticale en pointillés repère le début de la transformation péritectique. En solidification primaire, le liquide s'enrichit en carbone et en nickel puisque $k_c^{\delta/l} < 1$ et $k_{Ni}^{\delta/l} < 1$ (figure III-1).

Le modèle prévoit que $w_{Ni}^{l/\gamma}$ **augmente au cours de la transformation péritectique**. Envisageons à présent la configuration suivante que nous appellerons par la suite « cas BL » : si le chemin de solidification était décrit de manière simplifiée en supposant que les deux solutés suivent la loi de microségrégation du bras de levier (équation 1.10), alors il suivrait la ligne monovariante représentée sur la figure III-2a). Dans ce cas-là, $w_{Ni}^{l/\gamma}$ **diminuerait au cours du refroidissement** tandis que $w_c^{l/\gamma}$ augmenterait. Cette configuration où les titres massiques des deux solutés varient de manière opposée sous l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique complet est analogue à celle rencontrée par Krane et Incropera [52] dans l'alliage Pb-5%Sb-35%Sn (voir I - 2). En effet, au cours du refroidissement, le chemin de solidification de cet alliage suit une ligne péritectique monovariante le long de laquelle le liquide s'enrichit en zinc mais s'appauvrit en antimoine.

Comme mentionné dans la partie I - 3, Fredriksson [21] associe le cas BL à celui d'un recouvrement partiel de la ferrite par l'austénite au cours de la transformation péritectique : puisque les trois phases restent simultanément en contact au cours de la transformation, il considère que le chemin de solidification est bien décrit par la ligne monovariante. Si à l'inverse il y a recouvrement complet, alors le chemin de solidification quitte la ligne monovariante, ce qui est l'analogue de notre cas de référence. Il en tire donc la conclusion suivante : l'évolution de la composition du liquide est fortement dépendante du degré de recouvrement de la ferrite par l'austénite. De la même manière, l'étude présente montre que l'hypothèse H1.7 influe de manière significative sur le chemin de solidification obtenue.

Pour mieux comprendre l'influence de la régression de la ferrite sur le chemin de solidification, le modèle de microségrégation à morphologie simplifiée a été adapté de la manière suivante : lorsque débute la transformation péritectique, la fraction primaire de ferrite reste bloquée. Le liquide restant se solidifie en austénite comme si la ferrite primaire qui s'était déposée n'existait plus. Cette nouvelle configuration notée FB (« Ferrite Bloquée ») ne prenant pas en compte la régression de la ferrite a été représentée sur la figure III-15.

L'évolution du titre massique en carbone et en nickel dans le liquide à l'interface l/s obtenue dans le cas FB est représentée en pointillés sur la figure III-14. Celle-ci montre que :

- La régression de la ferrite atténue l'augmentation du titre massique en carbone dans le liquide à l'interface l/s. en effet, l'austénite qui se forme à l'interface δ/γ a une composition en carbone supérieure à celle de la ferrite (figure III-9a). Par conséquent, pendant la transformation péritectique, la régression de la ferrite consume une quantité de carbone qui doit être compensée par un flux de carbone du liquide vers l'austénite.

- La régression de la ferrite a peu d'effet sur l'évolution du titre massique en nickel dans le liquide à l'interface l/s , hormis en toute fin de solidification. En effet, il a été remarqué que pendant le 2^{ème} stade de la transformation péritectique définie dans la partie III - 4.3, l'austénite qui se forme à l'interface δ/γ a la même composition en nickel que la ferrite loin de l'interface δ/γ , au-delà de la couche limite de diffusion interfaciale (figure III-9b).

III - 5. ETUDE DE L'INFLUENCE DES PARAMETRES PHYSIQUES DU MODELE SUR LES RESULTATS

III - 5.1. EFFET DE LA DISTANCE CARACTERISTIQUE

III - 5.1.1. Comparaison des chemins de solidification

Cette partie présente une comparaison des résultats obtenus dans le cas de référence pour deux valeurs de λ : $65\mu\text{m}$ et $275\mu\text{m}$. Les chemins de solidification ont été représentés sur la figure III-16a) pour les deux cas. La figure III-16b) représente l'agrandissement de la figure III-16a) sur les premières fractions solides et montre qu'en valeur absolue, la pente à l'origine de la courbe est plus forte pour $\lambda = 275\mu\text{m}$ que pour $\lambda = 65\mu\text{m}$:

- Pour une fraction solide comprise entre 0 et 30%, la concavité de la courbe change pour $\lambda = 275\mu\text{m}$: elle est positive pour des fractions solides faibles puis elle devient négative, le point d'inflexion se situant à une fraction solide de 10%.
- Pour $\lambda = 65\mu\text{m}$, cette courbure reste négative tout au long de la solidification.

Pour interpréter ces résultats, les profils de solutés ont été représentés sur la figure III-17 à $f^s = 5\%$ et pour les deux valeurs de λ :

- pour $\lambda = 65\mu\text{m}$, les titres massiques en solutés carbone et nickel dans le liquide sont pratiquement uniformes et le resteront pendant toute la solidification : la concavité de la courbe du chemin de solidification reste donc la même pendant la solidification.
- Pour $\lambda = 275\mu\text{m}$, les profils des titres massiques en solutés carbone et nickel présentent dans le liquide une couche limite de diffusion, si bien que $w_c^{l/\delta}$ et $w_{Ni}^{l/\delta}$ sont plus élevés dans le cas $\lambda = 275\mu\text{m}$ que dans le cas $\lambda = 65\mu\text{m}$. Par conséquent, pour la même fraction solide f^s , la température du domaine d'étude de la microségrégation est plus faible pour $\lambda = 275\mu\text{m}$ que pour $\lambda = 65\mu\text{m}$. Ensuite, pour $\lambda = 275\mu\text{m}$, la composition s'uniformise dans le liquide au cours du déroulement de la solidification d'où le changement de concavité de la courbe.

Cette analyse nous permet de montrer que la courbure positive à l'origine du chemin de solidification est caractéristique de la prise en compte d'une diffusion finie dans le liquide.

La figure III-16a) indique une température de fin de solidification de 1502°C pour $\lambda = 65\mu\text{m}$ et de 1499°C pour $\lambda = 275\mu\text{m}$. A priori, ce résultat est conforme à la théorie : comme $\alpha_1^\delta(275\mu\text{m}) < \alpha_1^\delta(65\mu\text{m})$ et que $\alpha_1^\gamma(275\mu\text{m}) < \alpha_1^\gamma(65\mu\text{m})$, le liquide en fin de solidification est moins enrichi pour $\lambda = 65\mu\text{m}$ que pour $\lambda = 275\mu\text{m}$, d'où $T_{\text{sol}}(275\mu\text{m}) < T_{\text{sol}}(65\mu\text{m})$.

III - 5.1.2. Comparaison des profils

Jusqu'à présent, les résultats relatifs à la distribution des éléments d'alliage dans les différentes phases ont été représentés sous la forme de profils tracés le long de la variable spatiale r :

$$w_i^p = \text{fct}(r) \quad (3.2)$$

Par la suite, de tels profils seront désignés par le terme de profils linéiques. Cependant, d'autres représentations sont possibles, comme celle décrite comme suit.

Définition et méthode de construction des profils cumulés :

Adoptons les notations suivantes : à chaque nœud I du maillage microscopique est associé la composition $w(I)$ ainsi que le volume de la maille $V(I)$, qui dépend de la morphologie adoptée pour décrire le domaine microscopique. Le profil cumulé est obtenu en traçant la composition $w(I)$ en fonction du volume cumulé $V_{\text{cum}}(I)$ défini comme suit :

$$V_{\text{cum}}(I) = \sum_{I'; w(I') \leq w(I)} V(I') \quad (3.3)$$

L'intérêt d'une telle représentation est exposé dans le chapitre IV.

Description qualitative des profils cumulés de la figure III-18 :

La figure III-18e) représente le profil cumulé en nickel obtenu en fin de solidification pour $\lambda = 275\mu\text{m}$. Celui-ci présente une rupture de pentes pour une fraction cumulée d'environ 30%.

La figure III-18f) représente le profil cumulé en nickel obtenu en fin de solidification pour $\lambda = 65\mu\text{m}$:

- pour une fraction cumulée comprise entre 0 et 20%, le profil présente une courbure fortement négative ;
- pour une fraction cumulée comprise entre 20% et 100%, le profil est pratiquement linéaire.

Description quantitative des profils cumulés de la figure III-18 :

Pour caractériser la sévérité de la microségrégation finale représentée sur ces deux courbes, le coefficient $\tau_{\text{Ni}} = w_{\text{Ni}}^{\text{max}} / w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$ est calculé dans chacun des cas et indiqué dans le tableau III-5. Classiquement, pour prédire qualitativement la sévérité de la microségrégation finale, le nombre de Fourier α est utilisé. Plus α est petit, plus τ_{Ni} qui caractérise la sévérité de la microségrégation finale est grand. L'application du critère de Fourier à notre cas laisse donc prévoir que $\tau_{\text{Ni}}(275\mu\text{m}) > \tau_{\text{Ni}}(65\mu\text{m})$, ce qui contredit les résultats du tableau III-5. Ce dernier indique que $w_{\text{Ni}}^{\text{max}}(275\mu\text{m}) > w_{\text{Ni}}^{\text{max}}(65\mu\text{m})$, ce qui est bien en accord avec le critère de Fourier mais $w_{\text{Ni}}^{\text{min}}(275\mu\text{m}) > w_{\text{Ni}}^{\text{min}}(65\mu\text{m})$, ce qui le contredit.

L'écart entre l'analyse par le nombre de Fourier et les résultats du modèle provient de $w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$. Pour mieux comprendre comment est obtenu $w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$ au cours de la formation de la microségrégation, les profils linéiques en nickel ont été représentés pour les deux valeurs de λ sur la figure III-18 :

- Pour $\lambda = 65\mu\text{m}$, la couche limite de diffusion dans la ferrite est plus grande que r^δ pour $T = 1510^\circ\text{C}$ et 1507°C , ce qui n'est pas le cas pour $\lambda = 275\mu\text{m}$. Cela signifie que le nickel parvient à diffuser beaucoup plus facilement de la ferrite vers l'austénite lors de la régression pour $\lambda = 65\mu\text{m}$;
- La rupture de pentes permettant de distinguer l'austénite issue de la régression de la ferrite de celle provenant de la solidification directe du liquide reste apparente tout au long de la solidification pour $\lambda = 275\mu\text{m}$, alors qu'elle est complètement atténuée par les effets diffusifs pour $\lambda = 65\mu\text{m}$.

Pour mieux comprendre les effets diffusifs et en particulier l'effet de λ sur la régression de la ferrite indépendamment des phénomènes à l'interface γ/δ , deux cas limites théoriques déjà exposés dans le chapitre I sont rappelés ici :

- **Cas limite du faux paraéquilibre** : il a été largement exposé dans la partie III - 4.3 (figure III-19b) où il a été montré que le cas $\lambda = 275\mu\text{m}$ s'en rapprochait ;
- **Cas limite de Fredriksson** (voir I - 3.2.2) : la diffusion du soluté est nulle dans l'austénite et infinie dans la ferrite. L'évolution de $w_{\text{Ni}}^{\gamma/\delta}$ peut donc être décrite par une loi de type Gulliver-Scheil avec $k^{\delta/\gamma} < 1$:

$$\frac{w^{\delta/\gamma}}{(w^\delta)_p} = (f^\delta)^{k^{\delta/\gamma}-1} \quad (3.4)$$

$(w^\delta)_p$ désigne le titre massique moyen du soluté dans la ferrite juste avant le début de la transformation péritectique. Lorsque f^δ tend vers 0, $w^{\gamma/\delta}$ tend vers 0. Cette configuration est représentée sur la figure III-19a). La courbure fortement négative à l'origine du profil cumulé tend donc à prouver que le cas $\lambda = 65\mu\text{m}$ se rapproche davantage du cas limite de Fredriksson.

A ces deux distances caractéristiques correspondent des cinétiques de régression de la ferrite différentes, comme cela est montré sur la figure III-20 : pour $\lambda = 275\mu\text{m}$, la vitesse de régression de la ferrite, définie par la quantité $\frac{dg^\delta}{dt}$, augmente au cours de la transformation péritectique, alors que pour $\lambda = 65\mu\text{m}$, elle diminue.

En conclusion, la valeur de $w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$ dépend de la régression de la ferrite durant la transformation péritectique. Par conséquent, le critère de Fourier théoriquement établi en solidification primaire seulement n'est pas généralisable pour prédire la microségrégation finale lorsque la séquence de solidification comporte une transformation péritectique.

III - 5.2. EFFET DE LA GEOMETRIE

III - 5.2.1. Comparaison des chemins de solidification

La figure III-21 représente le chemin de solidification du cas de référence en remplaçant l'hypothèse de la géométrie axisymétrique par celle de la géométrie plane ou sphérique. Un agrandissement de cette courbe sur le début de la solidification (figure III-21b) met en évidence le point suivant : le changement de courbure pour des fractions solides faibles déjà observé sur le cas de référence (III - 5.1) est amplifié pour une géométrie sphérique et atténué dans le cas d'une géométrie plane. La partie III - 5.1 a montré que ce phénomène était dû à la prise en compte de la diffusion dans le liquide. Ces différences peuvent être partiellement expliquées en étudiant l'évolution de la surface spécifique s/l au cours de la solidification pour les trois géométries, comme montré sur la figure III-22. La comparaison des cas extrêmes plan et sphérique montre que :

- Pour $f^s < 20\%$, $(S^s/l)_{\text{plan}} > (S^s/l)_{\text{sphérique}}$: aux faibles fractions solides, les échanges interfaciaux sont favorisés dans le cas plan et il est donc prévisible que la couche limite de diffusion dans le liquide dans le cas sphérique soit plus étroite que dans le cas plan. Par conséquent, pour une même fraction solide, la température calculée en sphérique est plus basse que celle calculée en plan ;
- Pour $f^s > 20\%$, $(S^s/l)_{\text{plan}} < (S^s/l)_{\text{sphérique}}$: la tendance s'inverse et T calculée dans le cas plan est plus basse que celle obtenue dans le cas sphérique.

En appliquant le même raisonnement à tous les cas, les positions respectives des chemins de solidification pour les trois géométries sont cohérentes avec l'évolution des surfaces spécifiques reproduite sur la figure III-22.

Sur l'ensemble de la solidification, c'est la géométrie sphérique qui favorise le plus les échanges interfaciaux entre le solide et le liquide. Par conséquent, c'est elle qui donne la température de solidus la plus élevée (voir tableau III-6). Cette analyse est cohérente avec les profils cumulés de microségrégation finale en nickel (voir figure III-23) puisqu'on y observe clairement $(w_{\text{Ni}}^{\text{max}})_{\text{sphérique}} < (w_{\text{Ni}}^{\text{max}})_{\text{axisymétrique}} < (w_{\text{Ni}}^{\text{max}})_{\text{plan}}$.

III - 5.3. EFFET DE LA MATURATION

Le cas de référence a été repris mais en tenant compte de la maturation selon la méthode présentée dans la partie II - 2.5. La valeur de λ_2 a été initialisée à $(\lambda_2)^0 = 10\mu\text{m}$. L'évolution de $\lambda_2/2$ calculée est représentée sur la figure III-25.

Le début de la transformation péritectique s'accompagne d'une rupture de pentes de la courbe d'évolution de λ . Lorsque la fraction solide atteint 80%, λ se stabilise à $\lambda_f = 32\mu\text{m}$.

Pour étudier l'effet de la maturation, le même calcul a été effectué mais en prenant λ fixe et égal à λ_f . Les profils cumulés calculés avec et sans maturation sont représentés sur la figure III-26. Ceux-ci montrent dans les deux cas le même aspect qualitatif que le profil cumulé de la figure III-18f)

mais la microségrégation finale est moins sévère avec que sans maturation, comme le montre le tableau III-7.

Ces résultats étaient prévisibles pour deux raisons :

- Le modèle prend en compte le terme d'homogénéisation inhérente à la maturation (I - 4.3.2);
- Dans le cas avec maturation, $\lambda \leq \lambda_f$ durant toute la maturation. Par conséquent, et comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, il est normal que $w_{Ni}^{max}(\text{maturation}) < w_{Ni}^{max}(\text{sans maturation})$.

III - 5.4. EFFET DE LA SURFUSION SUR LA MICROSEGREGATION

Pour $D^l(C) = 10^{-8} \text{m}^2/\text{s}$, $D^l(Ni) = 2.10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$, $U_{pp} = 4.10^{-5} \text{m/s}$ et $\bar{G}_T = 2,5^\circ\text{C/mm}$, l'application de l'algorithme décrit dans l'annexe I donne les résultats suivants pour les compositions nominales choisies :

- $T_{liq}^{\delta} = 1516,8^\circ\text{C}$, la surfusion calculée pour une solidification primaire en ferrite est $\Delta T^{\delta} = 1,15^\circ\text{C}$, à laquelle correspond un rayon de pointe $r_p^{\delta} = 10,5 \mu\text{m}$. Par conséquent :

$$T_{pointe}^{\delta} = T_{liq}^{\delta} - \Delta T^{\delta} = 1515,7^\circ\text{C}$$
- De même, $T_{liq}^{\gamma} = 1515,5^\circ\text{C}$, la surfusion calculée pour une solidification primaire en austénite est $\Delta T^{\gamma} = 0,66^\circ\text{C}$, à laquelle correspond un rayon de pointe $r_p^{\gamma} = 20,5 \mu\text{m}$, d'où :

$$T_{pointe}^{\gamma} = T_{liq}^{\gamma} - \Delta T^{\gamma} = 1514,8^\circ\text{C}$$

Comme $T_{pointe}^{\gamma} < T_{pointe}^{\delta}$, la phase primaire à solidifier est la ferrite. Les compositions aux pointes correspondantes sont :

$$w^{pointe}(C) = 7,33.10^{-2} \% \text{mass}$$

$$w^{pointe}(Ni) = 4,18 \% \text{mass}$$

La figure III-27 compare les profils cumulés finaux en nickel obtenus en prenant en compte ou non la surfusion à la pointe primaire.

On constate que pour une fraction cumulée comprise entre 0 et 20%, la surfusion induit un titre massique en nickel plus élevé de 0,1%mass. Au début de la solidification, la surfusion induit que la première fraction de solide déposée a un titre massique plus élevé : en effet, il est de $k_{Ni}^{\delta/1} w_{Ni}^0$ sans surfusion soit 3,16% alors qu'il est de $k_{Ni}^{\delta/1} w_{Ni}^{pointe}$ avec surfusion, soit 3,30%. La différence observée pour les faibles fractions cumulées peut être interprétée comme une trace de la différence du titre massique de la première fraction solide déposée. Cependant, cette différence tend à s'estomper durant la solidification.

III - 5.5. EFFET DE LA MORPHOLOGIE DES DENDRITES

III - 5.5.1. Morphologie complexe sans prise en compte de la maturation

Les résultats présentés dans cette partie ont été obtenus en prenant en compte la surfusion aux pointes primaires ainsi que la morphologie complexe des dendrites dont la modélisation est présentée dans le chapitre II. La distance entre bras primaires λ_1 est prise égale à 550 μm et la distance entre bras secondaires est fixée à 130 μm .

III - 5.5.1.1. Evolution des taux de phases

La figure III-28 montre l'évolution de la fraction de ferrite, de solide et d'enveloppe au cours du refroidissement :

- Au début de la solidification, la fraction d'enveloppe croît plus vite que la fraction solide.

Par conséquent, la fraction interne de solide définie par la grandeur $\frac{g^s}{g^{env}}$ diminue fortement au tout début de la solidification ce qui conduit à une dendritification de la structure de solidification. La fraction interne de solide dans l'enveloppe atteint son minimum de 40% peu de temps après le début de la solidification. Dans le même temps, la fraction d'enveloppe est de 35%.

- Dans un deuxième temps, la croissance de l'enveloppe est brusquement ralentie. Dans le modèle, son évolution est contrôlée par la vitesse des pointes secondaires de dendrites (équation 2.4). La figure III-29 montre que la vitesse initiale des pointes secondaires de dendrites $(U_{ps})^0$ est égale à la vitesse de la pointe primaire. Après une faible hausse de la vitesse des pointes secondaires, celle-ci chute brutalement et devient pratiquement nulle pour $T = 1514,5^\circ\text{C}$. Dans le modèle, la vitesse des pointes secondaires est calculée à partir

de la force motrice $\Delta T = \sum_i m_i^{1/s} (w_i^{li} - \bar{w}_i^{le})$. Au début de la solidification, w_i^{li} est initialisé à w_i^{pp}

et \bar{w}_i^{le} à w_i^0 (voir figure III-30). Sous l'effet de la diffusion dans le liquide, \bar{w}_i^{le} augmente plus rapidement que w_i^{li} si bien que $(w_i^{li} - \bar{w}_i^{le})$ tend à diminuer en cours de solidification. Il en est donc de même pour ΔT et donc pour U_{ps} . Dans le même temps, la fraction solide augmente. En résumé, la fraction interne de solide augmente et la structure de solidification se compactifie. La structure est complètement compacte quand la fraction interne vaut 1, c'est-à-dire peu après le début de la transformation péritectique.

Sous l'effet du ralentissement des pointes secondaires de dendrites, le rayon des pointes secondaires r_{ps} tend à augmenter comme le montre la figure III-29b). Dans le même temps, la distance sur laquelle s'étend le liquide extradendritique résiduel devant les pointes secondaires d_{ext} diminue. La validité de la formulation d'Ivantsov pour calculer U_{ps} repose sur l'hypothèse d'un milieu semi-infini devant la pointe qui croît. Pour $d_{ext} > 5r_{ps}$, on peut considérer cette formulation comme encore valable. Or la figure III-29b) nous montre que ceci n'est vrai que jusqu'à $T = 1514,5^\circ\text{C}$ environ. Ceci constitue donc une limite importante de notre modèle.

III - 5.5.1.2. Evolution des grandeurs morphologiques

La figure III-31a) montre l'évolution non monotone de la surface spécifique de l'interface s/l au cours de la solidification, que l'on peut diviser en trois stades :

- Entre le début de la solidification et jusqu'à $T = 1514^\circ\text{C}$, $S_v^{s/l}$ augmente et atteint approximativement la valeur maximale de 10^4 m^{-1} ;
- $S_v^{s/l}$ commence à diminuer juste avant le début de la transformation péritectique. Cette diminution se poursuit durant la transformation péritectique jusqu'à $T = 1512^\circ\text{C}$;
- $S_v^{s/l}$ augmente à nouveau jusqu'à la fin de la solidification.

Le premier stade provient de la croissance de la phase solide primaire. Cependant, la figure II.6 a montré qu'à partir d'une certaine fraction interne de solide, la surface spécifique diminue lorsque la fraction interne augmente. C'est ce qui est observé pendant le deuxième stade : la fraction d'enveloppe n'évolue plus tandis que la fraction solide continue à augmenter, donc $g_{i,s}$ finit par atteindre une valeur suffisante pour provoquer une diminution de la surface spécifique. Lorsque $g_{i,s}$ vaut 1, la structure de solidification est compacte, $S_v^{s/l}$ augmente donc à nouveau avec l'augmentation de la fraction solide, ce qui correspond au troisième stade.

La figure III-31a) représente également l'évolution non monotone de la surface spécifique de l'interface δ/γ au cours de transformation péritectique :

- Au début de celle-ci, $S_v^{\delta/\gamma}$ est initialisée à $S_v^{sp/l}$, c'est-à-dire $9.10^3 m^{-1}$. $S_v^{\delta/\gamma}$ augmente jusqu'à atteindre la valeur maximale de $1,3.10^4 m^{-1}$. La température est alors de $1511^\circ C$.
- A partir de $T = 1511^\circ C$, $S_v^{\delta/\gamma}$ diminue jusqu'à disparition complète de la ferrite.

L'augmentation de $S_v^{\delta/\gamma}$ observée entre $T = 1513^\circ C$ et $T = 1511^\circ C$ a deux contributions :

- Au début de la transformation péritectique, la fraction interne de ferrite $g_{i,\delta}$ est de 0,9. Au cours de la transformation péritectique, la fraction de ferrite diminue tandis que la fraction d'enveloppe augmente, comme le montre la figure III-28a) si bien que $g_{i,\delta}$ diminue. Par conséquent, comme l'indique la figure II-6, le sous-réseau ferritique dans la matrice austénitique se dendritifie si bien que $S_v^{\delta/\gamma}$ augmente si l'on suppose que l'enveloppe n'évolue pas dans le même laps de temps.
- Au cours de la solidification, g^{env} et S_v^{env} augmentent or, d'après (2.15), $S_v^{\delta/\gamma}$ est une fonction croissante de ces deux paramètres.

A partir de $T = 1511^\circ C$, $g_{i,\delta}$ diminue jusqu'à entrer dans le régime I défini dans la partie II - 1.2.3. Par conséquent, d'après la figure II-6, $S_v^{\delta/\gamma}$ diminue lorsque $g_{i,\delta}$ diminue, si l'on raisonne avec une enveloppe fixe au cours du temps. Or, au cours de la solidification, g^{env} et S_v^{env} augmentent. Il s'agit donc de 2 effets antagonistes mais c'est le premier qui l'emporte d'où la diminution de $S_v^{\delta/\gamma}$ observée à partir de $T = 1511^\circ C$.

La figure III-31b) représente l'évolution des rayons caractéristiques pendant la solidification (voir II - 1.2.3). Au tout début de la solidification primaire, r^δ augmente rapidement puis diminue au cours de la dendritification qui a lieu juste derrière la pointe. Puis r^δ augmente à nouveau jusqu'au début la transformation péritectique. Au cours de celle-ci, r^δ diminue avec la fraction de ferrite et r^γ augmente avec la fraction solide.

III - 5.5.2. Morphologie complexe avec prise en compte de la maturation

Dans cette partie, le modèle à morphologie complexe a été utilisé en prenant en compte la loi de maturation spécifiée dans H2.3. La valeur de λ_2 a été initialisée à $(\lambda_2)^0 = 10\mu m$. L'évolution de λ_2 calculée est représentée sur la figure III-32. Lorsque la fraction interne de solide atteint 80%, $(\lambda_2)_f$ vaut $48\mu m$. Si l'on compare ce calcul avec celui mené pour une géométrie simplifiée (III - 5.3), on constate la différence suivante : la maturation s'arrête plus tôt au cours de la solidification dans le cas d'une morphologie complexe ($T = 1513^\circ C$) que dans le cas d'une morphologie simplifiée ($T =$

1509°C), si bien que $(\lambda_2)_f$ obtenue pour une géométrie simplifiée est plus grand que celui obtenu pour une morphologie complexe.

La figure III-33 compare les deux profils cumulés en nickel obtenus en fin de solidification suivant que l'on prend en compte ou non la maturation. Ces deux profils diffèrent par leur allure pour des fractions cumulées inférieures à 50% : lorsque la maturation n'est pas prise en compte, le changement de pente que l'on observe déjà sur le cas de référence (figure III-18e) est encore visible mais de manière beaucoup moins marquée. En revanche, sur la figure III-33b), cette rupture de pente a complètement disparu. Cette différence rappelle celle constatée dans la partie III - 5.1 et a déjà été interprétée de la manière suivante : si la diffusion du nickel dans la ferrite est favorisée pendant la transformation péritectique, on constate la présence d'une courbure négative très prononcée pour des fractions cumulées faibles.

Le calcul sans maturation a été effectué en prenant $\lambda_2 = 130 \mu\text{m}$. Il en découle donc que, comme le montre la figure III-34 :

- $S_v^{\delta/\gamma}$ est plus grande en cours de solidification dans le calcul « avec maturation » que dans le calcul « sans maturation »
- r^δ est plus faible en cours de solidification dans le calcul « avec maturation » que dans le calcul « sans maturation ».

Ces deux constats contribuent à expliquer pourquoi les effets diffusifs du nickel sont favorisés dans le calcul « avec maturation » par rapport au calcul « sans maturation ».

III - 6. CONCLUSION

L'étude de l'influence des paramètres numériques du modèle a permis de montrer que :

- Les résultats générés par le modèle étaient peu sensibles au pas de temps microscopique δt sur une gamme de variation [10^{-2}s ; 1s] ;
- Un nombre très limité de mailles est requis pour traiter correctement la microségrégation primaire. En revanche, le comportement de l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique est plus sensible au nombre de mailles adopté.

L'étude de l'influence des paramètres physiques du modèle révèle que :

- Dans le cas d'une morphologie simplifiée, les profils de microségrégation sont sensibles au choix de la distance caractéristique λ . En particulier, des modèles et notions théoriques établis dans des cas simplifiés (modèle de Fredriksson, faux paraéquilibre) ont permis de mieux comprendre le phénomène de régression de la ferrite selon que $\lambda = 65\mu\text{m}$ ou $\lambda = 275\mu\text{m}$. La comparaison des résultats entre ces deux cas a montré que l'application du critère de Fourier n'était pas valable lorsque la séquence de solidification comportait une transformation péritectique.
- Sur le cas de référence choisi, la géométrie ne semble pas avoir une influence très marquée sur les profils cumulés.
- L'application du modèle à morphologie complexe montre que la compaction du réseau dendritique se produit rapidement derrière les pointes primaires, juste après le début de la transformation péritectique.

Au cours de ce chapitre, il a été montré que la régression de la ferrite influençait de manière déterminante l'évolution de la teneur en carbone dans le liquide, alors qu'elle n'avait pratiquement

aucun effet sur celle du nickel. Comme nous le verrons dans le chapitre V, ce résultat est à prendre en considération pour expliquer théoriquement les profils de macroségrégation obtenus dans des lingots pour des alliages comportant une transformation péritectique.

IV - APPLICATION ET VALIDATION DU MODELE AVEC LES TRAVAUX D'ADDAD

Parallèlement à ce travail, une thèse à caractère expérimental a été menée par Addad [88] pour caractériser :

- **la formation de la microségrégation en cours de solidification** : à cet effet, des essais de **Trempe en cours de Solidification Dirigée (T.S.D.)** ont été réalisés. Lors de ce type d'essai, l'échantillon est placé dans un dispositif vertical comprenant dans sa partie haute un système de chauffage et dans sa partie basse un système de refroidissement. On impose un mouvement de translation verticale du dispositif de la zone chaude vers la zone froide à vitesse constante. En régime stationnaire, cette vitesse est en valeur absolue la vitesse des pointes primaires de dendrites. Le gradient de température peut être estimé au moyen d'un thermocouple se déplaçant avec l'échantillon. L'intérêt de ce dispositif est de pouvoir faire varier indépendamment le gradient G_T et la vitesse du front V , qui sont deux valeurs d'entrée du modèle de microségrégation. La trempe permet de « figer » les microstructures de solidification. Elle consiste en une augmentation brusque de la vitesse d'extraction de l'échantillon, ce qui entraîne une solidification rapide du liquide résiduel dans le barreau. On suppose que la phase de trempe est suffisamment rapide pour ne pas avoir d'influence sur la ségrégation chimique. Les conditions brusques de la trempe ainsi que le dispositif de la T.S.D. imposent un diamètre limite pour l'échantillon qui est de 5mm. A partir des coupes transversales de cet échantillon, la microségrégation est caractérisée selon un protocole expérimental exposé dans la référence [88].
- **la microségrégation finale** : à cet effet, des essais de **Solidification Dirigée (S.D.)** ont été réalisés. Dans ce cas-là, le principe du dispositif expérimental est le même mais il n'y a pas de trempe en cours de solidification. Le barreau est porté à température ambiante sans choc. A partir des coupes transversales de cet échantillon, la microségrégation finale est caractérisée selon un protocole expérimental exposé dans la référence [88]. Ce type de microségrégation peut être assimilé à celle que l'on pourrait observer sur des lingots à l'état brut de coulée. Dans la mesure où l'échantillon ne subit pas de choc thermique, son diamètre est fixé à 20mm.

Le travail d'Addad a porté entre autres sur des alliages ternaires Fe-Ni-C dont les compositions nominales sont spécifiées dans le tableau IV-1. Expérimentalement, il y a apparition d'un canal ségrégué plus riche en nickel au centre du barreau de TSD de l'alliage 1. Les résultats du modèle ont été comparés avec les résultats expérimentaux obtenus dans la zone extérieure au canal, d'où le choix de la composition initiale en nickel $w_{Ni}^0 = 3,91\%$.

Les calculs ont été effectués avec le maillage spécifié dans le tableau III-2 et les coefficients de diffusion du tableau A4-1.

Détermination expérimentale de la microségrégation

La caractérisation de la microségrégation peut se faire au moyen de deux méthodes différentes qui sont plus amplement détaillées dans la référence [88]:

- **Les profils de composition linéiques**, qui montrent la variation de composition le long d'une direction choisie. Les mesures de composition sont effectuées à partir d'une coupe longitudinale ou transversale. Un paramètre important est la distance entre chaque mesure choisie pour établir les profils. Si l'on veut pouvoir cerner des variations de composition au sein d'une phase, celle-ci doit être suffisamment faible par rapport aux distances caractéristiques du réseau dendritique. L'inconvénient de cette représentation est que les profils dépendent fortement du choix de la direction pour effectuer les mesures. En effet, les structures de solidification dendritiques sont fortement anisotropes. Il est donc difficile de quantifier la microségrégation par ce procédé et surtout de comparer ces profils à ceux calculés par le modèle présenté dans le chapitre II. Les profils linéiques ne sont donc pas statistiquement représentatifs.
- **Les profils cumulés** : ils sont établis à partir d'une coupe transversale d'un barreau de SD ou de TSD. Au cours de l'étape dite d'échantillonnage, une grille de points d'analyse est définie. L'enjeu de cette étape est la détermination d'une zone d'analyse statistiquement représentative. Les mesures de composition sont effectuées pour chaque point de la zone d'analyse. Le nombre total de points est noté N_{tot} . Ces mesures sont ensuite classées dans l'ordre croissant est à la composition $w(I)$ est affectée la fraction cumulée $f_{cum}(I)$ suivante :

$$f_{cum}(I) = \sum_{I'; w(I') \leq w(I)} 1/N_{tot} \quad (4.1)$$

Le profil cumulé expérimental est obtenu en traçant $w(I)$ en fonction de $f_{cum}(I)$. Ce type de représentation est considéré comme l'analogue du profil cumulé calculé à partir du profil linéique de compositions comme exposé dans la partie III - 5.1.2. Cette méthode permet de cerner la variabilité globale de la composition sur la coupe transversale analysée. L'avantage par rapport aux profils linéiques est que le profil cumulé est statistiquement représentatif. Par conséquent, c'est ce type de caractérisation de la microségrégation qui est retenu pour des comparaisons ultérieures avec les résultats numériques. Cependant, comme le montreront certains exemples détaillés ci-dessous, certaines informations qualitatives relatives à l'établissement de la microségrégation sont perdues lors de ce type de traitement. Lors de la trempe, le liquide résiduel solidifie très rapidement et laisse ainsi place à une ségrégation de type Gulliver-Scheil tandis que la ségrégation dans le solide est figée. Par conséquent, l'observation d'un profil cumulé de microségrégation à partir d'un échantillon trempé donne théoriquement accès directement à la ségrégation dans le solide mais pas à la distribution du soluté dans le liquide au moment de la trempe. C'est la raison pour laquelle seule \bar{w}_{exp}^1 est représentée sur les profils cumulés expérimentaux (pour plus de détails, voir référence [88]) :

$$\bar{w}_{exp}^1 = \sum_{I'; I' \in liq} w_{exp}(I')/N(liq) \quad (4.2)$$

C'est cette composition moyenne qui est comparée aux résultats numériques.

La caractérisation expérimentale de la microségrégation a été faite uniquement sur le nickel et non sur le carbone pour des raisons exposées dans la référence [88].

Détermination expérimentale des microstructures

La mesure des grandeurs caractéristiques suivantes a été effectuée par Addad :

- La distance entre bras primaires de dendrites λ_1 a été mesurée à partir de coupes transversales découpées dans les barreaux $\phi 20$ de SD. Comme le montre Addad dans la référence [88], λ_1 n'est pas uniforme dans une même coupe transversale. Un exemple de distribution de λ_1 obtenue pour l'alliage 2 est représenté sur la figure IV-1.
- La distance entre bras secondaires de dendrites λ_2 est mesurée directement sur la section longitudinale d'un barreau de TSD.

Les simulations numériques présentées dans cette partie ont été menées principalement sur trois cas de référence :

- **Cas de référence 1** : utilisation du modèle à morphologie simplifiée en supposant que la géométrie du domaine de microségrégation est axisymétrique et que la taille du domaine est égale à $\lambda_1/2$, où λ_1 est la valeur moyenne expérimentale de la distance entre bras primaires de dendrites mesurée par Addad comme décrit précédemment. La surfusion aux pointes primaires de dendrites a été prise en compte dans les calculs mais pas la maturation.
- **Cas de référence 2** : utilisation du modèle à morphologie simplifiée en supposant que la géométrie du domaine de microségrégation est axisymétrique et que la taille du domaine est égale à $\lambda_2/2$, où λ_2 est la valeur moyenne expérimentale de la distance entre bras secondaires de dendrites mesurée par Addad. La surfusion aux pointes primaires de dendrites a été prise en compte mais pas la maturation.
- **Cas de référence 3** : utilisation du modèle à morphologie complexe avec les mêmes valeurs de λ_1 et de λ_2 que celles utilisées dans les cas de référence 1 et 2. La surfusion aux pointes de dendrites est prise en compte mais pas la maturation.

Comme l'a montré la partie III - 5.1, l'influence de λ sur la microségrégation est significative. C'est la raison pour laquelle l'accent a été mis sur l'étude de l'influence de λ dans la définition des cas de référence.

IV - 1. FORMATION DE LA MICROSEGREGATION

IV - 1.1. ALLIAGE FE-4%NI-0,4%C

Cet alliage a subi une trempe en cours de solidification dirigée dont la vitesse d'extraction V est de 2,4mm/min. Le gradient thermique moyen G_T dans la zone pâteuse a été estimé à 1,55°C/mm.

IV - 1.1.1. Etude métallographique

Elle a été effectuée par Addad [88] et a permis de montrer les résultats suivants :

- La valeur moyenne mesurée pour λ_1 est de 850 μ m et celle obtenue pour λ_2 est de 140 μ m.
- La séquence de solidification est : liquide \rightarrow liquide+ γ \rightarrow γ

La séquence de solidification de l'alliage 1 prédite par le modèle dans les 3 cas de référence est : liquide \rightarrow liquide+ γ \rightarrow γ , ce qui correspond aux observations expérimentales. La température de liquidus calculée est de 1498,3°C. La surfusion aux pointes de dendrites primaires calculée avec les

conditions thermiques précisées ci-dessus est de 1,5°C, d'où une température de pointe $T^{\text{pointe}} = 1496,8^{\circ}\text{C}$. Le rayon de pointe correspondant est de 12,5µm, et les compositions du liquide à la pointe primaire sont $w_{\text{Ni}}^{\text{pointe}} = 4\%\text{mass}$ et $w_{\text{C}}^{\text{pointe}} = 0,36\%\text{mass}$. Le chemin de solidification de l'alliage est représenté sur la figure IV-2 pour les trois cas de référence. La température de fin de solidification est plus élevée pour le cas 1 que pour le cas 2, ce qui est conforme à la théorie.

IV - 1.1.2. Etude de la microségrégation

La figure IV-3 représente un premier mode de représentation des résultats pouvant être généré par le modèle à morphologie simplifiée : le profil linéique en nickel le long de la coordonnée spatiale r qui varie entre 0 et λ . Cette représentation est possible car le modèle est mono-dimensionnel. Le profil linéique (figure IV-3a) est converti en profil cumulé (figure IV-3b) selon la procédure exposée dans la partie III - 5.1.2.

Critère de comparaison quantitative entre le modèle et l'expérience :

Pour des raisons exposées dans la partie IV - 1.2.2, les profils cumulés obtenus par le modèle et l'expérience sont comparés pour des fractions de liquide résiduelles identiques. La figure IV-4a) et la figure IV-5a) représentent les profils cumulés obtenus par Addad à partir de coupes transversales d'un barreau de TSD de l'alliage 1, dont les fractions liquides résiduelles correspondantes sont 30% et 20%. Les profils cumulés calculés par le modèle pour les 3 cas de référence ont donc été représentés quand il reste 30% et 20% de liquide dans le domaine représentatif de la microségrégation sur les figures IV-4b, c), d) et les figures IV-5b, c), d). Leur observation révèle que :

- Il n'y a pas de différence entre les profils générés par le modèle pour les 3 cas de référence ;
- Les titres massiques moyens en nickel dans le liquide prédits par le modèle et obtenus par l'expérience diffèrent de moins de 0,2%mass au cours de la solidification ;
- Le modèle de microségrégation ne reproduit pas la courbure négative observée pour les faibles fractions solides sur la figure IV-4a) et la figure IV-5a). Lacaze et Lesoult [103] ont avancé l'idée que cette courbure était due à l'effet de bruitage associé aux mesures de compositions par la microsonde, ce qui induit une erreur à l'origine dans les profils cumulés ;
- Les profils cumulés établis expérimentalement au cours de la solidification montrent que la rétrodiffusion est négligeable, ce qui est en accord avec les résultats du modèle.

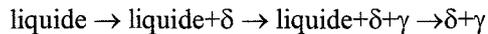
En conclusion, l'allure générale des profils expérimentaux est bien reproduite par le modèle. Dans cet exemple, le modèle prédit que le titre massique en nickel le plus faible est atteint au cœur des dendrites au cours de la solidification, ce qui est confirmé par les observations expérimentales.

IV - 1.2. ALLIAGE FE-4%NI-0,1%C

IV - 1.2.1. Etude métallographique

Cet alliage est celui choisi comme cas de référence dans le chapitre III. L'étude métallographique menée par Addad a donné les résultats suivants :

- La valeur moyenne obtenue pour la distance entre bras primaires de dendrites λ_1 est de 550µm et celle mesurée pour λ_2 est de 130µm.
- La séquence de solidification est la suivante :



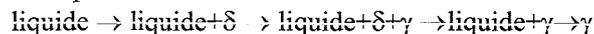
- Pendant la transformation péritectique, l'austénite forme une couche entre la ferrite et le liquide, comme le montre la figure IV-6 : l'hypothèse H1.7 du modèle pour traiter la transformation péritectique semble donc adaptée.

La méthode expérimentale de détermination des fractions de phases est présentée dans la référence [88]. D'après la figure IV-7a) et l'étude métallographique :

- La mesure des fractions de phases n'a pu être faite pendant la solidification primaire que pour une seule température, en raison du très faible intervalle de solidification de l'alliage considéré (de l'ordre de 20°C). L'évolution de la fraction ferritique pendant la solidification primaire n'a donc pu être suivie ;
- le début de la transformation péritectique est repéré à une température T_p^{exp} comprise entre 1515°C et 1516°C ;
- Pendant la transformation péritectique, les fractions de liquide et de ferrite diminuent tandis que la fraction d'austénite augmente. En particulier, la vitesse de régression de la ferrite, définie comme la quantité $\frac{dg_\delta}{dt}$, diminue au cours de la transformation péritectique ;
- De la ferrite résiduelle est encore présente en fin de solidification.

Les évolutions des fractions de phases en cours de solidification calculées pour les trois cas de référence ont été reportées sur la figure IV-7b) :

- Les trois simulations prédisent un début de transformation péritectique à $T_p^{\text{calc}} = 1513^\circ\text{C}$. La différence $|T_p^{\text{exp}} - T_p^{\text{calc}}|$ se situe dans l'intervalle d'incertitude des mesures fournies par le thermocouple ;
- La vitesse de régression de la ferrite n'a pas la même évolution suivant les différents cas de référence, ce qui a déjà été justifié dans la partie III - 5.1. Pour le cas de référence 1, cette vitesse augmente au cours de la transformation péritectique, alors qu'elle diminue pour le cas de référence 2. Pour le cas de référence 3, la régression a un comportement intermédiaire, augmentant très légèrement dans un premier stade de la transformation puis diminuant très nettement en fin de transformation. Seuls les cas de référence 2 et 3 reproduisent donc qualitativement l'évolution de la fraction de ferrite au cours de solidification ;
- Dans les trois simulations, la fraction de ferrite résiduelle est nulle en fin de solidification. Les températures de disparition de la ferrite T_{fp} sont indiquées pour les trois cas de référence dans le tableau IV-2. La séquence de solidification calculée est donc la suivante :



Il s'agit d'une contradiction majeure avec l'étude métallographique d'Addad qui conclut qu'il reste un peu moins de 10% de ferrite en fin de solidification.

IV - 1.2.2. Etude de la microségrégation

IV - 1.2.2.1. Profil linéique

Addad a établi le profil linéique de composition en nickel représenté sur la figure IV-8b) à partir d'une coupe transversale d'un barreau trempé de l'alliage 2. La température expérimentale correspondante à cette coupe est $T = 1515^\circ\text{C}$ et la fraction liquide mesurée est $g^l = 30\%$. L'abscisse $r = 0$ correspond au centre d'une dendrite primaire et $r = 120\mu\text{m}$ à la région interdendritique environnant cette même dendrite primaire. La figure IV-8b) montre que la distance entre chaque

mesure de composition a été fixée à 5 μ m. Plus de détails sur l'obtention de ce profil sont donnés dans la référence [88]. Contrairement au profil cumulé, le titre massique du liquide dans le profil linéique expérimental n'a pas été moyenné. L'observation de la figure IV-8b) montre que le profil linéique expérimental n'est pas monotone suivant la direction r :

- entre r = 0 et r = 60 μ m, le titre massique en nickel diminue quand r augmente ;
- entre r = 60 et r = 110 μ m, le titre massique en nickel augmente avec r et présente deux changements de pentes en r₁ = 70 μ m et en r₂ = 90 μ m.

Ce profil permet qualitativement de valider les résultats relatifs au profil calculé par le modèle dans le cas de référence 1 et représenté sur la figure IV-8a) :

- la décroissance du profil dans la ferrite est bien reproduite par le modèle ;
- le premier changement de pentes en r₁ présent dans le domaine austénitique peut être assimilé à celui obtenu par les calculs et permettant théoriquement de distinguer l'austénite formée à partir de la ferrite et l'austénite formée à partir du liquide.

IV - 1.2.2.2. Profil cumulé

Les figures IV-10a) et IV-11a) représentent le profil cumulé expérimental du titre massique en nickel à deux instants différents de la transformation péritectique. Qualitativement, le profil cumulé de la figure IV-10a) est bien différent de celui de la figure IV-4a) ou de la figure IV-5a). Il présente en effet une rupture de pente dans le domaine solide qui le divise en deux « paliers » de compositions distinctes. Cette rupture se situe à une fraction cumulée d'environ 30%. Notons (f^{δ})_{exp} cette fraction. A priori, l'hypothèse suivante peut être faite :

H4.1 : cette rupture est attribuée à la solubilité différente du nickel dans la ferrite et l'austénite. Elle est donc une trace chimique de l'interface δ/γ .

Pour ce profil, $\bar{w}_{Ni} = 3,97\%$ mass et (w_{Ni}^l)_{exp} = 4,3%mass. La fraction de liquide résiduelle correspondante est de 35% et la température estimée expérimentalement est de T^{pointe}-2°C. L'incertitude sur la détermination expérimentale de la température est de $\pm 3^\circ\text{C}$, ce qui correspond à environ 20% de l'intervalle de solidification calculé pour cet alliage. Pour réaliser les comparaisons entre les résultats expérimentaux et les calculs, il a donc semblé préférable de choisir des fractions de liquide résiduelles identiques.

Les figures IV-10b), c) et d) représentent les profils cumulés en nickel calculés pour les 3 cas de référence. Pour le résultat de la figure IV-10b), par exemple, le profil cumulé peut être facilement déduit du profil linéique donné par le modèle, comme exposé dans la partie III - 5.1.2 (figure IV-9). La conversion du profil linéique en profil cumulé appelle quelques commentaires. Le titre massique en nickel le plus faible sur le profil linéique de la figure IV-9a) n'est pas atteint au cœur de la dendrite comme c'était le cas pour l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C, mais à l'interface δ/γ dans la ferrite. Ainsi, par définition du profil cumulé, le modèle prédit que la composition à l'origine de la courbe fraction cumulée de la figure IV-9b) correspond à $w_{Ni}^{\delta/\gamma}$ et non à $w_{Ni}^{\delta}(r = 0)$ au cœur de la dendrite. En appliquant la même méthodologie pour les trois cas de référence, on obtient les courbes des figures IV-10b), c) et d).

La comparaison des différents résultats numériques entre eux montre que :

- Le titre massique en nickel dans le liquide est uniforme et $\bar{w}_{Ni}^l = 4,6\%mass$ dans les trois cas de référence ;
- Le changement de pentes dans l'austénite apparaît dans les trois cas mais il est d'autant plus sévère que les effets diffusifs du nickel dans l'austénite sont faibles. Par conséquent, cette rupture de pente est la plus marquée pour le cas de référence 1, la plus atténuée pour le cas de référence 2, le cas 3 étant un cas intermédiaire.

Ces résultats permettent d'offrir une interprétation nouvelle à la rupture de pente observée sur la courbe expérimentale de la figure IV-10a). Dans les trois cas, $(f^s)_p$ calculée est de 33%. C'est à cette fraction cumulée que se situe sur les simulations la frontière entre l'austénite issue de la régression de la ferrite et l'austénite issue de la solidification directe du liquide. En comparant les figures IV-10a) et IV-10b), c) et d), $(f^s)_{exp}$ est pratiquement égal à $(f^s)_p$: la rupture de pente de la figure IV-10a) correspond donc à la frontière entre l'austénite issue de la régression de la ferrite et l'austénite issue de la solidification directe du liquide, et non à la position de l'interface δ/γ , ce qui permet donc d'invalider l'hypothèse H4.1.

La figure IV-11a) représente le profil cumulé expérimental du titre massique en nickel pour un stade plus avancé de la transformation péritectique. Qualitativement, ce profil est différent de celui de la figure IV-10a) :

- Il n'y a plus de trace de rupture de pente pour $(f^s)_{exp} = 30\%$, mais une courbure négative à l'origine du profil qui est beaucoup plus prononcée que celles qu'on pouvait déjà observer sur les profils cumulés expérimentaux de l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C (figure IV-4a) et IV-5a). Il est donc probable que celle-ci ait une origine autre que les effets de bruitage dus à la microsonde ;
- \bar{w}_{Ni}^l passe de 4,3 à 4,4%mass lorsque la fraction liquide passe de 35 à 20%. Cette variation est faible mais \bar{w}_{Ni} calculée à partir du profil de la figure IV-11a) est de 3,81%mass, contre 3,97%mass pour le profil expérimental cumulé figure IV-10a) : on peut donc imputer cette faible variation à la macroségrégation.

Les figures IV-11b), c) et d) représentent les résultats des simulations pour les 3 cas de référence qui peuvent être résumés comme suit :

- pour le cas de référence n°1, la rupture de pente dans la phase solide est encore nettement présente ;
- Dans le cas de référence n°2, celle-ci a pratiquement disparu et le profil cumulé est pratiquement linéaire dans la phase solide ;
- Dans le cas de référence n°3, cette rupture est encore présente mais de manière moins marquée que dans le cas n°1 ;
- dans tous les cas, $\bar{w}_{Ni}^l = 4,9\%mass$.

Les informations issues du modèle permettent donc de supposer que les effets diffusifs au sein de l'austénite ont fait disparaître le changement de pente présent plus tôt au cours de la transformation péritectique.

IV - 1.2.3. Etude morphologique

La figure IV-12a) représente l'évolution des grandeurs morphologiques permettant de caractériser l'état dendritique ou compact de la structure de solidification dans le cas de référence n°3. Les calculs prédisent que :

- Il y a une forte dendritification derrière la pointe des dendrites primaires ;
- La structure de solidification devient compacte (fraction interne = 1) peu après le début de la transformation péritectique.

Ces résultats ont été comparés qualitativement à l'évolution morphologique observée sur une coupe longitudinale représentée sur la figure IV-12b) :

- Dans la zone péritectique, la structure de solidification peut être décrite comme la superposition d'un réseau dendritique ferritique et d'un réseau dendritique austénitique. La structure dendritique ferritique y est beaucoup plus déchiquetée que la structure austénitique qui apparaît pratiquement compacte. Ces différences morphologiques en fonction du premier solide déposé δ ou γ sont exposées dans la référence [88] et ont déjà été caractérisées expérimentalement [3].
- La structure de solidification peut être considérée comme compacte dès le début de la transformation péritectique. La dendrite est alors entourée d'un mince filet de liquide résiduel autour de l'enveloppe compacte de solide.

Les informations morphologiques fournies par le modèle sont donc assez bonnes dans la mesure où elles prédisent une compaction complète de la structure de solidification juste après le début de la transformation péritectique, ce qui est confirmé par l'expérience.

En revanche, le modèle prédit que la phase de compaction est bien amorcée déjà pendant la solidification primaire, alors que cette compaction semble se produire brusquement dès le début de la transformation péritectique.

IV - 2. CARACTERISATION DE LA MICROSEGREGATION FINALE

Addad a caractérisé la microségrégation finale de deux manières :

- 1^{ère} méthode de caractérisation : à partir de barreaux de SD $\phi 20$ qui sont refroidis jusqu'à la température ambiante sans choc thermique avec les mêmes conditions que pendant la solidification.
- 2^{ème} méthode de caractérisation : à partir de barreaux de TSD en observant les coupes transversales où le liquide a complètement disparu au moment de la trempe.

Le modèle ne fait pas de distinction entre ces deux types de caractérisation et les profils cumulés présentés dans cette partie et issus du modèle sont ceux obtenus à l'instant où le liquide disparaît complètement du domaine représentatif de la microségrégation. En toute rigueur, il serait nécessaire de simuler toutes les transformations de phases ayant lieu à l'état solide lors du refroidissement qui amène l'échantillon à la température ambiante, si la microségrégation finale était caractérisée par la première méthode. Cependant, nous faisons dans cette partie l'hypothèse suivante :

H4.2 : la diffusion du nickel est suffisamment faible à l'état solide et à basse température pour considérer que la ségrégation chimique du soluté n'évolue pas lors des transformations à l'état solide ayant lieu lors du refroidissement de l'échantillon.

IV - 2.1. ALLIAGE FE-4%NI-0,4%C

La figure IV-13a) représente le profil cumulé expérimental obtenu en fin de solidification dirigée pour l'alliage 1 :

- Ce profil est linéaire pour des fractions cumulées comprises entre 20 et 80% ;
- $w_{Ni}^{min} = 3,5\%mass$ et $w_{Ni}^{max} = 4,4\%mass$ ce qui donne un taux de microségrégation $\tau_{Ni} = 1,26$.

La figure IV-13b) représente le profil calculé par la loi de Gulliver-Scheil pour le même alliage :

$$\frac{w^{1/s}}{w^0} = (1-f^s)^{k-1} \quad (4.3)$$

Le modèle prédit que $k_{Ni}^{l/l} = 0,91$ au tout début de la solidification pour les trois cas de référence. k a donc été fixé à cette valeur dans l'expression (4.4). On constate que la loi de Gulliver-Scheil n'est pas dans ce cas apte à reproduire le profil cumulé expérimental.

Les résultats obtenus sur les trois cas de référence sont représentés dans les figures IV-13c), d) et e). $w_{Ni}^{min} = 3,6\%mass$ dans les 3 cas. L'application du critère de Fourier laisse prévoir que $\tau_{Ni}(\text{cas de référence 1}) > \tau_{Ni}(\text{cas de référence 2})$, ce qui est cohérent avec les résultats du modèle.

En conclusion, le profil calculé dans le cas de référence 2 est celui qui se rapproche le plus du profil cumulé expérimental.

IV - 2.2. ALLIAGE FE-4%NI-0,1%C

La figure IV-14a) représente le profil cumulé expérimental obtenu en fin de solidification dirigée. Pour cet alliage, Addad a montré que le profil cumulé final mesuré en toute fin de solidification à partir d'une coupe transversale d'un barreau de TSD (2^{ème} méthode de caractérisation) est confondu avec le profil mesuré en fin de solidification dirigée (1^{ère} méthode de caractérisation), ce qui justifie dans ce cas l'hypothèse H4.2 faite plus haut. Ce profil peut être décrit comme suit :

- Pour des fractions cumulées comprises entre 20% et 90%, il est pratiquement linéaire ;
- Pour des fractions cumulées < 20%, on reconnaît la courbure fortement négative déjà observée au cours de la solidification (figure IV-11a) ;
- Le titre massique en nickel maximal w_{Ni}^{max} est de 4,8%mass.

La figure IV-14b) représente le profil calculé par loi de Gulliver-Scheil pour le même alliage. D'après la figure III-1, $k_{Ni}^{s/l}$ au début de la solidification de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C est 0,79. k a donc été fixé à cette valeur dans l'expression (4.4). On constate que la loi de Gulliver-Scheil n'est pas ici apte à reproduire le profil cumulé expérimental. Ceci semble normal dans la mesure où la transformation péritectique n'est pas du tout prise en compte.

Le modèle de Gulliver-Scheil a donc été adapté de la manière suivante : la variation de $k_{Ni}^{s/l}$ en cours de solidification est prise en compte et calculée par Thermo-Calc en utilisant le même type de couplage que celui exposé dans la partie II - 3. Dans la figure IV-14c), la première partie de la courbe à gauche de la discontinuité de composition correspond à la solidification primaire en ferrite. Pour déterminer quand commence la transformation péritectique, la loi du bras de levier est appliquée au carbone et $k_c^{s/l}$ est calculé de la même manière que $k_{Ni}^{s/l}$. Pendant la transformation péritectique, l'austénite se forme : la seconde partie de la courbe à droite de la discontinuité correspond à la solidification de l'austénite pendant la transformation péritectique. L'application de

la loi de Gulliver-Scheil pour décrire la microségrégation du nickel induit qu'il n'y a pas de régression de la ferrite au cours de la transformation péritectique. Aussi le profil du nickel dans la ferrite ne change-t-il pas au cours de la transformation péritectique. Comme le montre la figure IV-14c), la prise en compte de la transformation péritectique rapproche la courbe calculée de la courbe expérimentale. Cependant, des différences notables demeurent pour des fractions cumulées faibles, ce qui semble indiquer que la non prise en compte de la régression de la ferrite au cours de la transformation péritectique n'est pas satisfaisante.

Les résultats obtenus sur les trois cas de référence sont présentés dans la figure IV-15. Rappelons que pour ces trois cas, le taux de ferrite résiduelle calculé en fin de solidification est nul. Cependant, le cas de référence n°1 se rapproche assez de la figure IV-14c) puisqu'il a conservé une trace chimique de la présence de ferrite en début de solidification. Comme nous l'avons déjà mentionné dans le chapitre I, Blanc et Tricot [60] l'appelle *ségrégation de régression*. Même si leur étude portait sur des alliages différents (Fe-Ni-Cr) de ceux étudiés ici, leur définition de la ségrégation de régression explique tout à fait bien le résultat de cette simulation :

« La ségrégation de régression se produit lorsqu'un flot de ferrite disparaît complètement. On observe alors à sa place une *hérédité* de sa présence se traduisant par une augmentation de la teneur en chrome et une diminution de la teneur en nickel. Cette ségrégation particulière ne se distingue de la ségrégation dendritique proprement dite que par la variation en sens contraire des concentrations des éléments Cr et Ni ; elle est une preuve de l'existence antérieure de la ferrite à cet endroit. »

Cette ségrégation de régression complique la détermination des taux de phases au cours de la transformation péritectique, puisque celle-ci repose sur une distinction des différentes phases en présence par leur ségrégation chimique [88]. Assimiler l'hérédité chimique laissée par la ferrite avec la ferrite elle-même peut ainsi conduire à conclure qu'il reste de la ferrite résiduelle en fin de solidification. Ceci peut être une explication possible à l'écart obtenu entre modèle et expérience constaté sur le taux de ferrite résiduel en fin de solidification dans la partie IV - 1.2.1.

La figure IV-15b) représente le profil cumulé en fin de solidification pour le cas de référence n°2. L'allure de cette courbe est très proche de la courbe expérimentale :

- Le profil est pratiquement linéaire pour des fractions cumulées supérieures à 20% ;
- La simulation reproduit bien la courbure fortement négative constatée à l'origine du profil expérimental ;
- w_{Ni}^{max} calculé à la même valeur que $(w_{Ni}^{max})_{exp}$;
- il y a cependant un écart important entre w_{Ni}^{min} calculé (2,7%mass) et $(w_{Ni}^{min})_{exp}$ (3,2%mass).

Enfin, la figure IV-15c) représente le profil cumulé en fin de solidification pour le cas de référence n°3. Elle apparaît comme un cas intermédiaire entre le cas 1 et le cas 2. En effet :

- le changement de pente observée dans le cas de référence n°1 est également visible sur le cas 3 mais de manière moins prononcée ;
- pour des fractions cumulées faibles, l'allure de la courbe se rapproche du cas 2.

En résumé, c'est le cas 2 qui se rapproche le plus de la courbe expérimentale.

IV - 2.2.1. Effet de la taille de structure - Problème d'échantillonnage

Comme le montre la figure IV-1, λ_1 n'est pas uniforme dans une même coupe transversale. L'intervalle de variation de λ_1 est [245 μm ; 1052 μm]. Le but de cette partie est de montrer :

- l'influence de λ_1 sur les profils cumulés ;
- l'importance de réaliser un bon échantillonnage.

Les profils cumulés de la figure IV-16 ont été calculés par le modèle à morphologie complexe avec 5 valeurs différentes de λ_1 : 200, 400, 600, 800 et 1000 μm . La valeur de λ_2 est calculée par le module de maturation dans le modèle. La surfusion aux pointes de dendrites primaires est également prise en compte.

De l'ensemble des courbes a) à e) se dégagent deux faciès distinctes :

- Pour les valeurs de $\lambda_1 = 200, 400, \text{ et } 600\mu\text{m}$, les profils cumulés obtenus en fin de solidification présentent le même faciès qui sera nommé par la suite faciès 1. Dans cet intervalle de variation de λ_1 , le modèle ne prédit pas d'effet sensible de λ_1 sur les profils cumulés.
- Pour les valeurs de $\lambda_1 = 800\mu\text{m}$ et $1000\mu\text{m}$, les profils cumulés obtenus en fin de solidification présentent également le même faciès, désignés ici par faciès 2, différent du faciès 1.

Pour comprendre comment se sont formés ces deux faciès différents au cours de la solidification, les profils cumulés pour une fraction de liquide résiduel de 20% ont été reportés sur la figure IV-17. Sur les deux courbes ont été indiquées les phases auxquelles appartiennent les différentes compositions. Pour ces deux courbes :

- Le titre massique en nickel est pratiquement uniforme dans le liquide et la ferrite ;
- Dans le cas $\lambda_1 = 600\mu\text{m}$, les effets diffusifs tendent à linéariser le profil dans la phase austénitique. En revanche, dans le cas $\lambda_1 = 1000\mu\text{m}$, les effets diffusifs sont négligeables.

Par conséquent, le cas reporté sur la figure IV-17b) est celui qui se rapproche le plus des hypothèses du modèle de Fredriksson exposées dans la partie I - 3.2.2.

Afin d'obtenir un profil cumulé représentatif de la microségrégation finale, la méthode de pondération suivante a été appliquée aux résultats des simulations: à chaque nœud I du maillage utilisé pour représenter les profils cumulés sont associés les titres $w(I)_{\lambda_1=200\mu\text{m}}$, $w(I)_{\lambda_1=400\mu\text{m}}$, $w(I)_{\lambda_1=600\mu\text{m}}$, $w(I)_{\lambda_1=800\mu\text{m}}$ et $w(I)_{\lambda_1=1000\mu\text{m}}$. Ces titres sont pondérés en utilisant les données de la distribution des distances entre bras primaires de dendrites représentée sur la figure IV-1. Les mesures de λ_1 étant au nombre de 49, il vient :

$$w(I)_{\text{pond}} = (10w(I)_{\lambda_1=200\mu\text{m}} + 14w(I)_{\lambda_1=400\mu\text{m}} + 13w(I)_{\lambda_1=600\mu\text{m}} + 11w(I)_{\lambda_1=800\mu\text{m}} + w(I)_{\lambda_1=1000\mu\text{m}}) / 49 \quad (4.4)$$

La courbe donnant $w(I)_{\text{pond}}$ en fonction de la fraction cumulée est représentée sur la figure IV-16f).

Addad a mesuré les profils cumulés finaux en nickel en différentes zones d'une coupe transversale d'un barreau $\phi 20$ où λ_1 est uniforme et vaut respectivement 330 μm et 660 μm [88]. Les profils cumulés ainsi obtenus sont représentés sur la figure IV-18.

Ces deux profils ont été normalisés par rapport à \bar{w}_{Ni} calculés pour chaque zone et superposés sur la figure IV-19a). La même méthodologie a été appliquée aux faciès 1 et 2 obtenus par le modèle et définis précédemment (figure IV-19b). La figure IV-19a) montre que :

- plus λ_1 augmente, plus la courbure négative à l'origine du profil cumulé et la courbure positive en fin de solidification sont prononcées. Autrement dit, plus λ_1 diminue, plus le profil tend à devenir linéaire. Cette influence est bien reproduite par le modèle et s'explique principalement par les effets diffusifs du nickel dans l'austénite ;
- les extrêmes de compositions obtenus expérimentalement semblent peu affectés par la valeur de λ_1 . Il en est de même pour les prédictions du modèle.

IV - 2.3. COMPARAISON DE LA MICROSEGREGATION FINALE SELON LA NATURE DU PREMIER SOLIDE DEPOSE

Les profils cumulés expérimentaux en nickel obtenus en fin de solidification dirigée pour les deux alliages ont été superposés dans la figure IV-20a). On observe que $w_{Ni}^{max}(\text{alliage 1}) < w_{Ni}^{max}(\text{alliage 2})$ et que $w_{Ni}^{min}(\text{alliage 1}) > w_{Ni}^{min}(\text{alliage 2})$ d'où $\tau_{Ni}(\text{alliage 1}) < \tau_{Ni}(\text{alliage 2})$, ce qui est bien reproduit par le modèle (la figure IV-20b) est la superposition de la figure IV-16f) et de la figure IV-13e). Les calculs du modèle ainsi que les résultats expérimentaux ont montré qu'une partie de la solidification de l'alliage 2 était ferritique puis austénitique, alors que pour l'alliage 1, celle-ci est entièrement austénitique. Plus k est proche de 0, plus la microségrégation est sévère. Comme $k_{Ni}^{\delta/\gamma} < k_{Ni}^{\gamma/\delta} < 1$, il en résulte que $\tau_{Ni}(\text{alliage 1}) < \tau_{Ni}(\text{alliage 2})$.

IV - 3. CONCLUSION

Cette partie a permis la comparaison des résultats donnés par le modèle développé dans le chapitre II avec les résultats expérimentaux d'Addad sur les points suivants :

Le chemin de solidification :

Pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C, l'expérience révèle la présence de ferrite en fin de solidification alors que le modèle prédit un taux de ferrite résiduel nul. Une explication possible réside dans le fait que la ferrite au cours de la régression laisse une trace chimique qui peut être assimilée à la ferrite elle-même. Globalement, la prédiction du chemin de solidification par le modèle est satisfaisante.

La formation de la microségrégation au cours de la solidification :

La comparaison quantitative des résultats a été réalisée au moyen des profils cumulés statistiquement plus représentatifs. Il faut cependant noter que les profils linéiques expérimentaux peuvent fournir des informations qualitatives supplémentaires très utiles à l'interprétation des résultats relatifs à la microségrégation. Pour l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C, les résultats générés par le modèle sont tout à fait satisfaisants. Pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C, l'expérience montre que l'hypothèse H1.7 est pertinente. Le modèle permet en particulier de fournir des éléments de réponse théoriques à l'évolution des profils cumulés expérimentaux au cours de la solidification.

Microségrégation finale :

Le modèle à morphologie complexe a été appliqué pour étudier l'influence de la structure sur les profils cumulés finaux. Il reproduit assez bien la tendance observée sur les profils expérimentaux, qui tendent à devenir linéaire lorsque λ_1 diminue. De plus, l'influence de la nature du premier solide déposé sur la microségrégation finale est bien prédite par le modèle.

V - -- APPLICATION DU MODELE DE MICROSEGREGATION A L'ETUDE DE LA MACROSEGREGATION - INFLUENCE DE LA MACROSEGREGATION SUR LA MICROSEGREGATION

Le transport de soluté à grande échelle perturbe les propriétés physiques du mélange pâteux à l'échelle de la dendrite, et donc la microségrégation. Il est donc nécessaire d'avoir une bonne description des phénomènes de transport de matière, de chaleur et de quantité de mouvement pendant la solidification pour prédire la microségrégation. Si les lois de conservation dans le puits liquide et dans le solide peuvent être déduites immédiatement de la mécanique des milieux continus puisqu'il s'agit de milieux monophasiques, il n'en va pas de même pour la zone pâteuse où coexistent les phases liquide et solide. Parmi les méthodes employées pour dériver les équations de conservation sous une forme unifiée dans la zone solide, liquide et pâteuse, la méthode des prises de moyenne a été appliquée et est présentée plus en détail dans la référence [93]. Elle est à la base du code macroscopique SOLID dont les principes et hypothèses sont brièvement présentés dans une première partie. Dans ce chapitre, le modèle de microségrégation présenté dans le chapitre II a été couplé avec SOLID afin d'étudier numériquement l'interaction entre la microségrégation et la macroségrégation, et ce de deux manières :

- en étudiant l'effet de la microségrégation sur la macroségrégation à partir d'un cas d'étude théorique ;
- en montrant l'influence de la macroségrégation sur la microségrégation dans un lingot industriel de type 100C6.

V - 1. PRINCIPE DE RESOLUTION DES EQUATIONS DE TRANSPORT A L'ECHELLE MACROSCOPIQUE

V - 1.1. LA METHODE DE PRISE DE MOYENNE

En raison de la complexité géométrique de la zone pâteuse, une description par la mécanique des milieux continus ne peut être mise en pratique qu'après un changement d'échelle dont l'étape essentielle conduit à définir un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) permettant d'établir une équivalence entre le milieu dispersé réel et un milieu continu fictif équivalent. Dans la nouvelle échelle, les phénomènes sont décrits en moyenne par des lois de conservation dont les variables et les paramètres sont déduits des lois de conservation, des variables et des paramètres à l'échelle microscopique. Son intérêt réside notamment dans le fait qu'elle permet de s'abstraire des problèmes d'interface entre le puits liquide et la zone pâteuse et entre la zone pâteuse et le solide. Il est en effet possible de trouver un milieu continu fictif permettant de couvrir continûment les trois zones.

V - 1.2. SYSTEME COMPLET D'EQUATIONS DECRIVANT LA SOLIDIFICATION D'UN ALLIAGE MULTICONSTITUE

La technique de prise de moyenne sur un V.E.R. permet d'obtenir des équations moyennées pour décrire les phénomènes de transport dans la zone pâteuse. Il est ainsi possible d'établir les équations de conservation moyennées pour la masse totale, l'énergie, la quantité de mouvement et la masse de soluté. La version de SOLID avec laquelle le modèle de microségrégation a été couplé repose sur les hypothèses suivantes :

- il est possible de définir un V.E.R. en tout point de la zone pâteuse;
- les températures moyennes des phases liquide et solide sont égales;
- le solide est immobile : $\vec{V}_s = 0$ (hypothèse utilisée pour la quantité de mouvement);
- la vitesse du liquide dans les canaux interdendritiques est suffisamment faible pour pouvoir employer une loi de perméabilité pour décrire les forces de frottement visqueuses aux interfaces liquide/solide.

Sous ces hypothèses, le système complet d'équations se présente sous la forme suivante, la notation des grandeurs moyennées a été simplifiée pour alléger les équations :

- conservation de la masse globale (avec $\vec{V}_s = 0$) :

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} + \bar{\nabla} \cdot (\rho^l \vec{V}) = 0 \quad (5.1)$$

- conservation de l'énergie (avec $\vec{V}_s = 0$) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\bar{\rho} \bar{h}) + \bar{\nabla} \cdot (\rho^l \vec{V} h^l) = \bar{\nabla} \cdot (\lambda_e \bar{\nabla} T) \quad (5.2)$$

- conservation de la quantité de mouvement (avec $\vec{V}_s = 0$) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho^l \vec{V}) + \frac{1}{g^l} \bar{\nabla} \cdot (\rho^l \vec{V} \cdot \vec{V}) = \bar{\nabla} \cdot (\mu^l \bar{\nabla} (\vec{V})) - \frac{g^l \mu^l}{K} \vec{V} - g^l \bar{\nabla} p + \rho^l g^l \vec{g} \quad (5.3)$$

- conservation de la masse de soluté (avec $\vec{V}_s = 0$) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\bar{\rho} \bar{w}) + \bar{\nabla} \cdot (\rho^l \vec{V} w^l) = \bar{\nabla} \cdot (\rho^l g^l D^l \bar{\nabla} w^l) + \bar{\nabla} \cdot (\rho^s g^s D^s \bar{\nabla} w^s) \quad (5.4)$$

- conservation de la masse de soluté dans la phase solide (avec $\vec{V}_s = 0$) :

$$\frac{d(\rho^s g^s \bar{w}^s)}{dt} = \rho^s w^{l/s} \frac{d g^s}{dt} + \rho^s S_v^{s/l} D_s \bar{\nabla} w^s \quad (5.5)$$

avec :

$$\bar{V} \quad \text{vitesse moyenne débitante } \bar{V} = g^l \langle \vec{V}^l \rangle^l$$

$$\lambda_e \quad \text{conductivité thermique équivalente } \lambda_e = \lambda_T^s g^s + \lambda_T^l g^l$$

(pour les notations, voir la nomenclature. Pour les alléger, les grandeurs correspondant aux moyennes intrinsèques de phase ne sont plus notées entre crochet)

La barre au-dessus d'une grandeur désigne une grandeur de mélange, pour une grandeur massique ϕ :

$$\bar{\phi} = f^l \phi^l + f^s \phi^s \quad (5.6)$$

et pour une grandeur volumique ψ :

$$\bar{\psi} = g^l \psi^l + g^s \psi^s \quad (5.7)$$

La masse volumique de la phase liquide de l'alliage est une fonction de la température et de la composition :

$$\rho^l(T, w_i^l) = \rho^0 [1 - \beta_T(T - T^0) - \sum_i (\beta_i^w(w_i^l - w_i^0))] \quad (5.8)$$

avec :

- β_T coefficient d'expansion thermique (K^{-1})
- β_W^i coefficient d'expansion solutal du soluté i ($\%mass^{-1}$)
- ρ^0 et T^0 sont des valeurs de référence

La perméabilité K suit la loi semi-empirique de Kozeny-Carman :

$$K = \frac{g_i^3 \lambda_i^2}{\pi^2 k_c t^2 (1 - g_i)^2} \quad (5.9)$$

t est la tortuosité et k_c est la constante de Kozeny-Carman.

Les valeurs des grandeurs thermophysiques des équations (5.8) et (5.9) utilisées dans les calculs macroscopiques de ce chapitre sont spécifiées dans le tableau A4-2.

Les mêmes formes de loi de conservation peuvent être utilisées pour un point situé dans le puits liquide, la zone pâteuse ou le solide. De plus, le passage entre ces zones se fait continûment. Avec les équations (5.1) à (5.5), nous disposons d'un système d'équations de conservation, valables dans les trois zones du produit en cours de solidification. A ce stade, les phénomènes liés à la solidification à l'échelle des dendrites permettent de fermer le système d'équations. Leur mise en équation a été détaillée dans le chapitre II.

La surface spécifique des interfaces solide-liquide, la perméabilité et le flux de diffusion du soluté dans les phases aux interfaces sont les trois termes qui nécessitent pour leur calcul un modèle de croissance des microstructures. Ce sont les trois termes dont les phénomènes physiques associés ont une échelle caractéristique inférieure à celle du V.E.R. C'est donc au travers de ces termes qu'est réalisé le couplage entre l'échelle macroscopique du V.E.R. et l'échelle microscopique des microstructures. Ces différentes échelles sont représentées sur la figure V-1.

V - 1.3. FORME GENERALE D'UN MODELE NUMERIQUE POUR LES PREDICTIONS DES MACRO ET DES MICROSEGREGATIONS

La structure mathématique d'un calcul micro-macro a déjà été présentée par Combeau et coll. [13]. A partir de la distinction faite par la méthode de la prise de moyenne sur les différentes échelles associées aux traitements des différents phénomènes, il est possible de différencier deux blocs d'équations dans le modèle: un bloc macro et un bloc micro. Le bloc macro comprend les équations (5.1) à (5.4) de conservation de l'énergie, de la masse, de la quantité de mouvement et de la masse de soluté. Celui-ci a déjà été présenté et discuté [49]. Le bloc micro comprend le modèle de microségrégation développé au chapitre II.

L'algorithme de résolution numérique du système d'équations couplées est inspiré de cette séparation en deux blocs. Dans le bloc macro, le système d'équations (5.1)-(5.4) est résolu en prenant comme variables principales (c'est-à-dire comme variable de sortie du bloc macro) : l'enthalpie massique moyenne $\bar{h}(t)$, la vitesse moyenne débitante de la phase liquide \bar{V} , la pression moyenne dans la phase liquide p et le titre massique moyen en soluté i $\bar{w}_i(t)$ pour chaque nœud du maillage macroscopique. Une maille du maillage macroscopique est représentée sur la figure V-1a)

et b) dans la zone pâteuse. A ce stade, à partir des variations locales de $\bar{h}(t)$ et de $\bar{w}_i(t)$ comme données d'entrée, le modèle de microségrégation est nécessaire pour calculer le chemin de solidification pour chaque nœud du maillage macroscopique, c'est-à-dire la température T , les fractions massiques f^ϕ (ou volumiques g^ϕ) de chaque phase ϕ ainsi que les profils de titre massique dans chaque phase (d'où l'on déduit la composition moyenne en soluté i dans le liquide w_i^l). Le schéma général de l'algorithme micro-macro est présenté sur la figure V-2.

Dans le code de calcul SOLID, les équations de conservation du bloc macro sont discrétisées suivant la méthode des volumes finis. Une méthode enthalpique a été mise en œuvre pour la discrétisation de l'équation de conservation de l'énergie (5.2). Les équations de conservation de la quantité de mouvement et de la masse ont été discrétisées et résolues suivant la méthode SIMPLEC [58].

Comme déjà mentionné plus haut, le modèle de microségrégation est appelé pour chaque maille du calcul macroscopique. Dans les exemples présentés par la suite, certains maillages macroscopiques peuvent comporter jusqu'à 4000 mailles, ce qui impose au modèle de microségrégation d'être très performant en terme de temps de calcul. C'est la raison pour laquelle dans la classification proposée à la fin du chapitre I, la plupart des modèles destinés à être couplé avec un code macroscopique (tableau I-3) sont analytiques ou semi-analytiques tandis que les autres sont majoritairement numériques (tableau I-2).

V - 1.4. RESOLUTION DU SYSTEME D'EQUATIONS

Deux types de couplage micro-macro ont été jusqu'à présent testés avec SOLID :

- **Un couplage dit « faible »** : les équations de transport de masse, de quantité de mouvement et d'énergie sont résolues à chaque pas de temps jusqu'à ce qu'il y ait convergence. Une fois la convergence atteinte au pas de temps courant, la fraction liquide f^l est calculée puis est utilisée pour calculer la composition locale du mélange en soluté.
- **Un couplage dit « fort »** qui résout les équations couplées de transfert de chaleur, de quantité de mouvement et de matière dans une même boucle de convergence.

Pour chacun de ces couplages, les modèles de microségrégation retenus jusqu'à présent étaient la loi du bras de levier ou de Gulliver-Scheil, basés sur des hypothèses restrictives déjà mentionnées dans le chapitre I.

Pour l'ensemble des résultats exposés dans la suite de ce chapitre, le modèle de microségrégation à morphologie simplifié a été couplé avec SOLID et le type de couplage qui a été réalisé avec le nouveau modèle de microségrégation est un couplage fort.

V - 2. APPLICATION DU MODELE DE MICROSEGREGATION A L'ETUDE DE LA MACROSEGREGATION

V - 2.1. DEFINITION DU CAS DE REFERENCE THEORIQUE ETUDIE

Un alliage ternaire Fe-Ni-C est considéré. Les titres massiques nominaux sont : $w_c^0 = 0,2 \%$ mass et $w_{Ni}^0 = 2 \%$ mass. Pour ces compositions nominales, la phase solide primaire est la ferrite et la température de liquidus est de 1514°C . La température initiale de l'acier est de 1520°C . Au temps $t = 0\text{s}$, l'acier est entièrement liquide et la surchauffe est donc de 26°C . Le domaine simulé est représenté sur la figure V-3. Les températures initiales du moule et du bord réfractaire sont respectivement de 40°C et de 13°C . Le maillage macroscopique comporte 3677 mailles. La géométrie du lingot est axisymétrique. Les propriétés thermophysiques des différents matériaux du domaine simulé sont données dans le tableau A4-3. Le pas de temps de calcul macroscopique Δt utilisé en début de simulation (jusqu'à 3000s) est de $5 \cdot 10^{-2}\text{s}$. Puis jusqu'à la fin de la solidification, Δt est de 10^{-1}s . Le temps CPU d'une simulation est de 24h.

La taille du domaine représentatif de la microségrégation λ a été fixée arbitrairement à $100\mu\text{m}$, et la géométrie microscopique est supposée cartésienne. Les coefficients de diffusion utilisés pour le nickel et le carbone sont spécifiés dans le tableau A4-1. Le maillage microscopique utilisé est détaillé dans le tableau V-1 et correspond au maillage M3 de la partie III-3.2. L'étude de sensibilité des résultats au maillage microscopique a en effet montré que le maillage M3 est satisfaisant pour traiter la solidification primaire mais introduit une erreur jugée tolérable par rapport à la solution donnée par des maillages plus fins sur la simulation des phénomènes dont l'interface δ/γ est le siège.

V - 2.2. RESULTATS ET DISCUSSION

Les cartes de macroségrégation en carbone et nickel sont représentées sur la figure V-4 au cours et en fin de la solidification, qui est atteinte au bout de 6500s. En cours de solidification, les cartes de macroségrégation en carbone (figure V-4a),b) et nickel (figure V-4d),e) ont qualitativement le même aspect :

- Une zone ségrégée négativement en pied de lingot ;
- Une zone ségrégée positivement qui se développe le long de l'axe central du lingot, dans la partie haute.

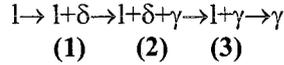
Pour mieux comprendre ces résultats, l'évolution du titre massique moyen dans le liquide en carbone et nickel a été calculée en utilisant indépendamment le modèle de microségrégation. Pour ce calcul, l'évolution des quantités moyennes \bar{h} et \bar{w}_i dont la connaissance est nécessaire au calcul microscopique comme l'a montré le chapitre II est décrite de la manière suivante :

$$\frac{\partial \bar{h}}{\partial t} = -700\text{W/kg} \quad (5.10)$$

$$\frac{\partial \bar{w}_i}{\partial t} = 0\% \text{mass/s (système fermé)} \quad (5.11)$$

Dans ces conditions, le temps total de solidification est de 435s, ce qui est proche du temps local de solidification en un point du lingot situé sur l'axe central, à 150mm de la partie basse du moule (point P de la figure V-3). L'évolution du titre massique moyen en carbone dans le liquide calculée par le modèle microscopique est représentée en ligne continue sur la figure V-5a).

La séquence de solidification est la même que celle obtenue pour le cas de référence défini au chapitre III :



Les différents stades de la solidification sont visibles sur la figure V-6a) à l'intérieur de la zone pâteuse. L'évolution de la fraction ferritique n'y est pas monotone puisque dans une première région de la zone pâteuse en contact avec le liquide, la fraction de ferrite augmente en cours de solidification (solidification primaire), alors que dans une seconde partie de la zone pâteuse, elle diminue (transformation péritectique) jusqu'à complètement disparaître.

Connaissant le chemin de solidification en l'absence de transport macroscopique de soluté, il est possible d'en déduire l'évolution de la densité du liquide dans la zone pâteuse exprimée à l'aide de l'expression (5.7). La figure V-5b) représente l'évolution de la densité relative du liquide en fonction de la fraction solide :

$$(\rho^l(T, w_i^l))_{rel} = \frac{\rho^l(T, w_i^l) - \rho^l(T_{liq}, w_i^0)}{\rho^l(T_{liq}, w_i^0)} \quad (5.12)$$

La figure V-5b) montre que la densité du liquide diminue lorsque l'on s'enfonce dans la zone pâteuse. Les valeurs numériques du tableau A4-2 ainsi que les pentes de liquidus $m_i^{s/l}$ calculées par Thermo-Calc montrent que $|\beta_w^c + \beta_{Tm_c}^{1/s}| > |\beta_w^{Ni} + \beta_{Tm_{Ni}}^{1/s}|$ en cours de solidification. Par conséquent, c'est le carbone qui détermine la convection thermo-solutale dans la zone pâteuse. De plus, $|\beta_w^c| > |\beta_{Tm_c}^{1/s}|$, ce qui signifie que l'effet solutal est prédominant par rapport à l'effet thermique. Ainsi, durant la solidification, la densité du liquide diminue, comme le montre la figure V-5b).

Cette évolution est cohérente avec les champs de vecteurs vitesse représentés sur la figure V-7. Tout au long de la solidification, on observe un flux ascendant du liquide à l'intérieur de la zone pâteuse, due à l'allègement de celui-ci au cours de la solidification. On observe en début de solidification un flux ascendant de liquide le long de l'axe central du lingot. Ce flux disparaît avec l'avancée de la solidification si bien que l'on observe un flux descendant du liquide le long de l'axe central à $t = 3428s$. Ceci est dû à l'effet thermique de la convection qui s'atténue au cours de la solidification. En conséquence, le liquide enrichi en carbone et nickel de la zone pâteuse gagne la partie haute du lingot, ce qui induit une ségrégation positive et un appauvrissement dans la partie basse (figure V-4). Le liquide fortement ségrégué dans la partie haute du lingot rapproche le chemin local de solidification de la zone de stabilité thermodynamique de l'austénite. Par conséquent, le taux de ferrite déposée dans la zone pâteuse est plus faible dans la partie haute du lingot, comme le montre la figure V-6a).

L'étendue des zones ségréguées positivement et négativement sont les mêmes pour le carbone et le nickel. Mais quantitativement, la macroségrégation est plus sévère pour le carbone que pour le nickel. En effet, les valeurs des coefficients de partage données par Thermo-Calc en cours de solidification montrent que $k_c^{\delta/l} < k_{Ni}^{\delta/l} < 1$ et $k_c^{\gamma/l} < k_{Ni}^{\gamma/l} < 1$.

Le même calcul micro-macro que précédemment a été effectué dans les deux cas suivants :

- Simulation 2 : sans prendre en compte la transformation péritectique ;
- Simulation 3 : sans prendre en compte l'addition de nickel, c'est-à-dire pour un alliage binaire Fe-0,2%C.

Qualitativement, les calculs sur les trois simulations donnent la même allure pour les cartes de macroségrégation finale pour le carbone. Mais, quantitativement, la macroségrégation positive en carbone le long de l'axe central diffère selon les cas. Celle-ci a été représentée le long de l'axe central sur la figure V-8 pour les trois simulations en terme de variation relative de \bar{w}_c par rapport à w_c^0 :

$$(\bar{w}_c)_{rel} = \frac{\bar{w}_c - w_c^0}{w_c^0} \quad (5.13)$$

V - 2.2.1. Comparaison des résultats du cas de référence et de la simulation 2

La macroségrégation positive est moins sévère dans le cas de référence que dans la simulation 2 au niveau de la hauteur $h = 1,8m$. Pour comprendre ce résultat, la même démarche que pour le cas de référence est appliquée : le chemin de solidification est calculé par le modèle de microségrégation avec (5.10) et (5.11) comme valeurs d'entrée. Comme il a été montré que c'est le carbone qui contrôlait l'évolution de la densité du liquide, une attention particulière a été apportée aux résultats le concernant. La figure V-5a) compare l'évolution du titre massique moyen en carbone dans le liquide au cours de la solidification prédite par le modèle dans le cas de référence et la simulation 2. On peut observer que la transformation péritectique réduit l'augmentation de la teneur en carbone dans le liquide (stade 2) : ceci a été théoriquement justifié dans la partie III - 4.4. La transformation péritectique tend donc à réduire le gradient de la densité du liquide dans la zone pâteuse et ainsi la convection thermo-solutale, comme cela est montré sur la figure V-5b).

En conclusion, le cas de référence et la simulation 2 permettent de mettre en évidence un effet spécifique de la transformation péritectique sur la macroségrégation. Pour les alliages Fe-Ni-C étudiés, il correspond à une réduction de la sévérité de la macroségrégation finale.

V - 2.2.2. Comparaison des résultats du cas de référence et de la simulation 3

Pour le cas de référence comme pour le cas binaire (simulation 3), le chemin de solidification comporte les trois stades précédemment identifiés mais la transformation péritectique se produit pour des intervalles de fraction liquide différents (tableau V-2).

L'analyse précédente permet de mieux comprendre les différences observées entre le cas de référence et la simulation 3 :

- La microségrégation du nickel influence la densité du liquide par la quantité $(\beta_w^{Ni} + \beta_{TMNi}^{1/8})$. Cette influence est visible sur la figure V-5 pour des fractions solides inférieures à 45%.
- La modification de la microségrégation du carbone par l'ajout du nickel. En effet, dans le cas de référence, la transformation péritectique se produit pour des fractions liquides plus significatives que dans le cas binaire. Par conséquent, l'effet spécifique de la transformation péritectique sur la convection thermo-solutale est plus important dans le cas ternaire que dans le cas binaire. Comme mentionné plus haut, cet effet tend à réduire le gradient de la densité du liquide dans la zone pâteuse.

Il en découle donc, comme cela est montré sur la figure V-8, une macroségrégation en carbone le long de l'axe central du lingot plus sévère dans le cas binaire que dans le cas ternaire.

V - 3. INFLUENCE DE LA MACROSEGREGATION SUR LA MICROSEGREGATION

Comme nous l'avons déjà mentionné dans le chapitre I, une première approche théorique de la microségrégation à l'échelle d'un lingot de 2,5 tonnes de type 100C6 (1%mass C et 1,5%mass Cr) a été proposée par Melford et Granger [102] qui s'étaient heurtés au problème de transport de soluté à grande échelle pour mener à bien leur étude. Grâce à la technique de couplage micro-macro précédemment exposée, nous disposons d'un outil numérique permettant d'étudier à l'échelle d'un lingot industriel l'effet :

- des conditions locales du refroidissement, caractérisée par la quantité $\frac{\partial \bar{h}}{\partial t}$,
- de la variation de la composition moyenne locale du soluté i due aux flux convectifs du liquide (le solide est supposé fixe), via la quantité $\frac{\partial \bar{w}_i}{\partial t}$,

sur les profils de microségrégation générés par le modèle du chapitre II.

V - 3.1. DEFINITION DU LINGOT ETUDIE

L'alliage 100C6 présente l'avantage théorique de pouvoir être raisonnablement assimilé à un alliage ternaire Fe-C-Cr. Thierry Mazet [83] a mené une étude expérimentale sur un lingot coulé par Ascométal avec une nuance d'acier de type 100C6. D'une hauteur totale de $H = 2720\text{mm}$ et d'une section carrée de côté $L = 570\text{mm}$ à mi-hauteur, la lingotière correspondante permet de couler des lingots d'un rapport H/L supérieur à 8. Celle-ci est schématiquement représentée sur la figure V-9 avec masselotte.

Les compositions nominales de l'alliage sont les suivantes : $w_c^0 = 1,015 \text{ %mass}$ et $w_{Cr}^0 = 1,345\text{ %mass}$. Pour ces compositions nominales, la phase solide primaire est l'austénite et la température de liquidus calculée par Thermo-Calc est de 1460°C . Dans le calcul, seule la solidification primaire en austénite est prise en compte et le dépôt des phases mineures en fin de solidification n'est pas modélisé. Par conséquent, seul l'équilibre γ/l est considéré dans ce calcul. La nappe de liquidus austénitique a été tabulée selon la méthode exposée dans le chapitre II. Des coupes de cette nappe ont été représentées sur la figure V-10 selon plusieurs isoconcentrations en carbone. Il est intéressant de noter que la pente de liquidus en chrome, positive pour 1% en carbone, change de signe et devient négative lorsque la concentration en carbone augmente.

Au temps $t = 0\text{s}$, la température initiale de l'acier est de 1500°C : il est donc entièrement à l'état liquide et la surchauffe est de 40°C . Les températures du moule et du bord réfractaire sont initialisées à 20°C . Le pas de temps macroscopique Δt utilisé en début de simulation (jusqu'à 200s) est de 10^{-2}s . Puis jusqu'à la fin de la solidification, Δt est de 10^{-1}s . Le maillage macroscopique est constitué de 2904 mailles (121 mailles selon la hauteur et 24 mailles selon la largeur). La géométrie du lingot est supposée cartésienne. Les propriétés thermophysiques des différents matériaux représentés sur la figure V-9 sont indiquées dans le tableau A4-4.

Le tableau II-17 de la référence [83] indique sur le lingot masselotté Ascométal de 6,2 tonnes des tailles de structure de l'ordre de $400\mu\text{m}$. La taille du domaine représentatif de la microségrégation λ a donc été fixée arbitrairement à $200\mu\text{m}$, et la géométrie microscopique est supposée axisymétrique. Les coefficients de diffusion utilisés pour le chrome et le carbone sont spécifiés dans le tableau A4-1. Le maillage microscopique comporte 6 mailles dans l'austénite et 3 mailles dans le liquide.

V - 3.2. RESULTATS ET DISCUSSION

V - 3.2.1. Formation de la macroségrégation

Les cartes de macroségrégation en carbone et en chrome sont représentées sur la figure V-11. La fin de la solidification est atteinte au bout de 25000s. Là encore, on observe sur ce lingot pour le carbone et le chrome :

- Une zone ségrégée négativement en pied de lingot ;
- Une zone ségrégée positivement le long de l'axe central du lingot et dans la partie haute.

V - 3.2.2. Analyse de la microségrégation

Sur la figure V-9 ont été reportés les positions de 6 zones d'analyse qui ont fait l'objet d'une étude numérique plus fine de la microségrégation : 3 de ces zones se situent sur l'axe central du lingot à différentes hauteurs et les 3 autres le long d'une coupe transversale du lingot, notée G et représentée sur la figure V-9. Les coordonnées de ces zones sont indiquées dans le tableau V-3, l'origine étant prise au coin inférieur gauche de la lingotière. Ces points d'analyse ont été choisis de manière à concorder avec les échantillons à partir desquels Mazet a établi des profils de microségrégation [83].

Pour pouvoir établir des profils de microségrégation représentatifs du déroulement de la solidification, il est nécessaire de disposer d'un élément dont la composition locale évolue de façon monotone au cours de celle-ci. Le chapitre IV a bien montré que, pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C par exemple, un tel choix n'était pas évident en raison de la transformation péritectique en cours de solidification. Mazet [83] recommande l'utilisation du chrome comme élément de référence pour établir les profils cumulés. Si l'on ne prend pas en compte le dépôt de phases mineures en fin de solidification, ce choix est justifié par la simulation numérique puisque pour tous les points d'analyse en cours de solidification, le profil du chrome calculé par le modèle à morphologie simplifiée est monotone le long de la coordonnée spatiale r du domaine d'étude de la microségrégation.

Pour présenter l'ensemble des résultats relatifs à la microségrégation, la même méthodologie que Mazet a été appliquée : les profils de microségrégation sont successivement étudiés en fonction de la hauteur (points 1, 2 et 3) et de la distance à la peau du lingot (points 4, 5 et 6).

V - 3.2.3. Variation de la microségrégation en fonction de la hauteur du lingot

V - 3.2.3.1. Chemin de solidification

Les chemins de solidification aux points 1 et 2 sont parfaitement confondus. En translatant cette courbe de 30°C vers les températures inférieures, on obtient le chemin de solidification au point 3,

excepté pour les 5 premiers pourcents de solide formé. La température de liquidus diffère d'un peu moins de 5°C entre les points 1 et 3. Alors que le chemin de solidification pour le point 1 présente une allure assez proche de ceux déjà calculés dans les chapitres III et IV, il n'en est pas de même pour le celui du point 3. En effet, pour les premières fractions solides, la température chute assez brusquement, comportement qui n'avait pas été observé dans les chemins de solidification calculés en système fermé jusqu'à présent. Les variations de la composition moyenne en carbone et en chrome au point 3 ont été superposées au chemin de solidification sur la figure V-13. En raison du fort enrichissement en solutés au début de la solidification, la formation du solide n'est pas thermodynamiquement favorisée : il en résulte donc que pour un abaissement important de la température (30°C), la fraction solide formée est faible. Cet exemple particulier nous montre donc que considérer la microségrégation en système ouvert peut complètement bouleverser l'allure des chemins de solidification.

Les températures de liquidus et de solidus pour les points 1 à 3 sont indiquées dans le tableau V-4. Ce dernier montre que pour l'alliage considéré, l'ordre de grandeur de l'intervalle de solidification est jusqu'à 10 fois plus large que celui calculé dans le chapitre IV pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. Il peut donc être intéressant d'observer en cours de solidification la variation des grandeurs thermodynamiques au point 3 calculées à l'aide du couplage avec Thermo-Calc selon le principe exposé dans la partie II - 3. Dans le cas de référence du chapitre III (alliage Fe-4%Ni-0,1%C), les variations de $k_i^{\phi_1/\phi_2}$ et de $m_i^{\phi_1/\phi_2}$ en cours de solidification ont été respectivement représentées sur la figure III-1 et la figure III-11. Celles-ci ne montrent pas d'évolution significative des quantités thermodynamiques en cours de solidification, sans doute en raison du faible intervalle de solidification. Dans le cas de l'alliage 100C6, l'observation de la figure V-14 conduit à des conclusions différentes puisqu'en cours de solidification :

- $k_c^{\gamma/l}$ augmente de 25% (0,36 → 0,45) ;
- $k_{cr}^{\gamma/l}$ diminue de 20% (0,85 → 0,68) ;
- $m_c^{\gamma/l}$ diminue de 40% (-70°C/%mass → -98°C/%mass) ;
- $m_{cr}^{\gamma/l}$ change de signe (-1.2°C/%mass → 2.6°C/%mass). Il a en effet déjà été observé sur la figure V-10 que lorsque le titre massique en carbone passe de 1%mass à 4%mass, $m_{cr}^{\gamma/l}$ passe du signe négatif au signe positif.

La phase identifiée plus haut en début de solidification du point 3 apparaît également sur les courbes d'évolution de $k_i^{\gamma/l}$ et de $m_i^{\gamma/l}$.

V - 3.2.3.2. Profils cumulés de microségrégation en chrome

La figure V-17 représente les profils cumulés en chrome obtenus en fin de solidification à différentes hauteurs le long de l'axe central du lingot. L'obtention des profils cumulés à partir des profils linéiques a été décrite dans la partie III - 5.1. D'un point de vue général, les allures des profils cumulés finaux calculés pour les points 1, 2 et 3 sont les mêmes. Cependant, la comparaison entre ces différents profils permet de mettre en évidence une augmentation des niveaux minimums et maximums de compositions quand on se rapproche de la surface supérieure du lingot. Dans ces conditions, c'est l'ensemble du profil de microségrégation qui est translaté vers des concentrations en chrome plus élevées, comme le montre la figure V-17. Il s'agit ici d'un effet direct de la macroségrégation en chrome à l'échelle du lingot, dont le profil le long de l'axe central a été représenté sur la figure V-16. Le calcul prédit en effet une zone en pied de lingot où la

macroségrégation en chrome est négative. Le point 1 appartient à cette zone. En revanche, à partir d'une hauteur $y = 700\text{mm}$, la macroségrégation devient positive.

L'étude de Mazet portait surtout sur la caractérisation de la macroségrégation en des zones du lingot où la texture était différente (zone colonnaire, zone équiaxe globulaire, zone équiaxe dendritique, zone équiaxe latérale). Dans la mesure où l'état actuel du modèle micro-macro ne permet pas une étude fine des microstructures, une comparaison avec des résultats expérimentaux peut paraître prématurée. Cependant, par certains aspects, les résultats numériques concordent avec ceux obtenus expérimentalement par Mazet [83] :

- La différence de compositions moyennes locales en chrome entre le pied et la tête du lingot apparaît clairement sur les profils de macroségrégation expérimentaux et elle est du même ordre de grandeur ;
- L'allure des profils cumulés n'est pas modifiée par la position le long de l'axe du lingot ;
- Les niveaux minimums de compositions prédits par le modèle et l'expérience sont les mêmes pour les échantillons considérés.
-

En revanche, la principale différence relative aux profils cumulés de macroségrégation entre ceux calculés par le modèle et ceux établis par Mazet concerne les fractions cumulées supérieure à 80%. Les profils expérimentaux rendent compte en effet d'une macroségrégation beaucoup plus intense que celle calculée. Cette différence entre les résultats numériques et expérimentaux peut avoir plusieurs origines possibles :

- Le coefficient de diffusion du chrome dans l'austénite adopté dans le modèle est trop élevé ;
- Le dépôt des phases mineures en fin de solidification n'est pas pris en compte.

V - 3.2.4. Evolution des profils de macroségrégation en fonction de la distance à la peau du lingot

V - 3.2.4.1. Chemin de solidification

Les températures de liquidus et de solidus pour les points 4 à 6 sont indiquées dans le tableau V-5.

Comparaison entre les points 5 et 6 :

D'après le tableau V-5, $T_{\text{liq}}(\text{point 5}) = T_{\text{liq}}(\text{point 6}) = T_{\text{liq}}(w_i^0)$. En revanche, $T_{\text{sol}}(\text{point 5}) > T_{\text{sol}}(\text{point 6})$. Deux effets contribuent à ce résultat :

- D'après la figure V-19, en cours de solidification, $\bar{w}_{\text{Cr}}(\text{point 5}) < \bar{w}_{\text{Cr}}(\text{point 6})$ et $\bar{w}_{\text{C}}(\text{point 5}) < \bar{w}_{\text{C}}(\text{point 6})$. Le point 6 étant plus chargé en soluté, son chemin de solidification est donc déplacé vers des températures plus basses ;
- Le refroidissement est de plus en plus rapide lorsque l'on se rapproche des parois, ce qui contribue à diminuer le temps local de solidification et donc à diminuer T_{sol} .

Par conséquent, dans ce cas-là, les effets combinés des conditions locales du refroidissement et de la variation de la composition moyenne locale du soluté s'ajoutent pour expliquer ce résultat.

Comparaison entre le point 4 et le point 6 :

Le chemin de solidification du point 4 se déduit de celui du point 6 par une translation de 10°C vers les températures les plus basses :

- Au cours de la solidification, le point 4 s'enrichit davantage en solutés carbone et chrome que le point 6, ce qui déplace le chemin de solidification du point 4 vers des températures plus basses ;
- Le taux de refroidissement est beaucoup plus lent au point 4 qu'au point 6. En effet, les temps locaux de solidification calculés pour le point 4 et le point 6 sont respectivement 5000s et de 300s. Cet effet tend donc à rapprocher le chemin de solidification du point 4 vers des températures plus hautes.

Dans ce cas-là, les effets des conditions locales du refroidissement et de la variation de la composition moyenne locale du soluté sont antagonistes. L'observation de la figure V-18 permet de conclure que l'effet de la variation de la composition moyenne locale du soluté est prédominant sur l'effet des conditions locales du refroidissement.

V - 3.2.4.2. Profils cumulés de microségrégation en chrome

La figure V-20 représente les profils cumulés en chrome obtenus en fin de solidification dans la coupe transversale G du lingot à des distances différentes de la peau.

Comparaison entre le point 4 et le point 6 :

Comme dans la partie V - 3.2.3, les effets du transport macroscopique de soluté sont clairement visibles sur les profils cumulés finaux où il apparaît que $\bar{w}_{Cr}(\text{point 6}) < \bar{w}_{Cr}(\text{point 4})$. En particulier, $\tau_{cr}(\text{point 6}) > \tau_{cr}(\text{point 4})$. Tous les calculs ayant été effectués avec la même taille de structure et la même géométrie, on peut invoquer comme explication à ce résultat le taux de refroidissement différent au point 4 et au point 6 déjà indiqué précédemment.

Comparaison entre le point 4 et le point 5 :

Le temps local de solidification pour le point 5 est de 3700s alors que celui du point 4 est de 5000s. On pourrait donc s'attendre à ce que $\tau_{cr}(\text{point 5}) > \tau_{cr}(\text{point 4})$. Or la figure V-20 montre que :

$$\tau_{cr}(\text{point 5}) = 1,375$$

$$\tau_{cr}(\text{point 6}) = 1,58$$

Jusqu'à présent, seule la connaissance du temps local de solidification ainsi que la valeur moyenne du soluté en fin de solidification a été utilisée pour interpréter les résultats relatifs à l'allure des profils cumulés. La comparaison entre les points 4 et 5 est intéressante puisqu'elle montre que ces arguments ne suffisent plus à expliquer les différences dans les profils constatées, notamment en ce qui concerne l'évolution de τ_{cr} le long de la coupe transversale G. Dans ce cas précis, une connaissance précise de toute l'histoire de la solidification locale et de l'établissement de la microségrégation est nécessaire pour pouvoir expliquer l'allure des profils cumulés finaux.

V - 4. CONCLUSION

Cette partie a montré les principes du couplage du modèle de microségrégation développé dans le chapitre II avec le code macroscopique SOLID. Le modèle micro-macro qui en résulte est ainsi

capable de prédire la macroségrégation induite par le mouvement du liquide à grande échelle avec une description fine de la microségrégation.

Une première application a porté sur un lingot théorique pour lequel l'influence de la microségrégation sur la macroségrégation a été étudiée. Notamment, l'augmentation de la teneur en carbone dans le liquide durant la solidification est atténuée par la transformation péritectique, comme cela a été montré dans le chapitre III. Par conséquent, le gradient de la densité du liquide dans la zone pâteuse et donc l'intensité de la convection thermo-solutale sont réduits également. Ainsi, pour certaines nuances d'acier, il est important de connaître à quel stade de la solidification la transformation péritectique a lieu.

Une seconde application a porté sur une étude plus fine de la microségrégation finale dans un lingot industriel de type 100C6. Le couplage micro-macro réalisé offre en effet la possibilité de prédire les profils cumulés en fin de solidification de l'élément d'alliage choisi comme référence, ici le chrome. Cette étude a permis de montrer que l'allure du chemin de solidification calculé en système ouvert pouvait être très éloignée de celle calculée dans les chapitres III ou IV.

Une comparaison des profils cumulés obtenus le long de l'axe du lingot et dans une coupe transversale a été réalisée. Les profils cumulés calculés en fonction de la hauteur du lingot présentent la même allure et possèdent le même indice de microségrégation en chrome. L'évolution des profils en fonction de la distance à la peau du lingot est plus difficile à interpréter. Elle révèle notamment qu'une connaissance précise de toute l'histoire de la solidification locale et de l'établissement de la microségrégation est nécessaire pour pouvoir expliquer l'allure des profils cumulés finaux.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Ce travail a permis la mise au point d'un modèle numérique de microségrégation dans le cas d'une croissance dendritique colonnaire appliqué à des alliages ternaires. Le cas de la transformation péritectique a été spécifiquement étudié. L'équation de la diffusion dans chacune des phases a été résolue à l'aide d'un algorithme de calcul original basée sur la généralisation de la transformation de Landau à 3 phases dans le cas de la transformation péritectique. Cet algorithme est tout à fait généralisable au traitement de morphologie dendritique complexe autre que plane, axisymétrique ou sphérique. Enfin, ce modèle a fait l'objet d'un couplage selon la méthode tabulaire avec Thermo-Calc en raison des gains de calcul par rapport à un couplage direct.

Les tests numériques appliqués à ce modèle ont démontré qu'il donnait des résultats stables vis-à-vis du pas de temps et du maillage microscopiques. Surtout, il a été démontré que le suivi exact des interfaces entre les différentes phases en présence par la transformation de Landau permettait d'obtenir des résultats satisfaisants avec un nombre limité de mailles. En revanche, le comportement de l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique est plus sensible au nombre de mailles adopté. En conclusion, ces résultats ont permis l'adoption d'un nombre limité de mailles dans le modèle de microségrégation lors des calculs micro-macro.

L'analyse théorique des résultats générés par le modèle a montré que la dynamique de l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique influence de manière déterminante l'évolution de la teneur en soluté dans le liquide. Des comparaisons entre les résultats du modèle et les résultats issus d'une approche simplifiée consistant à bloquer l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique ont révélé la conclusion suivante : au cours de la transformation péritectique, la prise en compte du mouvement de l'interface δ/γ affecte peu l'évolution de la composition en solutés substitutionnels dans le liquide mais influence de manière déterminante l'évolution de la composition en solutés interstitiels dans le liquide. Ce résultat est à prendre en considération pour expliquer théoriquement les profils de microségrégation dans des lingots pour des alliages comportant une transformation péritectique.

Les résultats générés par le modèle ont été confrontés aux résultats expérimentaux d'Addad sur des alliages Fe-Ni-C de différentes compositions. La comparaison quantitative des résultats a été réalisée au moyen des profils cumulés statistiquement plus représentatifs, même si les profils linéiques expérimentaux ont fourni des informations qualitatives supplémentaires très utiles à l'interprétation des résultats relatifs à l'établissement de la microségrégation. Le modèle a permis de proposer des éléments de réponse théoriques pour expliquer l'évolution des profils cumulés expérimentaux au cours de la solidification.

Les résultats générés par le modèle sont quantitativement tout à fait satisfaisants et reproduisent correctement les effets sur la microségrégation de la nature du premier solide déposé ou les effets de taille de structure. Le modèle a permis de confirmer, en parallèle des mesures expérimentales de microségrégation effectuées, l'importance d'un bon échantillonnage dans l'étape de définition de la zone d'analyse expérimentale.

L'étude de la microségrégation a ensuite été entreprise en système ouvert, ce qui correspond à la situation rencontrée lors de la solidification des lingots industriels. A cet effet, le modèle de microségrégation a été couplé avec le code macroscopique SOLID. Le modèle micro-macro résultant s'est révélé tout à fait robuste sur les configurations industrielles présentées dans ce manuscrit.

Une première application sur un lingot théorique a permis de vérifier quantitativement l'effet de la transformation péritectique sur l'intensité de la macroségrégation axiale envisagée qualitativement dans le chapitre III : la prise en compte de la transformation péritectique tend à atténuer l'intensité de la macroségrégation en certaines zones de l'axe du lingot.

Une seconde application a porté sur une étude plus fine de la microségrégation finale à l'état brut de coulée dans un lingot industriel de type 100C6. Une comparaison des profils cumulés en chrome obtenus le long de l'axe du lingot et dans une coupe transversale a été réalisée. Les profils cumulés calculés en fonction de la hauteur du lingot présentent la même allure et possèdent le même indice de microségrégation en chrome. L'évolution des profils en fonction de la distance à la peau montre que la modélisation de toute l'histoire locale de l'établissement de la microségrégation est requise pour obtenir les profils cumulés en fin de solidification.

Les exemples de couplage micro-macro présentés dans le chapitre V ne prennent pas en compte l'effet du retrait en cours de solidification. Or, il a été observé sur de nombreux lingots industriels la présence d'une ségrégation négative importante en peau dont des travaux précédents ont montré qu'elle pouvait être due au retrait. Cependant, les équations constitutives du modèle ont été établies dans ce manuscrit en prenant en compte les différences de densités des phases en présence dans le volume d'étude de la microségrégation. Le modèle peut donc se prêter à un nouveau couplage avec SOLID pour tester l'effet du retrait.

Un algorithme de résolution de la surfusion aux pointes de dendrites primaires couplé avec SOLID a déjà été testé avec succès [55]. Une prochaine étape de ce travail peut donc consister à coupler le modèle de microségrégation avec cet algorithme.

Le modèle de microségrégation dans le cas d'une morphologie dendritique complexe présente l'avantage d'être facilement généralisable au traitement de la croissance équiaxe, suivant l'idée de Beckermann et coll. [11] d'avoir une formulation unifiée du modèle suivant que l'on est dans une structure dendritique colonnaire ou équiaxe. L'introduction d'une loi de transition colonnaire-équiaxe dans SOLID a déjà été réalisée [55], ce qui permet de prédire l'étendue de la zone équiaxe dans un lingot. Le couplage avec le modèle de microségrégation présenté dans ce travail et prenant en compte la transformation péritectique pourrait par exemple être confronté aux travaux expérimentaux de Tiwari et Beech [89] et Bibby et Beech [90]. Ceux-ci ont en effet observé un effet de la réaction péritectique sur la formation de la zone équiaxe dans des aciers faiblement chargés. Ainsi, pour des compositions nominales proches de la composition péritectique de l'alliage, la zone équiaxe est plus étendue.

Enfin, des travaux récents ont montré que la prise en compte du mouvement des grains équiaxes dans la modélisation de la solidification des lingots [34, 114] permettait d'obtenir des profils de macroségrégation plus proches des résultats expérimentaux. Une réflexion sur le couplage du modèle de microségrégation présent avec le mouvement des grains équiaxes peut donc se révéler productive.

BIBLIOGRAPHIE

- 1- X. Doré, H. Combeau, M. Rappaz
Modelling of microsegregation in ternary alloys : application to the solidification of Al-Mg-Si
Acta Materiala, 48 (2000), 3951-3962
- 2- M. Hillert
Criterion for peritectic and eutectic reactions
Journal of the iron and steel institute, 189 (1958), 224-226
- 3- M. Bobadilla
solidification des aciers austénitiques : microségrégation et formation des structures
thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, soutenue le 17 septembre 1984
- 4- G.H.Gulliver
The quantitative effect of rapid cooling upon the constitution of binary alloys
J. Inst. Metals, Vol.9, 120
- 5- E. Scheil
Zeitschrift für Metallkunde, 34 (1942), 70-72
- 6- H.D. Brody, M.C. Flemings
Transactions of the Metallurgical Society of AIME, 236 (1966), 615
- 7- V.R. Voller
A semi-analytical model of microsegregation in a binary alloy
Journal of crystal Growth, 197 (1999), 325-332
- 8- Y.M. Won, B.G. Thomas
simple model of microsegregation during solidification of steels
Metallurgical and materials Transactions A, 32A (2001), 1755-1767
- 9- T.W. Clyne, W. Kurz
Metallurgical Transactions, 12A (1981), 965-971
- 10- I. Ohnaka
Trans. Iron Steel Inst. Jpn., 26 (1986), 1045-51
- 11- C.Y. Wang, C. Beckermann
A unified solute diffusion model for columnar and equiaxed dendritic alloy solidification
Materials Science and Engineering, A171 (1993), 199-211
- 12- C.Y. Wang, C. Beckermann
A multiphase solute diffusion model for dendritic alloy solidification
Metallurgical Transactions A, 24A (1993), 2787-2802

- 13- H. Combeau, J.-M. Drezet, A. Mo, M. Rappaz
Modeling of microsegregation in macrosegregation computations
Metallurgical and materials Transactions A, 27A (août 1996), 1314-1327
- 14- M.C. Schneider, C. Beckermann
Formation of macrosegregation by multicomponent thermosolutal convection during the solidification of steel
Metallurgical and materials Transactions A, 26A (1995), 2373-2387
- 15- H.W. Kerr, W. Kurz
Solidification of peritectic alloys
International Materials Reviews, Vol.41 (1996), No.4, 129-164
- 16- H. Fredriksson, G. Nylén
Mechanism of peritectic reactions and transformations
Metal Science, 16 (juin 1982), 283-294
- 17- D.H. St. John, L.M. Hogan
the peritectic transformation
Acta Metallurgica, 25 (1977), 77-81
- 18- K. Matsuura, H. Maruyama, Y. Itoh, M. Kudoh, K. Ishii
Rate of peritectic reaction in iron-carbon system measured by solid/liquid diffusion couple method
ISIJ International, 35 (1995), No.2, 183-187
- 19- H. Fredriksson
The mechanism of the peritectic reaction in iron-base alloys
Metal science, (1976), 77-87
- 20- H. Fredriksson, J. Sternjdahl
Solidification of iron-base alloys
Metal science, 16 (1982), 575-585
- 21- H; Fredriksson, J. Stjerndahl
The influence of the ferrite to austenite transformation on the formation of sulfides
Metallurgical Transactions A, 8A (1977), 1107-1115
- 22- H. Fredriksson
Transition from peritectic to eutectic reaction in iron-base alloys, solidification and casting of metals
The Metals Society, London, (1979), 131-138
- 23- M.C. Schneider, C.Beckermann
Simulation of micro/macroseggregation during the solidification of a low-alloy steel
ISIJ International, 35 (1995), No.6, 665

- 24- Y. Ueshima, S. Mizoguchi, T. Matsumiya, H. Kajioka
Analysis of solute distribution in dendrites of carbon steel with δ/γ transformation during solidification
Metallurgical Transactions B, 17B (décembre 1986), 845-859
- 25- A. A. Howe
Micro-segregation in multicomponent steels involving the peritectic reaction
Ph.D. thesis, Sheffield University, 1993
- 26- J. Miettinen
mathematical simulation of interdendritic solidification of low-alloyed and stainless steels
Metallurgical transactions A, 23A (1992), 1155-1170
- 27- K. Matsuura, Y. Itoh, T. Narita
A Solid-liquid Diffusion Couple Study of a Peritectic Reaction in Iron-Carbon System
ISIJ International, 33 (1993), No.5, 583-587
- 28- C. Wagner
The evaluation of data obtained with diffusion couples of binary single-phase and multiphase systems
Acta Metallurgica, 17 (1969)
- 29- B. Giovanola, W. Kurz
Modeling of Microsegregation under Rapid Solidification Conditions
Metallurgical Transactions A, 21A (1990)
- 30- X. Tong, C. Beckermann
A diffusion boundary layer model of microsegregation
Journal of crystal growth, 187 (1998), 289-302
- 31- W. Kurz, Fischer
Fundamentals of solidification
Trans Tech Publications LTD
- 32- M.C. Flemings
Solidification processing
McGraw-Hill, New-York, 1974
- 33- A. Mortensen
Metallurgical Transactions A, 22A (1991), 569
- 34- B. Appolaire
Prise en compte du mouvement des cristaux équiaxes dans la modélisation de la solidification des lingots d'acier coulés en fonderie
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, soutenue en 1999

- 35- V.R. Voller, C. Beckermann
A unified model of microsegregation and coarsening
Metallurgical and materials transactions A, 30A, (août 1999), 2183-2189.
- 36- V.R. Voller
A semi-analytical model of microsegregation and coarsening in a binary alloy
Journal of crystal growth, 197 (1999), 333-340
- 37- H. Yoo, R. Viskanta
Solute redistribution limit in coarsening dendrite arms during binary alloy solidification
Int. J. Heat Mass Transfer, 40 (1997), No. 16, 3875-3882
- 38- A. Roosz, E. Halder, H.E. Exner
Numerical calculation of microsegregation in coarsened dendritic microstructures
Materials science and technology, 2 (novembre 1986), 1149-1155
- 39- M. Bobadilla, J. Lacaze, G. Lesoult
Effect of cooling rate on the solidification behaviour of austenitic stainless steels
Scandinavian Journal of Metallurgy, 25 (1996), 2-10
- 40- R.T. DeHoff
Diffusion controlled growth in polycomponent systems
J. Phys. Chem., 43 (1982), 325
- 41- M. Hillert
Nature of local equilibrium at the interface in the growth of ferrite from alloyed austenite
Scripta Materiala, 46 (2002), 447-453
- 42- J.P. Gu, C. Beckermann
Simulation of convection and macrosegregation in a large steel ingot
Metallurgical and materials Transactions A, 30A (1999), 1357-1366
- 43- W.J. Boettinger, U.R. Kattner, S. R. Coriell, Y.A. Chang, B.A. Mueller
Development of multicomponent solidification micromodels using a thermodynamic phase diagram database
Modelling of casting, Welding and advanced solidification processes VII, edited by M. Cross and J. Campbell, The Minerals, Metals and Materials Society, 1995
- 44- M.C. Schneider, J.P. Gu, C. Beckermann, W.J. Boettinger, U.R. Kattner
Modeling of micro- and Macroseggregation and freckle formation in single-Crystal Nickel-base superalloy directional solidification
Metallurgical and materials Transactions A, 28A (1997), 1517-1531
- 45- J. Miettinen
Calculation of solidification-related thermophysical properties for steels
Metallurgical and materials transactions B, 28B (1997), 281-297

- 46- J. Miettinen
Thermodynamic-kinetic simulation of solidification in binary fcc copper alloys with calculation of thermophysical properties
Computational Materials Science, 22 (2001), 240-260
- 47- J. Miettinen, S. Louhenkilpi
Calculation of thermophysical properties of carbon and low alloyed Steels for modeling of solidification processes
Metallurgical and materials transactions B, 25B (1994), 909-916
- 48- C. Beckermann
Modelling and macrosegregation: applications and future needs
International Materials Reviews, 47 (2002), No.5, 243-261
- 49- N. Ahmad, H. Combeau, J.L. Desbiolles, T. Jalanti; G. Lesoult, J. Rappaz, M. Rappaz, C. Stomp
Metallurgical and materials Transactions A, 29A (1998), 617-630
- 50- M.C. Schneider, C. Beckermann
Simulation of micro-macroseggregation during the solidification of a low-alloyed Steel
ISIJ International, 35 (1995), No.6, 665-672
- 51- M.J.M. Krane, F. Incropera, D.R. Gaskell
Solidification of ternary metal alloys-I. Model development
Int. J. Heat Mass Transfer, 40 (1997), No.16, 3827-3835
- 52- M.J.M. Krane, F. Incropera
Solidification of ternary metal alloys-II. Predictions of convective phenomena and solidification behavior in Pb-Sn alloys
Int. J. Heat Mass Transfer, 40 (1997), No. 16, 3837-3847
- 53- M.J.M. Krane, F. Incropera, D.R. Gaskell
Solidification of a ternary metal alloys: a comparison of experimental Measurements and model predictions in a Pb-Sb-Sn System.
Metallurgical and Materials Transactions A, 29 (1998), 843-853
- 54- V.R. Voller
A semi-analytical model of microsegregation in a binary alloy
Journal of crystal Growth, 197 (1999), 325-332
- 55- I. Vannier
Modélisation de la solidification des lingots d'acier
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, soutenue en 1995
- 56- Guide to the Solidification of Steels
Stockholm, Jernkontoret, 1977
- 57- S. Kobayashi
A mathematical model for solute redistribution during dendritic solidification
Transactions ISIJ, 28 (1988), 535-542

- 68- T. Kraft, H.E. Exner
Numerische Simulation der Erstarrung
Teil 2 : Mikrosegierungen in ternären und höherkomponentigen Legierungen
Z. Metallkd., 87 (1996), No.8, 652-660
- 69- A. Borgenstam, A. Engström, L. Höglund, J. Agren
DICTRA, a tool for simulation of diffusional transformations in alloys
Journal of phase equilibria, 21 (2000), No. 3, 269-280
- 70- U.R. Kattner
The Thermodynamic modeling of multicomponent phase equilibria
JOM, (déc. 1997)
- 71- T. Kraft, Y.A. Chang
Predicting microstructure and microsegregation in multicomponent alloys
JOM, (déc. 1997)
- 72- X. Yan, F. Xie, M. Chu, Y.A. Chang
Microsegregation in Al-4,5Cu wt% : experimental investigation and numerical modelling
Materials Science and Engineering, A302 (2001), 268-274
- 73- F. Xie, T. Kraft, Y. Zuo, C.-H. Moon, Y.A. Chang
Microstructure and microsegregation in Al-rich Al-Cu-Mg alloys
Acta Materiala, 47 (1999), No. 2, 489-500
- 74- X. Yan, S. Chen, F. Xie, Y.A. Chang
Computational and experimental investigation of microsegregation in an Al-rich Al-Cu-Mg-Si quaternary alloy
Acta Materiala, 50 (2002), 2199-2207
- 75- J. Lacaze, P. Begnini, A. Howe
Some issues concerning experiments and models for alloy microsegregation
Advanced engineering materials, 5 (2003), No.1-2, 37-46
- 76- G.P. Ivantsov
Doklady Akademii Nauk SSSR 58 (1947) 567.
- 77- D. Xu
A Unified Microscale-Parameter Approach to Solidification–Transport Phenomena-Based Macrosegregation Modeling for Dendritic Solidification : Part I. Mixture Average-Based Analysis
Metallurgical and Materials Transactions B, 32B (dec 2001), 1129-1141
- 78- D. Xu
A Unified Microscale Parameter Approach to Solidification –Transport Process-Based Macrosegregation Modeling for Dendritic Solidification : Part II. Numerical example Computations
Metallurgical and Materials Transactions B, 32B (dec 2001), 1129-1141

- 79- D. Xu, J. Guo, H. Fu, W. Bi
Influence of dendrite morphologies and solid-back diffusion on macrosegregation in directionally solidified blade-like casting
Materials Science and Engineering, A344 (2003), 64-73
- 80- C.H.P. Lupis
Chemical Thermodynamics of Materials
1983, by Elsevier Science Publishing Co.
- 81- A.A. Howe
Estimation of liquidus temperature for steels
Ironmaking and steelmaking, 15 (1988), No. 3, 134-142
- 82- H. Combeau, A. Mo
Eutectic reaction and Nonconstant Materials Parameters in Micro-Macroseggregation Modeling
Metallurgical and Materials Transactions A, 28A (dec 1997), 2705-2714
- 83- T. Mazet
Etude des structures de solidification et des ségrégations dans les lingots d'acier
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995
- 84- A. Das, I. Manna, S.K. Pabi
A numerical model of peritectic transformation
Acta Materiala, 47 (1999), No. 4, 1379-1388
- 85- Y.K. Chang, D. Reinisch, K. Schwerdtfeger
Kinetics of the diffusion controlled peritectic reaction during solidification of iron-carbon-alloys
Metallurgical transactions A, 6A (1975), 235-238
- 86- C.Y. Wang, C. Beckermann
Equiaxed dendritic solidification with convection: Part I. Multiscale/Multiphase modelling
Metallurgical and materials transactions A, 27A (1996), 2754-2764
- 87- R.P. Sahu
Criterion for peritectic and eutectic reactions in ternary systems
Metallurgical transactions A, 6A (1975), 248-249
- 88- A. Addad
Amélioration du modèle de microségrégation, prise en compte des équilibres thermodynamiques entre phases: caractérisation expérimentale de la microségrégation
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, en préparation
- 89- S.N. Tiwari, J. Beech
The role of the peritectic reaction in the formation of the equiaxed zone in iron base alloys
Transactions ISIJ, 21 (1981), 554-558

- 90- P.A. Bibby, J. Beech
Solidification behaviour of low-alloy steel castings
Journal of the Iron and Steel Institute, (1973), 290-292
- 91- T. Matsumiya, H. Kajioka, S. Mizoguchi, Y. Ueshima, H. Esaka
Analysis of solute distribution in dendrites of carbon steel with δ/γ transformation during solidification
Metallurgical Transactions B, 17B, (1986), 845-859
- 92- C.Y. Wang, C. Beckermann
Prediction of columnar to Equiaxed Transition during diffusion controlled dendritic alloy solidification
Metallurgical and materials transactions A, 25A (1994), 1081-1093
- 93- Hervé Combeau
Habilitation à Diriger des Recherches
- 94- G. Lesoult
Croissance cristalline
Polycopié de cours donné dans le cadre du DEA SIM : Science et Ingénierie des Matériaux, école doctorale EMMA
- 95- W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling
Numerical recipes: The Art of Scientific Computing
Cambridge University Press, New-York, 1988.
- 96- J.S. Langer, H. Müller-Krumbharr
Theory of dendritic growth
Acta Metallurgica, 26 (1978), 1681; 1689; 1697
- 97- T.Z. Kattamis, J.C. Coughlin, M.C. Flemings
Influence of coarsening on dendrite arm spacing of aluminium-Copper alloys
Transaction of the metallurgical society of AIME, 239 (1967), 1504
- 98- D. Bouchard, J.S. Kirkaldy
Prediction of dendrite arm spacings in unsteady-state heat flow of unidirectionally solidified binary alloys
Metallurgical and Materials Transactions B, 28B (1997), 651-663
- 99- K.P. Young, D.H. Kirkwood
The dendrite arm spacings of aluminium-copper alloys solidified under steady-state conditions
Metallurgical Transactions A, 6A (1975), 197-205
- 100- A. Mortensen
The influence of Coarsening on microsegregation
Metallurgical Transactions A, 20A (1989), 247-253

- 101- E. Halder, A. Roos, H.E. Exner, H.F. Fischmeister
Numerical calculation of the concentration distribution during the solidification of binary alloys allowing for dendrite arm coarsening
Materials Science Forum, Vol. 13-14, 1987, 547-558, Trans Tech Publications, Switzerland
- 102 D.A. Melford, D.A. Granger
Relationship between microsegregation and macrostructure in killed steel ingots
The Solidification of Metals, 289-294
- 103 J. Lacaze, G. Lesoult
Modelling the development of microsegregation during solidification of an Al-Cu-Mg-Si alloy
ISIJ International, (1995), 658-664
- 104 M.J. Aziz
Model for solute redistribution during rapid solidification
J. Applied. Physics, 53 (1982), 1158-1168
- 105 J.E. Ricci
The phase rule and heterogeneous equilibrium
Nostrand Company Inc. - New York, D. Van-1951, 226.
- 106 D.R.F. West
Ternary equilibrium diagrams
edn, 24-32, 1982, London, Chapman and Hall
- 107 S.A. Cefalu, M.J.M. Krane
Microsegregation in open and closed systems
Materials and Engineering A, 359 (2003), 91-99
- 108 J. Lacaze, G. Lesoult
Birth, growth and ripening of solidification structures
Acta Stereol , 5 (1986), No. 2, 331-336
- 109 C. Cicutti, P. Bilmes, R. Boeri
Estimation of primary dendrite arm spacings in continuous casting products
Scripta Materialia, 37 (1997), No 5, 599-607
- 110 W. Kurz, B. Giovanola, R. Trivedi
Theory of microstructural development during rapid solidification
Acta metallurgica, 34 (1986), No. 5, 823-830
- 111 D.H. Kirkwood
Material Science and Engineering, 73 (1985)
- 112 M. Gündüz, E. Çadirli
Directional solidification of aluminium-copper alloys
Materials Science and Engineering, A327 (2002), 167-185

- 113 H. Jacobi, K. Schwerdtfeger
Dendrite morphology of steady state unidirectionally solidified steel
Metallurgical Transactions A, 7A (1976), 811
- 114 B. Rabia
Modélisation du mouvement des grains équiaxes au cours de la solidification des lingots d'acier
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, soutenue en 2004

ANNEXE 1 : PROCEDURES DE CALCUL DES SURFUSIONS ET VITESSES DE POINTES PRIMAIRES ET SECONDAIRES UTILISEES DANS LE MODELE DE MICROSEGREGATION

A1-1. ALGORITHME DE CALCUL DE LA SURFUSION AUX POINTES PRIMAIRES DE DENDRITES A PARTIR DES VALEURS DU GRADIENT THERMIQUE MOYEN ET DE LA VITESSE DES POINTES PRIMAIRES

Si l'on suppose connus le gradient thermique moyen $\bar{G}_T = \frac{G_T^s + G_T^l}{2}$ ainsi que la vitesse des pointes primaires U_{PP} , l'algorithme de résolution est le suivant :

1) $\xi(Pe_i)$ est initialisé à 1 et $w_i^{l/s}$ à w_i^0 .

2) $r_p|^{iter}$ est calculé à l'aide de la relation suivante (1.29) :

$$r_p^2 = \frac{\Gamma}{\sigma} \left\{ \sum_i \frac{U_{PP}}{D_i^l} m_i (k_i - 1) w_i^{l/s} \xi(Pe_i) - \bar{G} \right\}^{-1}$$

3) Connaissant $r_p|^{iter}$ et U_{PP} , il est possible de calculer pour chaque soluté $Pe_i|^{iter}$ et donc $\xi(Pe_i)|^{iter}$

4) On calcule $w_i^{l/s}|^{iter}$ et $T^{pointe}|^{iter}$ à l'aide des relations (A1.1) et (A1.2) :

$$w_i^{l/s} = \frac{w_i^0}{1 - (1 - k_i) I_V(Pe_i)} \quad (A1.1)$$

$$T^{pointe} = T^{liq} + \sum_i m_i (w_i^0 - w_i^{l/s}) \quad (A1.2)$$

5) On calcule le résidu $\varepsilon = (T^{pointe}|^{iter} - T^{pointe}|^{iter-1}) / T^{pointe}|^{iter}$

6) Si $\varepsilon < 10^{-5}$, $T^{pointe} = T^{pointe}|^{iter}$, sinon on retourne à 2).

Pour la ferrite, $\Gamma(\delta) = 2,65 \cdot 10^{-7} \text{ m.K}$ [39]

Pour l'austenite, $\Gamma(\gamma) = 3,19 \cdot 10^{-7} \text{ m.K}$ [39]

La constante de stabilité σ est prise égale à $1/4\pi^2$.

A1-2. ALGORITHME DE CALCUL DE LA VITESSE DES POINTES SECONDAIRES DE DENDRITES U_{PS} DANS LE CAS D'UNE CROISSANCE CONTROLEE PAR DIFFUSION

Cette partie reprend l'algorithme développé par Appolaire dans le cadre de sa thèse [34]. Les équations constitutives permettant de calculer U_{ps} dans le cas des alliages multiconstitués sont les suivantes :

$$\Delta T = \sum_i m_i \bar{w}_i^{le} \left(1 - \frac{1}{1 - (1 - k_i) I_V(Pe_i)} \right) \quad (A1.3)$$

$$r_{ps} = \frac{\Gamma}{\sigma} \left\{ \sum_i Pe_i m_i (k_i - 1) w_i^{1/s} \xi(Pe_i) \right\}^{-1} \quad (A1.4)$$

La relation (A1.3) se met sous la forme d'une fonction de variable $r_{ps} U_{ps}$ dont on cherche le zéro correspondant à la surfusion ΔT . Ce zéro est recherché par la méthode de Vijnngaarden-Dekker-Brent [95]. Connaissant $r_{ps} U_{ps}$, l'équation (A1.4) donne directement la valeur du rayon de pointe correspondant r_{ps} , à partir de laquelle il est facile de trouver U_{ps} .

ANNEXE 2 : BILANS DE CONSERVATION DE LA MASSE EN SOLUTE A L'INTERFACE ϕ_1/ϕ_2

Soit ψ^ϕ une grandeur physique définie sur la phase ϕ . Sa moyenne $\langle \psi^\phi \rangle$ définie sur le V.E.R. est donnée par :

$$\langle \psi^\phi \rangle = \frac{1}{V_0} \int_{V^\phi} \psi^\phi \gamma^\phi dV \quad (A2.1)$$

où γ^ϕ est la fonction de phase définie de la manière suivante :

$$\gamma^\phi(\bar{x}, t) = \begin{cases} 1 & \text{dans la phase } \phi \\ 0 & \text{dans l'autre phase} \end{cases} \quad (A2.2)$$

Cette moyenne ne correspondant pas à la valeur usuelle de la moyenne, on définit également une moyenne dite moyenne intrinsèque de phase, notée $\langle \psi^\phi \rangle^\phi$:

$$\langle \psi^\phi \rangle^\phi = \frac{1}{V^\phi} \int_{V^\phi} \psi^\phi dV \quad (A2.3)$$

où V^ϕ est le volume occupé par la phase ϕ à l'intérieur du volume V_0 :

$$V^\phi = \int_{V_0} \gamma^\phi dV$$

Etant donné que ψ^ϕ est une propriété spécifique à la phase ϕ , donc nulle dans les autres phases, la relation entre moyenne de phase et moyenne intrinsèque de phase s'écrit :

$$\langle \psi^\phi \rangle = g^\phi \langle \psi^\phi \rangle^\phi \quad (A2.4)$$

avec $g^\phi = \frac{V^\phi}{V_0}$

Ces différentes grandeurs interviennent dans la méthode de prise de moyenne utilisée dans cette partie et largement exposée dans la référence [93].

A2-1. BILAN DE CONSERVATION GLOBALE DE LA MASSE DANS UNE PHASE ϕ

La méthode de prise de moyenne appliquée à la conservation globale de la masse dans une phase ϕ permet d'établir :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\phi g^\phi) + \vec{\nabla}(\rho^\phi g^\phi \langle \vec{V}^\phi \rangle^\phi) + \frac{1}{V_0} \int_{\phi/e} \rho^\phi (\vec{V}^\phi - \vec{\Omega}^{\phi/e}) \cdot \vec{n}^{\phi/e} dS = 0 \quad (A2.5)$$

e désigne l'ensemble des phases en contact avec la phase ϕ

\vec{V}^ϕ est le vecteur vitesse absolue de la phase ϕ à l'interface ϕ/e

$\vec{\Omega}^{\phi/e}$ est le vecteur vitesse absolue de l'interface ϕ/e

$\vec{n}^{\phi/e}$ est le vecteur unitaire normal à l'interface ϕ/e orienté vers e

Pour alléger les notations, on pose habituellement $\Gamma_{\phi_1/\phi_2} = \frac{1}{V_0} \int_{\phi_1/\phi_2} \rho^{\phi_1} (\vec{V}^{\phi_1} - \vec{\Omega}^{\phi_1/\phi_2}) \cdot \vec{n}^{\phi_1/\phi_2} dS$

Application

- Pour la phase solide primaire s supposée fixe au cours de la solidification, $e = \{l\}$ d'où :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^s g^s) + \Gamma_{s/l} = 0 \quad (A2.6)$$

- Pour la ferrite supposée fixe au cours de la transformation péritectique, $e = \{\gamma\}$:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta) + \Gamma_{\delta/\gamma} = 0 \quad (A2.7)$$

- Pour l'austénite supposée fixe au cours de la transformation péritectique, $e = \{\delta, l\}$:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) + \Gamma_{\gamma/\delta} + \Gamma_{\gamma/l} = 0 \quad (A2.8)$$

- Pour le liquide intradendritique en présence de liquide extradendritique, $e = \{s, l\}$:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^{li} g^{li}) + \vec{\nabla}(\rho^{li} g^{li} \langle \vec{V}^{li} \rangle^{li}) + \Gamma_{li/s} + \Gamma_{li/le} = 0 \quad (A2.9)$$

A2-2. BILAN DE CONSERVATION GLOBALE DE LA MASSE A L'INTERFACE $\varphi 1/\varphi 2$

Le bilan local de la masse en un point de l'interface $\varphi 1/\varphi 2$ s'écrit :

$$\rho^{\varphi 1}(\vec{V}^{\varphi 1} - \vec{\Omega}^{\varphi 1/\varphi 2}) \cdot \vec{n}^{\varphi 1/\varphi 2} + \rho^{\varphi 2}(\vec{V}^{\varphi 2} - \vec{\Omega}^{\varphi 1/\varphi 2}) \cdot \vec{n}^{\varphi 2/\varphi 1} = 0 \quad (A2.10)$$

$\vec{V}^{\varphi 1}$ est le vecteur vitesse absolue de la phase $\varphi 1$ à l'interface $\varphi 1/\varphi 2$

$\vec{V}^{\varphi 2}$ est le vecteur vitesse absolue de la phase $\varphi 2$ à l'interface $\varphi 1/\varphi 2$

$\vec{\Omega}^{\varphi 1/\varphi 2}$ est le vecteur vitesse absolue de l'interface $\varphi 1/\varphi 2$

$\vec{n}^{\varphi 1/\varphi 2}$ est le vecteur unitaire normal à l'interface $\varphi 1/\varphi 2$ orienté vers $\varphi 2$

$\vec{n}^{\varphi 2/\varphi 1}$ est le vecteur unitaire normal à l'interface $\varphi 1/\varphi 2$ orienté vers $\varphi 1$

L'intégration de l'équation (A2.10) le long de l'interface $\varphi 1/\varphi 2$ donne :

$$\Gamma_{\varphi 1/\varphi 2} + \Gamma_{\varphi 2/\varphi 1} = 0 \quad (A2.11)$$

Application

- A l'interface s/l en cours de solidification primaire :

$$\Gamma_{s/l} + \Gamma_{l/s} = 0 \quad (A2.12)$$

- A l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique :

$$\Gamma_{\delta/\gamma} + \Gamma_{\gamma/\delta} = 0 \quad (A2.13)$$

- A l'interface γ/l au cours de la transformation péritectique :

$$\Gamma_{\gamma/l} + \Gamma_{l/\gamma} = 0 \quad (A2.14)$$

- A l'interface liquide intradendritique/liquide extradendritique :

$$\Gamma_{li/le} + \Gamma_{le/li} = 0 \quad (A2.15)$$

A2-3. BILAN DE CONSERVATION DE LA MASSE DE SOLUTE A L'INTERFACE $\phi 1/\phi 2$

Le bilan local de la masse de soluté en un point de l'interface $\phi 1/\phi 2$ s'écrit :

$$\rho^{\phi 1} w^{\phi 1/\phi 2} (\vec{\nabla}^{\phi 1} - \vec{\Omega}^{\phi 1/\phi 2}) \cdot \vec{n}^{\phi 1/\phi 2} + \vec{J}^{\phi 1/\phi 2} \cdot \vec{n}^{\phi 1/\phi 2} + \rho^{\phi 2} w^{\phi 2/\phi 1} (\vec{\nabla}^{\phi 2} - \vec{\Omega}^{\phi 1/\phi 2}) \cdot \vec{n}^{\phi 2/\phi 1} + \vec{J}^{\phi 2/\phi 1} \cdot \vec{n}^{\phi 2/\phi 1} = 0 \quad (\text{A2.16})$$

avec $\vec{J}^{\phi 1/\phi 2} = -[\rho^{\phi 1} D^{\phi 1} \vec{\nabla} w^{\phi 1}]^*$ et $\vec{J}^{\phi 2/\phi 1} = -[\rho^{\phi 2} D^{\phi 2} \vec{\nabla} w^{\phi 2}]^*$.

A l'intérieur du V.E.R., on suppose que $w^{\phi 1/\phi 2}$ et $w^{\phi 2/\phi 1}$ ne varient pas le long de l'interface $\phi 1/\phi 2$. Si l'on adopte la même hypothèse pour la composante normale du gradient de soluté de par et d'autre de l'interface, il vient après intégration de (A2.16) le long de l'interface $\phi 1/\phi 2$:

$$w^{\phi 1/\phi 2} \Gamma_{\phi 1/\phi 2} + [\rho^{\phi 1} D^{\phi 1} \vec{\nabla} w^{\phi 1} \cdot \vec{n}^{\phi 1/\phi 2}]^* \frac{1}{V_0} \int_{\phi 1/\phi 2} dS + w^{\phi 2/\phi 1} \Gamma_{\phi 2/\phi 1} + [\rho^{\phi 2} D^{\phi 2} \vec{\nabla} w^{\phi 2} \cdot \vec{n}^{\phi 2/\phi 1}]^* \frac{1}{V_0} \int_{\phi 1/\phi 2} dS = 0 \quad (\text{A2.17})$$

Par définition, la surface spécifique $S_v^{\phi 1/\phi 2} = \frac{1}{V_0} \int_{\phi 1/\phi 2} dS$. En notant $J^{\phi 1/\phi 2} = [\rho^{\phi 1} D^{\phi 1} \vec{\nabla} w^{\phi 1} \cdot \vec{n}^{\phi 1/\phi 2}]^*$ et

$J^{\phi 2/\phi 1} = [\rho^{\phi 2} D^{\phi 2} \vec{\nabla} w^{\phi 2} \cdot \vec{n}^{\phi 2/\phi 1}]^*$, on obtient :

$$(w^{\phi 1/\phi 2} - w^{\phi 2/\phi 1}) \Gamma_{\phi 1/\phi 2} = S_v^{\phi 1/\phi 2} (J^{\phi 1/\phi 2} + J^{\phi 2/\phi 1}) \quad (\text{A2.18})$$

Application

- A l'interface s/l en cours de solidification primaire :

D'après (A2.6), $\Gamma_{s/l} = -\frac{\partial}{\partial t}(\rho^s g^s)$ d'où :

$$(1-k^{l/s}) w^{l/s} \frac{\partial}{\partial t}(\rho^s g^s) = S_v^{s/l} (J^{s/l} + J^{l/s}) \quad (\text{A2.19})$$

- A l'interface δ/γ au cours de la transformation péritectique :

D'après (A2.7), $\Gamma_{\delta/\gamma} = -\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta)$ d'où :

$$(1-k^{\delta/\gamma}) w^{\gamma/\delta} \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta) = S_v^{\delta/\gamma} (J^{\delta/\gamma} + J^{\gamma/\delta}) \quad (\text{A2.20})$$

- A l'interface γ/l au cours de la transformation péritectique :

D'après (A2.7) et (A2.8), $\Gamma_{\gamma/l} = -\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) - \Gamma_{\gamma/\delta} = -\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) + \Gamma_{\delta/\gamma} = -\frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) - \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta)$ d'où :

$$(1-k^{l/\gamma}) w^{l/\gamma} \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\gamma g^\gamma) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\delta g^\delta) = S_v^{\gamma/l} (J^{\gamma/l} + J^{l/\gamma}) \quad (\text{A2.21})$$

- A l'interface liquide intradendritique/solide dans le cas d'une morphologie complexe :

si le liquide en contact avec les phases solides est intradendritique, dans lequel la composition en soluté est supposé uniforme, alors $J^{l/s}$ est une forme indéterminée. Les équations (A 2.19) et (A2.21) ne sont pas utilisables et sont remplacées par le bilan de masse de soluté dans le liquide intradendritique.

La loi de conservation de la masse moyennée pour le soluté dans la phase ϕ s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho^\varphi \mathbf{g}^\varphi \langle \mathbf{w}^\varphi \rangle^\varphi) + \vec{\nabla}(\rho^\varphi \mathbf{g}^\varphi \langle \vec{\mathbf{V}}^\varphi \rangle^\varphi \langle \mathbf{w}^\varphi \rangle^\varphi) + \frac{1}{V_0} \int_{\varphi/e} [\rho^\varphi \mathbf{w}^\varphi (\vec{\mathbf{V}}^\varphi - \vec{\Omega}^{\varphi/e})] \cdot \vec{\mathbf{n}}^{\varphi/e} dS = \\ \vec{\nabla}(\rho^\varphi \mathbf{g}^\varphi D^\varphi \vec{\nabla}(\langle \mathbf{w}^\varphi \rangle^\varphi)) + \frac{1}{V_0} \int_{\varphi/e} \rho^\varphi D^\varphi \vec{\nabla} \mathbf{w}^\varphi \cdot \vec{\mathbf{n}}^{\varphi/e} dS \end{aligned} \quad (\text{A2.22})$$

HA2.1 : la diffusion du soluté dans la phase φ est supposée négligeable à l'échelle macroscopique, d'où $\vec{\nabla}(\rho^\varphi \mathbf{g}^\varphi D^\varphi \vec{\nabla}(\langle \mathbf{w}^\varphi \rangle^\varphi)) = 0$.

Son application au liquide intradendritique donne :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \mathbf{w}^{li}) + \vec{\nabla}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \langle \vec{\mathbf{V}}^{li} \rangle^{li} \mathbf{w}^{li}) + \mathbf{w}^{li} \Gamma_{li/s} + \mathbf{w}^{li} \Gamma_{li/le} = S_v^{s/li} \mathbf{j}^{li/s} + S_v^{li/le} \mathbf{j}^{li/le} \quad (\text{A2.23})$$

De plus, l'équation de conservation de la masse (A2.5) appliquée au liquide intradendritique donne :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li}) + \vec{\nabla}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \langle \vec{\mathbf{V}}^{li} \rangle^{li}) + \Gamma_{li/s} + \Gamma_{li/le} = 0 \quad (\text{A2.24})$$

En combinant (A2.19), (A2.23), et (A2.24), il vient :

$$\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \frac{\partial}{\partial t}(\mathbf{w}^{li}) - \mathbf{w}^{li} \vec{\nabla}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \langle \vec{\mathbf{V}}^{li} \rangle^{li}) + \vec{\nabla}(\rho^{li} \mathbf{g}^{li} \langle \vec{\mathbf{V}}^{li} \rangle^{li} \mathbf{w}^{li}) = - S_v^{s/li} \mathbf{j}^{s/li} + (\mathbf{w}^{s/li} - \mathbf{w}^{li/s}) \Gamma_{s/li} + S_v^{li/le} \mathbf{j}^{le/li} \quad (\text{A2.25})$$

ANNEXE 3 : BILAN DE CONSERVATION DE LA MASSE EN SOLUTE DANS LA PHASE φ

La forme locale de conservation de la masse en soluté i dans la phase φ s'écrit :

$$\frac{\partial(\rho^{\varphi} w_i^{\varphi})}{\partial t} + \vec{\nabla}(\rho^{\varphi} w_i^{\varphi} \vec{V}^{\varphi}) = - \vec{\nabla}(\vec{J}_i^{\varphi}) \quad (\text{A3.1})$$

Avec

$$\vec{J}_i^{\varphi} = \rho^{\varphi} D_i^{\varphi} \vec{\nabla} w_i^{\varphi} \quad (\text{A3.2})$$

Les notations i et φ sont supprimées dans cette partie pour alléger les notations.

A3-1. TRAITEMENT DU TERME DE DIFFUSION

Si l'on ne tient pas compte du terme de convection, la forme locale de conservation de la masse en soluté i dans la phase φ devient la seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial t} = - \vec{\nabla}(\vec{J}) \quad (\text{A3.3})$$

A3-1.1. CAS D'UNE MORPHOLOGIE SIMPLIFIEE

Pour les géométries cartésienne, axisymétrique ou sphérique, la seconde loi de Fick prend la forme simplifiée suivante : $\frac{\partial(\rho w)}{\partial t} = \frac{1}{r^N} \frac{\partial}{\partial r} (r^N \rho D \frac{\partial w}{\partial r})$ (A3.4)

avec :

- $N=0$ en géométrie cartésienne
- $N=1$ en géométrie axisymétrique
- $N=2$ en géométrie sphérique

La transformation de Landau consiste à effectuer le changement de coordonnées suivant : la variable spatiale r est convertie en une variable réduite ξ propre à chaque phase. ξ sera nommée ζ dans le premier solide qui se dépose au cours de la solidification (solide 1), η dans le second solide qui se dépose au cours de la solidification (solide 2) et χ dans le liquide. Les expressions de ces coordonnées en fonction de r sont indiquées dans le tableau A3.1. On rappelle que dans le cas d'une géométrie simplifiée, λ désigne la taille caractéristique du domaine (voir I-6.1.).

Dans ce nouveau repère, les interfaces ont des coordonnées fixes et ζ , η et χ ont des valeurs toujours comprises entre 0 et 1 (voir figures II-7).

La transformation de Landau fait apparaître comme nouvelles dérivées partielles :

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial t} \Big|_r = \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} \Big|_{\xi} + \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} \Big|_t \frac{\partial \xi}{\partial t} \Big|_r \quad (\text{A3.5})$$

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial r} \Big|_t = \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} \Big|_t \frac{\partial \xi}{\partial r} \Big|_t \quad (\text{A3.6})$$

$\left. \frac{\partial \xi}{\partial t} \right|_t = \frac{1}{X}$ où X désigne la taille de la phase considérée et est indiquée dans le tableau A3.2.

On pose $V(\xi) = \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} \right]_r$, dont les expressions dans les différentes phases sont indiquées dans le tableau A3.3.

Par analogie avec un problème de convection-diffusion, $V(\xi)$ représente un champ de vitesse qui présente la particularité de changer de signe au sein du solide 2. En effet, la croissance de l'austénite se faisant aux dépens de la ferrite et du liquide au cours de la transformation péritectique, v^δ et v^γ sont de signes opposés et $V(\eta)$ s'annule pour :

$$\eta = \frac{v^\delta}{v^\delta - v^\gamma} \quad (\text{A3.7})$$

En exprimant (A3.4) dans les nouvelles coordonnées et en y reportant (A3.5) et (A3.6), on obtient :

$$r^N \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} + V(\xi) \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} = \frac{1}{X^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(r^N \rho D \frac{\partial w}{\partial \xi} \right) \quad (\text{A3.8})$$

On voit apparaître dans le membre de gauche le terme d'advection $V(\xi) \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi}$ dû au mouvement des interfaces. Dans un problème classique de convection-diffusion, on peut modifier l'écriture de l'équation (A3.8) en ajoutant dans chaque membre le terme $w \frac{\partial(r^N \rho V(\xi))}{\partial \xi}$. Il vient :

$$r^N \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} + \frac{\partial(r^N \rho w V(\xi))}{\partial \xi} = \frac{1}{X^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(r^N \rho D \frac{\partial w}{\partial \xi} \right) + w \frac{\partial(r^N \rho V(\xi))}{\partial \xi} \quad (\text{A3.9})$$

La méthode de discrétisation retenue est celle des volumes finis, car elle est particulièrement bien adaptée pour modéliser les problèmes liés aux phénomènes de transport. Dans la terminologie de Patankar [58] appliquée à un maillage monodirectionnel, on utilise les notations de la figure A3-1. On intègre chaque terme de l'équation (A3.8) sur un pas de temps dt et le volume de contrôle.

Intégration du terme 1 :

Pour intégrer le premier terme, on adopte la **loi de variation spatiale (notée 1)** suivante : on suppose que le titre massique est constant sur le volume de contrôle. Il vient alors :

$$\int_t^{t+\delta t} \int_w^e r^N \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} d\xi dt = (\rho |^{t+\delta t} w(P) |^{t+\delta t} - \rho |^t w(P) |^t) \frac{1}{X} \frac{1}{N+1} (r_e^{N+1} - r_w^{N+1}) \quad (\text{A3.10})$$

Intégration du terme 2 :

On adopte un schéma temporel implicite pour intégrer le terme 2 par rapport au temps :

$$\int_t^{t+\delta t} \int_w^e \frac{\partial(r^N \rho w V(\xi))}{\partial \xi} d\xi dt = (r_e^N \rho_e V_e w_e |^{t+\delta t} - r_w^N \rho_w V_w w_w |^{t+\delta t}) \delta t \quad (\text{A3.11})$$

HA3.1 : on suppose que la densité ρ de la phase ϕ est uniforme, c'est-à-dire qu'elle ne dépend pas des titres massiques locaux en soluté, d'où $\rho_e = \rho_w = \rho$.

Pour exprimer les titres aux frontières du volume de contrôle, plusieurs lois de variation spatiale locale sont proposées par Patankar [58]. Parmi elles, le schéma **upwind** a été retenu dans le cadre de ce travail et peut être décrit comme suit :

$$\begin{aligned} w_e &= w(P) \text{ si } V_e > 0 \\ w_e &= w(E) \text{ si } V_e < 0 \\ w_w &= w(W) \text{ si } V_w > 0 \\ w_w &= w(P) \text{ si } V_w < 0 \end{aligned} \quad (\text{A3.12})$$

Cette loi sera dénommée par la suite **loi de variation spatiale 2**.

Le schéma upwind se justifie par l'étude de la solution analytique du problème monodimensionnel d'advection-diffusion obtenu pour différentes valeurs du nombre de Péclet. On montre alors facilement que lorsque le nombre de Péclet tend vers l'infini (le terme advectif l'emporte sur le terme diffusif), la solution locale se rapproche du schéma upwind [58].

Intégration du terme 3 :

Pour intégrer le terme 3, on adopte également un schéma temporel implicite :

$$\int_t^{t+\delta t} \int_w^e \frac{1}{X^2} \frac{\partial}{\partial \xi} (r^N \rho D \frac{\partial w}{\partial \xi}) d\xi dt = \frac{1}{X^2} [r_e^N D_e \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} |_e - r_w^N D_w \frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} |_w]^{t+\delta t} \delta t \quad (\text{A3.13})$$

HA3.2 : on suppose que le coefficient de diffusion du soluté i dans la phase φ est uniforme, c'est-à-dire qu'il ne dépend pas des titres massiques locaux en soluté, d'où $D_e = D_w = D$.

Pour calculer les valeurs des dérivées premières de w par rapport à la variable réduite ξ aux frontières du domaine de contrôle, on adopte **une loi de variation spatiale linéaire de w en fonction de ξ** , d'où :

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial \xi} |_w = \rho \frac{w(P) |^{t+\delta t} - w(W) |^{t+\delta t}}{(\partial \xi)_w} \text{ et } \frac{\partial w}{\partial \xi} |_e = \rho \frac{w(E) |^{t+\delta t} - w(P) |^{t+\delta t}}{(\partial \xi)_e} \quad (\text{A3.14})$$

Cette loi sera dénommée par la suite **loi de variation spatiale 3**.

Intégration du terme 4 :

Loi de variation spatiale 4 : on suppose que le titre massique est constant sur tout le volume de contrôle. On prend sa valeur à l'instant $t+\delta t$. Il vient :

$$\int_t^{t+\delta t} \int_w^e \frac{\partial(r^N \rho V(\xi))}{\partial \xi} d\xi dt = (\rho w(\bar{P}) |^{t+\delta t} (r_e^N \bar{V}_e - r_w^N \bar{V}_w) \delta t \quad (\text{A3.15})$$

A un coefficient multiplicatif près, r_e^N correspond à la surface est S_e de l'élément de volume, r_w^N à la surface ouest S_w de l'élément de volume, et $\frac{1}{N+1} (r_e^{N+1} - r_w^{N+1})$ au volume de contrôle Vol_p .

En combinant (A3.9) à (A3.15), il vient :

$$A(P) |^{t+\delta t} \rho |^{t+\delta t} w(P) |^{t+\delta t} = A(E) |^{t+\delta t} \rho |^{t+\delta t} w(E) |^{t+\delta t} + A(W) |^{t+\delta t} \rho |^{t+\delta t} w(W) |^{t+\delta t} + A(P) |^t \rho |^t w(P) |^t \quad (\text{A3.16})$$

avec

$$\begin{aligned}
A(E)|^{t+dt} &= S_e \delta t \left[\frac{D}{X^2} \frac{1}{\delta \xi_e} + \max(0, -V_e) \right] \\
A(W)|^{t+dt} &= S_w \delta t \left[\frac{D}{X^2} \frac{1}{\delta \xi_w} + \max(0, V_w) \right] \\
A(P)|^t &= \frac{1}{X} \text{Vol}_p \\
A(P)|^{t+dt} &= A(E)|^{t+dt} + A(W)|^{t+dt} + A(P)|^t
\end{aligned} \tag{A3.17}$$

A3-1.2. CAS D'UNE MORPHOLOGIE COMPLEXE

Rappelons que dans ce cas, la composition est supposée uniforme dans le liquide intradendritique et l'équation de la diffusion n'est donc résolue que dans les phases solides et le liquide extradendritique. Dans l'hypothèse d'une morphologie quelconque de la structure de solidification, le problème devient tridimensionnel et l'équation (A3.4) n'est plus valable. La figure A3.2. représente une phase ϕ dans le cas d'une géométrie quelconque, pouvant être décrite comme un nombre fini de sous-domaines délimités par des surfaces d'isoconcentrations.

Les sous-domaines P ainsi définis ne sont pas fixes au cours du temps et leur variation temporelle est liée au phase de croissance ou de régression de la phase ϕ . En ce sens, on retrouve de fortes analogies avec le cas d'une morphologie simplifiée. En effet, les mailles P du maillage monodimensionnel défini dans la transformation de Landau varient au cours du temps en fonction du mouvement des interfaces de la phase considérée.

Comme l'équation (A3.4) n'est plus valable, intégrons directement l'équation (A3.3) sur le volume de contrôle Vol_p :

$$\int_{\text{Vol}_p} \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} dV = \int_{\text{Vol}_p} -\vec{\nabla}(\vec{J}) dV \tag{A3.18}$$

La règle de Leibnitz permet d'exprimer la première intégrale de la façon suivante :

$$\int_{\text{Vol}_p} \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} dV = \frac{d}{dt} \int_{\text{Vol}_p} \rho w dV - \int_{S_e} \rho w \vec{W}_e \cdot \vec{n}_e dS - \int_{S_w} \rho w \vec{W}_w \cdot \vec{n}_w dS \tag{A3.19}$$

(1) (2) (3)

avec \vec{W}_e le vecteur de la vitesse absolue de la face est du volume Vol_p
 \vec{n}_e le vecteur unitaire normal à la face est et dirigé vers la maille est
 \vec{W}_w le vecteur de la vitesse absolue de la face ouest du volume Vol_p
 \vec{n}_w le vecteur unitaire normal à la face ouest et dirigé vers la maille ouest

De plus, à l'aide du théorème de Stokes-Ostrogradsky, l'intégrale volumique de la divergence du flux \vec{J} s'écrit en fonction d'intégrale de surface :

$$\int_{\text{Vol}_p} -\vec{\nabla}(\vec{J}) dV = - \int_{S_e} \vec{J}_e \cdot \vec{n}_e dS - \int_{S_w} \vec{J}_w \cdot \vec{n}_w dS \tag{A3.20}$$

(4) (5)

avec \vec{J}_e le flux massique de soluté sur la face est

\vec{J}_w le flux massique de soluté sur la face ouest

Intégration du terme 1 :

Si l'on note $w(P)$ le titre massique moyen intrinsèque sur le volume Vol_p , alors :

$$\int_{Vol_p} \rho w dV = \rho w(P) Vol_p, \text{ d'où}$$

$$\frac{d}{dt} \int_{Vol_p} \rho w dV = \frac{d}{dt} (\rho w(P) Vol_p) = \rho w(P) \frac{d}{dt} (Vol_p) + Vol_p \frac{d}{dt} (\rho w(P)) \quad (A3.21)$$

Le premier terme et le second terme de droite correspondent respectivement au terme 4 et au terme 1 de l'équation (A3.9). On adopte donc la même loi de variations temporelle pour les intégrer sur le pas de temps δt :

$$\int_t^{t+\delta t} \frac{d}{dt} \int_{Vol_p} \rho w dV dt = \rho |^{t+\delta t} w(P) |^{t+\delta t} \delta(Vol_p) + Vol_p (\rho |^{t+\delta t} w(P) |^{t+\delta t} - \rho |^t w(P) |^t) \quad (A3.22)$$

Intégration des termes 2 et 3 :

Ils correspondent au terme 2 de l'équation (A3.9). On suppose que le titre massique est uniforme sur chacune des faces est et ouest d'où :

$$\int_{Se} \rho w \vec{W}_e \cdot \vec{n}_e dS = \rho w_e \int_{Se} \vec{W}_e \cdot \vec{n}_e dS = \rho w_e \frac{d}{dt} (Vol_e^{tot}) \quad (A3.23)$$

$$\int_{Sw} \rho w \vec{W}_w \cdot \vec{n}_w dS = \rho w_w \int_{Sw} \vec{W}_w \cdot \vec{n}_w dS = -\rho w_w \frac{d}{dt} (Vol_w^{tot}) \quad (A3.24)$$

on reconnaît respectivement dans chacune des intégrales $\int_{Se} \vec{W}_e \cdot \vec{n}_e dS$ et $\int_{Sw} \vec{W}_w \cdot \vec{n}_w dS$ les quantités $\frac{d}{dt}$

(Vol_e^{tot}) et $\frac{d}{dt} (Vol_w^{tot})$, où Vol_e^{tot} et Vol_w^{tot} représentent respectivement les volumes contenus dans les surfaces est et ouest du volume Vol_p . On a ainsi la relation suivante :

$$\delta(Vol_p) = \delta(Vol_e^{tot}) - \delta(Vol_w^{tot}) \quad (A3.25)$$

De plus, on applique les mêmes lois de variation spatiale et temporelle que pour le terme 2 de l'équation (A3.9).

Intégration des termes 4 et 5 :

Pour calculer les valeurs des dérivées aux frontières, on applique les mêmes lois de variations que pour le terme 3 de l'équation (A3.9) :

$$[\vec{V}w]_{e \cdot \vec{n}_e} = \frac{w(E) |^{t+\delta t} - w(P) |^{t+\delta t}}{\delta_e} \text{ et } [\vec{V}w]_{w \cdot \vec{n}_w} = \frac{w(P) |^{t+\delta t} - w(W) |^{t+\delta t}}{\delta_w} \quad (A3.26)$$

En combinant (A3.19) à (A3.26), on retrouve l'équation (A3.9) avec :

$$\begin{aligned} A(E) |^{t+\delta t} &= S_e \delta t \left[\frac{D}{\delta_e} \right] + \max(0, -\delta(Vol_e^{tot})) \\ A(W) |^{t+\delta t} &= S_w \delta t \left[\frac{D}{\delta_w} \right] + \max(0, \delta(Vol_w^{tot})) \\ A(P) |^t &= Vol_p \\ A(P) |^{t+\delta t} &= A(E) |^{t+\delta t} + A(W) |^{t+\delta t} + A(P) |^t \end{aligned} \quad (A3.27)$$

A ce stade, il convient de définir les quantités suivantes : les volumes Vol_e^{tot} , Vol_w^{tot} , Vol_p , les surfaces S_e et S_w ainsi que les distances δ_e et δ_w . Dans le cas d'une morphologie simplifiée, toutes ces quantités peuvent être directement déduites de la connaissance des taux de phases et du maillage adopté. Dans le cas d'une morphologie quelconque, il convient de faire un certain nombre d'hypothèses. Supposons que le volume P puisse être repéré par un rayon moyen noté \bar{r} . De la même manière que pour une géométrie simplifiée, la taille caractéristique X de chaque phase ϕ peut être définie à l'aide des relations du tableau A3.3, où r^s , r^δ , r^γ et R_{eq} sont donnés dans le paragraphe I-6.2.

R_f est le rayon du cylindre à section circulaire occupant le même volume que le cylindre à section carrée de côté λ_1 représentatif de la microségrégation (figure II-4) :

$$R_f = \lambda_1 / \sqrt{\pi} \quad (A3.28)$$

Le tableau A3.4 permet de définir pour une morphologie complexe les coordonnées réduites associées à chaque phase et obtenues par analogie avec la transformation de Landau appliquée à une morphologie simplifiée.

Dans le cas d'une solidification primaire à géométrie axisymétrique, il est facile d'établir les relations suivantes dans le solide 1 :

$$S_w = \zeta_w S^{s/li}$$

$$Vol_w^{tot}/V_0 = \zeta_w^2 g^s$$

HA3.2 : dans le cas d'une géométrie complexe, on suppose qu'il existe le même type de relation que celles pouvant être établies dans le cas d'une géométrie simplifiée axisymétrique.

Il découle de cette hypothèse que les surfaces et volumes apparaissant dans les équations (A3.27) sont obtenus à l'aide des tableaux A3.5 et A3.6.

Les surfaces $S^{s/li}$, $S^{\delta/\gamma}$, $S^{\gamma/l}$ et S^{env} sont spécifiées dans le paragraphe I-6.2. S^{ext} désigne la surface extérieure du volume représentatif de la microségrégation, soit, d'après la figure II-4 :

$$S^{ext} = 4\lambda_1 \quad (A3.29)$$

En utilisant les notations de la figure A1-1, δ_e et δ_w s'expriment respectivement par $X\delta\xi_e$ et $X\delta\xi_w$.

A3-1.3. Prise en compte des conditions limites dans la phase ϕ_1 à l'interface ϕ_1/ϕ_2 ($\phi_1/\phi_2 = \delta/l, \delta/\gamma$ or γ/l)

Dans la maille de la phase ϕ_1 voisine de l'interface ϕ_1/ϕ_2 , le point du maillage est placé au centre de cette maille, comme le montre la figure A3.3.

D'après l'algorithme présenté dans le chapitre 2, le titre massique w^{ϕ_1/ϕ_2} est connu à la fin de la séquence 4' et constitue une valeur d'entrée de la séquence 5'. A la frontière du domaine, la condition limite est donc de type Dirichlet. L'intégration de l'équation (A3.9) dans la maille frontière se fait comme suit :

- L'intégration des termes 1 et 4 de l'équation (A3.9) pour une géométrie simplifiée ou du terme 1 de l'équation (A3.19) pour une géométrie complexe reste la même dans la maille frontière que dans une maille interne du maillage.

- L'intégration du terme 2 de l'équation (A3.9) pour une géométrie simplifiée ou des termes 2 et 3 de l'équation (A3.19) pour une géométrie complexe est en revanche différente : en effet, dans une maille interne, le schéma upwind est appliqué pour déterminer le titre w_e sur la face est de la maille. Or $w_e(11)$ est connu et est égal à $w^{\phi 1/\phi 2}$: il n'y a donc pas de schéma particulier à appliquer dans ce cas-là.
- Dans une maille interne, les dérivées aux frontières sont calculées en faisant l'hypothèse que le titre a localement une variation linéaire. Cependant, dans le cas où les interfaces sont le siège de forts gradients de concentrations, un traitement numérique satisfaisant des flux interfaciaux exige peut-être une expression de la dérivée plus précise que celle obtenue à partir d'un développement de Taylor d'ordre 1. C'est la raison pour laquelle un développement de Taylor d'ordre 2 est opéré au niveau de l'interface :

$$\left(\frac{\partial w}{\partial \xi}\right)_{\phi 1/\phi 2} = \frac{Rw(IM) + w(IM-1) + (R-1)w^{\phi 1/\phi 2}}{d} \quad (A3.30)$$

avec $R = \left(\frac{\delta \xi_p(IM) + \delta \xi_w^-(IM)}{\delta \xi_e^-(IM)}\right)^2$ et $d = R\delta \xi_e^-(IM) - \delta \xi_p(IM) - \delta \xi_w^-(IM)$.

La forme discrétisée de l'équation de la diffusion dans une maille frontière donne alors :

$$A(P)|^{t+\delta t} \rho |^{t+\delta t} w(P)|^{t+\delta t} = A^{\phi 1/\phi 2} \rho |^{t+\delta t} w^{\phi 1/\phi 2} + A(W)|^{t+\delta t} \rho |^{t+\delta t} w(W)|^{t+\delta t} + A(P)|^t \rho |^t w(P)|^t \quad (A3.31)$$

L'expression des coefficients est reportée dans le tableau A3.7.

La même démarche peut être appliquée de part et d'autre de chaque interface du volume d'étude de la microségrégation.

Selon le tableau A3.7, le coefficient $A^{\phi 1/\phi 2}$ n'est pas inconditionnellement positif, ce qui peut engendrer des problèmes d'instabilité de la solution. Il faut donc assurer la positivité de $A^{\phi 1/\phi 2}$, c'est-à-dire :

$$\frac{D}{X^2} \frac{R-1}{d} > V(\xi=1) \quad (A3.32)$$

L'équation (A3.32) est d'autant plus difficile à obtenir que :

- la vitesse de l'interface est élevée ;
- le coefficient de diffusion D est faible.

Une manière de satisfaire l'équation (A3.32) est de réduire la valeur d , c'est-à-dire de diminuer la taille de la maille frontière. Si l'on veut conserver le même nombre de mailles dans le domaine, ceci est possible en adoptant un maillage géométrique dans le domaine et en calculant la raison de telle manière que d satisfasse (A3.32). Le principe du maillage adaptatif utilisé dans le modèle est représenté dans la figure A3.4. Considérons le maillage 1 de raison q_1 représenté sur la figure A3.4. Notons $w_1(I)$ le profil de soluté correspondant à ce maillage et $Vol_1(I)$ le volume des mailles correspondantes. Si la valeur d ne satisfait pas l'équation (A3.32), il est toujours possible de calculer une autre raison q_2 dont le maillage 2 correspondant permet de la remplir. Notons $Vol_2(I)$ le volume des mailles correspondantes. Lors de ce changement de maillage, il est alors important d'assurer la conservation de la masse dans le domaine. Par conséquent, il est nécessaire de calculer le nouveau profil $w_2(I)$ correspondant au maillage 2 de la manière indiquée sur la figure A3.4 pour $w_2(1)$. Si par exemple la maille 1 du maillage 2 recouvre la maille 1 et une partie de la maille 2 du

maillage 1, de manière que $\text{Vol}2(1) = \text{Vol}1(1) + 1/3 \text{Vol}1(2)$, alors $w2(1)$ est calculé de la manière suivante :

$$w2(1) = [\text{Vol}(1) w1(1) + 1/3 \text{Vol}1(2) w1(2)] / \text{Vol}2(1)$$

Dans le cas particulier où la phase correspond au solide 2 dans la transformation péritectique, la présence de deux interfaces de part et d'autre de la phase impose un maillage à double progression géométrique (figure A3.5).

Au début de chaque calcul microscopique, le maillage est régulier puis devient géométrique avec une raison calculée de manière à satisfaire (A3.32).

A3-2. TRAITEMENT DU TERME DE CONVECTION DANS LE CAS D'UNE MORPHOLOGIE SIMPLIFIEE

La contribution du terme de convection sur l'évolution de la microségrégation est traitée de manière très simplifiée. On suppose que celle-ci peut être modélisée par l'ajout d'un terme source A^{conv} dans l'équation discrétisée de la maille frontière extérieure de la phase liquide :

$$A(P)|^t \rho |^{t+\delta t} w(P)|^{t+\delta t} = A(E)|^t \rho |^{t+\delta t} w(E)|^{t+\delta t} + A(W)|^t \rho |^{t+\delta t} w(W)|^{t+\delta t} + A(P)|^t \rho |^t w(P)|^t + A^{\text{conv}} \quad (\text{A3.33})$$

A ce stade, il s'agit de déterminer A^{conv} , sachant que la variation du titre massique moyen dans le domaine d'étude est une donnée d'entrée du modèle.

solidification primaire :

On somme les relations (A3.16), (A3.31) et (A3.33) :

- sur le solide primaire :

$$\delta(\rho^s g^s \bar{w}^s) = \rho^s w^{s/l} \delta g^s + S_v^{s/l} J^{s/l} \delta t \quad (\text{A3.34})$$

- sur la phase liquide :

$$\delta(\rho^l g^l \bar{w}^l) = \rho^l w^{l/s} \delta g^l + S_v^{l/s} J^{l/s} \delta t + \frac{X}{V_0} A^{\text{conv}} \quad (\text{A3.35})$$

De plus, on a la relation suivante :

$$\delta(\bar{\rho} \bar{w}) = \delta(\rho^s g^s \bar{w}^s) + \delta(\rho^l g^l \bar{w}^l) \quad (\text{A3.36})$$

En combinant (A3.34), (A3.35) (A3.36), il vient :

$$\frac{X}{V_0} A^{\text{conv}} = \delta(\bar{\rho} \bar{w}) + (\rho^l - \rho^s) w^{l/s} \delta g^s \quad (\text{A3.37})$$

Solidification péritectique :

On applique la même démarche :

- sur la ferrite :

$$\delta(\rho^\delta g^\delta \bar{w}^\delta) = \rho^\delta w^{\delta/\gamma} \delta g^\delta + S_{\nu}^{\delta/\gamma} J^{\delta/\gamma} \delta t \quad (\text{A3.38})$$

- sur l'austénite :

$$\delta(\rho^\gamma g^\gamma \bar{w}^\gamma) = -\rho^\gamma w^{\gamma/\delta} \delta g^\delta + S_{\nu}^{\delta/\gamma} J^{\gamma/\delta} \delta t + \rho^\gamma w^{\gamma/l} \delta(g^\delta + g^\gamma) + S_{\nu}^{\gamma/l} J^{\gamma/l} \delta t \quad (\text{A3.39})$$

- sur le liquide :

$$\delta(\rho^l g^l \bar{w}^l) = \rho^l w^{l/\gamma} \delta g^l + S_{\nu}^{\gamma/l} J^{l/\gamma} \delta t + \frac{X}{V_0} A^{\text{conv}} \quad (\text{A3.40})$$

De plus :

$$\delta(\bar{\rho} \bar{w}) = \delta(\rho^\delta g^\delta \bar{w}^\delta) + \delta(\rho^\gamma g^\gamma \bar{w}^\gamma) + \delta(\rho^l g^l \bar{w}^l) \quad (\text{A3.41})$$

En combinant (A3.37) à (A3.40), il vient :

$$\frac{X}{V_0} A^{\text{conv}} = \delta(\bar{\rho} \bar{w}) + (\rho^\gamma - \rho^\delta) w^{\gamma/\delta} \delta g^\delta + (\rho^l - \rho^\delta) w^{l/\gamma} \delta g^\delta + (\rho^\delta - \rho^\gamma) w^{\gamma/l} \delta g^\delta + (\rho^l - \rho^\gamma) w^{l/\gamma} \delta g^\gamma \quad (\text{A3.42})$$

A3-3. RESOLUTION NUMERIQUE DU SYSTEME DISCRETISE

La discrétisation de l'équation de la diffusion a permis d'établir, pour chaque point P du maillage, une équation algébrique. Pour 11 mailles, nous obtenons un système linéaire de 11 équations à 11 inconnues. De plus, du fait du choix des lois de variation locale qui ont été choisies précédemment, la matrice du système linéaire à inverser est tridiagonale (seules les trois diagonales principales sont non nulles). Il s'agit du cas idéal où on peut utiliser une méthode du pivot simplifiée, la méthode TDMA (Tri Diagonal Matrix Algorithm) pour résoudre le système linéaire [58].

A ce stade, nous obtenons le profil des titres massiques des différents solutés dans chaque phase et en particulier $w(I1)$ et $w(I2)$ que l'on reporte lors de l'itération suivante dans la séquence 4'.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Yves FAUTRELLE, Professeur, EPM, MADYLAM, ENSHMG, Saint Martin d'Hères

Monsieur Markus RETTENMAYER, Professeur, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Allemagne

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur THUINET Ludovic

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

**"Solidification des aciers ternaires : modélisation de la microségrégation en croissance
dendritique colonnaire, prise en compte de la réaction péritectique"**

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Science et ingénierie des matériaux »

Fait à Vandoeuvre, le 04 juillet 2005

Le Président de l'IN.P.L.,

L. SCHUFFENECKER



RESUME en français

Un nouveau modèle de microségrégation a été développé pour être couplé avec le code macroscopique SOLID. L'objectif est de mieux décrire la macroségrégation dans les lingots en prenant en compte la nature des phases qui se forment au cours de la solidification ainsi que les équilibres thermodynamiques entre elles. Le modèle a donc été couplé au logiciel Thermo-Calc et la transformation péritectique a été étudiée. L'analyse théorique des résultats du modèle a permis d'interpréter des profils cumulés expérimentaux originaux établis au cours de la croissance péritectique. Le modèle de solidification micro-macro résultant du couplage avec SOLID a été testé sur des lingots industriels: les résultats montrent que la transformation péritectique peut atténuer l'intensité de la macroségrégation en certaines zones du lingot et que la modélisation de toute l'histoire de l'établissement de la microségrégation est requise pour décrire les profils cumulés locaux en fin de solidification.

TITRE en anglais

Solidification of ternary steels:

Modelling of microsegregation during dendritic columnar growth and peritectic reaction

RESUME en anglais

A new microsegregation model has been developed to be coupled to the macroscopic code SOLID. The purpose of this study is to describe macrosegregation in ingots more accurately by taking into account the nature of the phases formed during solidification and the thermodynamic equilibriums between them. So, the model has been coupled to the software Thermo-Calc and the peritectic transformation has been studied. The theoretical analysis of the results given by the model has allowed to understand some original cumulated microsegregation profiles during the peritectic growth. The micro-macro code resulting from the coupling of this model to SOLID has been tested on industrial ingots: the results show that the peritectic transformation can soften the macrosegregation severity in certain zones of the ingot and modeling the whole history of microsegregation is required to obtain the local cumulated profiles at the end of solidification.

DISCIPLINE : Science et Ingénierie des Matériaux

MOTS-CLES : solidification, modélisation, microségrégation, transformation péritectique, aciers ternaires, macroségrégation, approche multi-échelle

INTITULE ET ADRESSE DU LABORATOIRE :

Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie LSG2M, UMR CNRS-INPL-UHP 7584, Parc de Saurupt, F-54042 Nancy

(7) 2005 THUINET L.2

Ecole Doctorale EMMA

Institut National Polytechnique de Lorraine

THESE : TABLEAUX ET FIGURES

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINESpécialité : **Science et ingénierie des matériaux**

Présentée et soutenue publiquement

Par

Ludovic THUINET

Le 11 juillet 2005

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

Titre :

Solidification des aciers ternaires :
modélisation de la microségrégation en croissance dendritique colonnaire, prise en compte de
la réaction péritectique

Directeurs de thèse :

M. Hervé COMBEAU, professeur

M. Gérard LESOULT, professeur

JURY

M. Dominique GOBIN, Président

M. Yves FAUTRELLE, Rapporteur

M. Markus RETTENMAYR, Rapporteur

M. Pierre-Emmanuel RICHY, Examineur

M. Hervé COMBEAU

M. Gérard LESOULT

TABLEAUX

Chapitre I

Tableau I-1 : déterminations expérimentales de l'espace entre bras primaires de dendrites avec λ_1 (μm), G_T ($10^{-3}^\circ\text{C}/\text{m}$) et V (10^6 m/s).

Références	alliages	m_1	n_1	C
Young et Kirkwood[115]	Al-2,4%Cu	0,5	0,5	5650
	Al-4,4%Cu	0,5	0,36	3050
	Al-10,1%Cu	0,5	0,43	4650
Jacobi et Schwertfeger [113]	Fe-0,59%C-1,1%Mn	0,72	0,26	3960
	Fe-1,48%C-1,1%Mn	0,72	0,24	4760
Gündüz et al. [112]	Al-Cu	0.43±0.1	0.28±0.1	/

Signification des symboles des tableaux I-2et I-3 :

Ref : référence bibliographique

N : nombre d'élément d'alliage

- M : multiconstitué
- 2P : pseudobinaire

GEO : type de géométrie

- P : plan
- A : axisymétrique
- S : sphérique
- AE : axisymétrique externe (voir I-4.1)
- SE : sphérique externe (voir I-4.1)
- H : la base de la dendrite est supposée hexagonale

NP : nombre de phases

- 3P : réaction ou transformation péritectique
- 3E : réaction eutectique
- 2 : solidification primaire

ST : structure

- E : équiaxe
- C : colonnaire

MAT : maturation

D_S : prise en compte de la diffusion dans le solide

D_L : prise en compte de la diffusion dans le liquide

PD : couplage avec des données thermodynamiques plus précises que celles données par une simple régression linéaire des diagrammes de phases, par un couplage avec un logiciel de calculs d'équilibres thermodynamiques ou autres.

ΔT : prise en compte de la surfusion aux pointes primaires de dendrite.

Refusion : prise en compte de cas de refusion

ΔE: prise en compte d'un écart à l'équilibre thermodynamique aux interfaces (solidification rapide)

analytique/numérique : nature du modèle utilisé

Tableau I-2 : liste des modèles de microségrégation mentionnés dans ce chapitre et destinés à l'étude exclusive de la microségrégation.

Auteurs	ref	N	GEO	NP	ST	MAT	D _s	D _t	PD	ΔT	Refusion	ΔE	Analytique/numérique
Kraft et coll.	67	M	P	2		oui	oui	non	oui	oui	non	oui	numérique
Doré et coll.	1	3	1D, P, A, S	3		non	oui	non	oui	non	oui	non	numérique
S ¹ -John et Hogan	17	2P	1D;P	3;P		non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Fredriksson	19	3	1D;P	3;P		non	non	non	non	non	non	non	analytique
Ueshima et coll.	24	6	1D;H	3;P		non	oui	non	non	non	non	non	numérique
Howe	25	M	P	3;P		oui	oui	oui	non	oui	non	non	numérique
Tong et Beckermann	30	2	1D ;P	2		non	non	oui	non	oui	non	non	analytique
Yoo et Viskanta	37	2	1D,P	2		oui	oui	non	non	non	non	non	numérique
Roosz et coll.	38	2	1D ;P	2		oui	oui	non	non	non	non	non	numérique
Kobayashi	57	2	1D ;P	2		non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Rappaz et Thévoz	61	2	1D ;(1)	2	E	non	non	oui	non	oui	non	non	numérique
Rappaz et Boettinger	64	M	1D ;(1)	2	E	non	non	oui	non	oui	non	non	numérique
DICTRA	69	M	1D ;P,A,S			non	oui	oui	oui	non	non	oui	numérique
Yan et coll.	72	2	1D ;P,A,S	2		oui	oui	non	oui	oui	non	non	numérique
Xie et coll.	73	3	1D ;P,A,S	2		oui	oui	non	oui	oui	non	non	numérique
Yan et coll.	74	4	1D ;P,A,S	2		oui	oui	non	oui	oui	non	non	numérique
Das et coll.	84	2	1D ;S	3 ;P		non	oui	non	non	non	non	non	numérique
Chang et coll.	85	2	1D ;P	3 ; P		non	oui	non	non	non	non	non	numérique
Matsumiya et coll.	91	M	1D ;H	2		non	oui	oui	non	non	non	non	numérique
Mortensen	100	2	1D ;A	2		oui	non	non	non	non	non	num	analytique
Halder	101	2	1D;P	2		oui	oui	non	non	non	non	non	numérique
Giovanola et Kurz	29	2		2		non	non	oui	non	oui	non	oui	analytique

(1)Le modèle ne traite que de deux phases physiques distinctes mais en introduit une troisième fictive : le liquide interdendritique.

Tableau I-3 : liste des modèles de microségrégation mentionnés dans ce chapitre et destinés à être couplé à un code de macroségrégation

Auteur	ref	N	GEO	NP	ST	MAT	D _s	D _t	PD	ΔT	refusion	ΔE	Analytique/numérique
Gulliver et Scheil	4	M		2		non	non	non	non	non	non	non	analytique
Brody et Flemings	6	2		2		non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Clyne et Kurz	9	2		2		non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Ohnaka	10	2		2		non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Voller	7	2	1D ;P	2		non	oui	non	non	non	non	non	Semi-analytique
Won et Thomas	8	M		3 ;P		oui	oui	non	non	non	non	non	analytique
Wang et Beckerman	12	M	1D (2)	2	C ; E	non	oui	non	non	oui	oui	non	numérique
Combeau et coll.	13	M	1D, P, A, S	3 ;E		non	oui	oui	non	non	oui	non	Analytique et numérique
Schneider et Beckerman	14	M	1D, P	2		non	oui	non	non	non	oui	non	numérique
Miettinen	26	M	1D ;H	3 ;P		non	oui	oui	oui	oui	non	non	numérique
Voller et Beckerman	35	2	1D	2		oui	oui	non	non	non	non	non	Semi-analytique
Voller	36	2	1D	2		oui	oui	non	non	non	non	non	Semi-analytique
Boettinger et coll.	43	M	1D ;P	3		non	oui	non	oui	non	non	non	numérique
Schneider et Beckerman	50	M	1D ;P	3;P		non	oui	non	non	non	oui	non	numérique
Krane et Incropera	51	3		4(E,P)		non	non	non	oui	non	oui	non	analytique
Voller	54	2	1D ;P	2		oui	oui	non	non	non	non	non	numérique
Xu et coll.	79	2	1D,P,A,S,AE,SE	2	C ; E	non	oui	non	non	non	non	non	analytique
Combeau et Mo	82	2	1D,P,C,S	3; E		non	oui	non	non	non	oui	non	numérique
Cefalu et krane	107	M	1D	6		non	non	non	oui	non	oui	non	analytique

(2) Wang et Beckermann utilise un modèle unifié pour les géométries colonnaire et équiaxe et se ramènent à un problème à une dimension.

Chapitre II

Tableau II-1 : expression des distances caractéristiques et des surfaces spécifiques en cours de solidification primaire

N	0	1	2
r^s	$\lambda [g^s]$	$\lambda [g^s]^{1/2}$	$\lambda [g^s]^{1/3}$
$S_v^{s/1}$	$\frac{1}{\lambda}$	$\frac{2}{\lambda} [g^s]^{1/2}$	$\frac{3}{\lambda} [g^s]^{1/3}$

Tableau II-2 : expression des distances caractéristiques et des surfaces spécifiques au cours de la transformation péritectique

N	0	1	2
r^δ	$\lambda [g^\delta]$	$\lambda [g^\delta]^{1/2}$	$\lambda [g^\delta]^{1/3}$
r^γ	$\lambda [g^\delta + g^\gamma]$	$\lambda [g^\delta + g^\gamma]^{1/2}$	$\lambda [g^\delta + g^\gamma]^{1/3}$
$S_v^{\delta/\gamma}$	$\frac{1}{\lambda}$	$\frac{2}{\lambda} [g^\delta]^{1/2}$	$\frac{3}{\lambda} [g^\delta]^{1/3}$
$S_v^{\gamma/1}$	$\frac{1}{\lambda}$	$\frac{2}{\lambda} [g^\delta + g^\gamma]^{1/2}$	$\frac{3}{\lambda} [g^\delta + g^\gamma]^{1/3}$

Tableau II-5 : réinitialisation des fractions volumiques de phase en solidification primaire en fonction du type de géométrie adoptée

	N = 0	N = 1	N = 2	Morphologie complexe
$(g^s)^{reinit}$	$g^s \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$g^s \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$g^s \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^s \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$
$(g^{li})^{reinit}$	$g^{li} \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$
$(g^{mat})^{reinit}$	$1 - \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$1 - \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$1 - \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^{env} - g^s \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2 - g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$

Tableau II-6 : réinitialisation des fractions volumiques de phases au cours de la transformation péritectique en fonction du type de géométrie adoptée

	N = 0	N = 1	N = 2	Morphologie complexe
$(g^\delta)^{reinit}$	$g^\delta \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$g^\delta \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$g^\delta \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^\delta \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$
$(g^\gamma)^{reinit}$	$g^\gamma \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$g^\gamma \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$g^\gamma \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^\gamma \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$
$(g^{li})^{reinit}$	$g^{li} \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$
$(g^{mat})^{reinit}$	$1 - \frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}}$	$1 - \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$	$1 - \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^3$	$g^{env} - g^\delta \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2 - g^{li} \left[\frac{[\lambda]^t}{\lambda^{t+\delta t}} \right]^2$

Tableau II-7 : forme des fichiers de données des grandeurs thermodynamiques

$w^{\varphi 1}$...	$w^{\varphi 1}_{n-1}$	T	$k^{\varphi 1/\varphi 2}$...	$k^{\varphi 1/\varphi 2}_{n-1}$	$h^{\varphi 1}$	$h^{\varphi 2}$
.
.
.
.
.
.
.

Tableau II-8 : spécification de la grille de tabulation utilisée pour décrire le coin riche en fer du diagramme d'équilibre des phases du système ternaire Fe-Ni-C

soluté	wmin (%mass)	wmax (w%mass)	Nombre de graduations
C	0	1	101
Ni	0	10	101

Tableau II-9 : Dynamique de solidification et transitions possibles entre les différents états mentionnés ci-dessus

t+ δt	t						
	l	l+ δ	l+ γ	l+ $\delta+\gamma$	δ	γ	$\delta+\gamma$
l	1	8	15	22	29	36	43
l+ δ	2	9	16	23	30	37	44
l+ γ	3	10	17	24	31	38	45
l+ $\delta+\gamma$	4	11	18	25	32	39	46
δ	5	12	19	26	33	40	47
γ	6	13	20	27	34	41	48
$\delta+\gamma$	7	14	21	28	35	42	49

Tableau II-10 : Récapitulatif des principaux principes du modèle de microségrégation

Phénomènes contrôlant la microségrégation	Principes et méthodes numériques adoptés dans le modèle pour traiter le phénomène
Diffusion chimique	Transformation de Landau
Transformation péritectique	Généralisation de la transformation de Landau à 3 phases + hypothèse H1.8
Détermination des grandeurs thermodynamiques	Couplage avec Thermo-Calc (méthode tabulaire)
Description de la microstructure dendritique	Morphologie simplifiée : $\lambda = \lambda_1/2$ ou $\lambda = \lambda_2/2$ - géométrie plane, axisymétrique ou sphérique. Morphologie complexe : Définition d'une surface d'enveloppe dont l'évolution est régie par la vitesse des pointes secondaires de dendrite \Rightarrow distinction entre un liquide intradendritique et un liquide extradendritique qui permet la prise en compte des 2 distances caractéristiques λ_1 et λ_2 .
Surfusion aux pointes primaires de dendrite	Contrôlée par la diffusion chimique (Bobadilla et coll. [39])
maturation	Modèle de Mortensen généralisé aux alliages multiconstitués

Chapitre III

Tableau III-1 : définition de la grille de tabulation utilisée pour décrire le coin riche en fer du diagramme ternaire Fe-Ni-C

soluté	wmin (%mass)	wmax (%mass)	Nombre de graduations
C	0	0,6	101
Ni	0	10	101

Tableau III-2 : spécification du maillage microscopique et nombre de mailles dans chaque phase

	Solide 1	Solide 2	liquide
Mélange liquide+solide 1	30	/	20
Transformation péritectique	30	50	20

Tableau III-3 : spécification du nombre de mailles dans chaque phase pour les maillages M1, M2 et M3

		Solide 1	Solide 2	liquide
M1	Mélange liquide+solide 1	300	/	300
	Transformation péritectique	300	300	300
M2	Mélange liquide+solide 1	30	/	20
	Transformation péritectique	30	50	20
M3	Mélange liquide+solide 1	3	/	3
	Transformation péritectique	3	6	3

Tableau III-4 : valeurs de α_{ξ}^{ϕ} pour le cas de référence

	ferrite	austénite	liquide
$(D_{\xi}^{\phi})^{app}$	5.10^{-9}	9.10^{-10}	10^{-8}
α_{ξ}^{ϕ}	11,23	2,04	22,46
$(D_{Ni}^{\phi})^{app}$	2.10^{-11}	2.10^{-13}	10^{-8}
α_{Ni}^{ϕ}	0,045	0,00045	22,46

Tableau III-5 : principaux résultats sur la microségrégation finale calculée pour $\lambda = 65\mu\text{m}$ et $\lambda = 275\mu\text{m}$

λ (μm)	275	65
$w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$ (%mass)	3,3	2,7
$w_{\text{Ni}}^{\text{max}}$ (%mass)	5,1	4,8
τ_{Ni}	1,55	1,78

Tableau III-6 : valeurs caractéristiques du déroulement de la solidification pour les trois géométries

	N = 1	N = 2	N = 3
T_f	1498°C	1499°C	1500°C
$(f^0)_p$	0,3	0,33	0,33
T_{fp}	1502°C	1505°C	1505°C

Tableau III-7 : principaux résultats sur la microségrégation finale calculée avec et sans maturation

	Avec maturation	Sans maturation
$w_{\text{Ni}}^{\text{min}}$ (%mass)	2,70	2,72
$w_{\text{Ni}}^{\text{max}}$ (%mass)	4,78	4,69
τ_{Ni}	1,77	1,72

Chapitre IV

Tableau IV-1 : titres massiques nominaux et conditions thermiques imposées

	w_c^0 (%mass)	w_{Ni}^0 (%mass)	V (mm/min)	G_T (°C/mm)	\dot{T} (°C/s)
Alliage 1	0,342	3,91	2,4	1,55	-0,062
Alliage 2	0,069	4	2,4	2,5	-0,1

Tableau IV-2 : Températures de transition entre les différents états du domaine de la microségrégation (T_p = température de début de la transformation péritectique)

Cas de référence	1	2	3
T_{liq}	1515,7°C	1515,7°C	1515,7°C
T_p	1513°C	1513°C	1513°C
T_{fp}	1505°C	1502°C	1502°C
T_{sol}	1499°C	1502°C	1498°C

Chapitre V

Tableau V-1 : maillage microscopique adopté pour le calcul micro-macro

	Solide 1	Solide 2	liquide
Solidification primaire	3	/	3
Transformation péritectique	3	6	3

Tableau V-2 : fractions liquides résiduelles au commencement et à la fin de la transformation péritectique pour les chemins de solidification calculés dans le cas de référence et la simulation 2

	Fraction liquide résiduelle au début de la transformation péritectique	Fraction liquide résiduelle à la fin de la transformation péritectique
Fe-Ni-C	52%	31%
Fe-C	25%	8%

Tableau V-3 : coordonnées des mailles d'analyse de la microségrégation

point	1	2	3	4	5	6
x (en mm)	0	0	0	0	138	267
y (en mm)	434	1822	2601	872	872	872

Tableau V-4 : températures de liquidus, de solidus et intervalle de solidification pour les points situés sur l'axe central du lingot

Points	T_{liq}	T_{sol}	ΔT_{sol}
1 et 2	1458°C	1330°C	128°C
3	1455°C	1270°C	185°C

Tableau V-5 : températures de liquidus, de solidus et intervalle de solidification pour les points situés sur l'axe transversal G du lingot

Points	T_{liq}	T_{sol}	ΔT_{sol}
4	1450°C	1290°C	160°C
5	1460°C	1340°C	120°C
6	1460°C	1310°C	150°C

ANNEXES

Tableau A3.1 : changement de coordonnées associé à la transformation de Landau
(morphologie simplifiée)

	Solide 1	Solide 2	liquide
Solidification primaire	$\zeta = \frac{r}{r^s(t)}$	/	$\chi = \frac{r-r^s(t)}{\lambda-r^s(t)}$
Transformation péritectique	$\zeta = \frac{r}{r^\delta(t)}$	$\eta = \frac{r-r^\delta(t)}{r^\gamma(t)-r^\delta(t)}$	$\chi = \frac{r-r^\gamma(t)}{\lambda-r^\gamma(t)}$

Tableau A3.2 : taille des différentes phases (géométrie simplifiée)

	Solide 1	Solide 2	liquide
Solidification primaire	$r^s(t)$	/	$\lambda-r^s(t)$
Transformation péritectique	$r^\delta(t)$	$r^\gamma(t)-r^\delta(t)$	$\lambda-r^\gamma(t)$

Tableau A3.3 : expressions de $V(\xi)$ dans les différentes phases (géométrie simplifiée)

	Solide 1	Solide 2	liquide
Solidification primaire	$-\zeta \frac{v^s}{r^s}$ avec $v^s = \frac{dr^s(t)}{dt}$	/	$-v^s \frac{1-\chi}{\lambda-r^s}$
Transformation péritectique	$-\zeta \frac{v^\delta}{r^\delta}$ avec $v^\delta = \frac{dr^\delta(t)}{dt}$	$-\eta \frac{v^\gamma - v^\delta}{r^\gamma - r^\delta} - \frac{v^\delta}{r^\gamma - r^\delta}$ avec $v^\gamma = \frac{dr^\gamma(t)}{dt}$	$-v^\gamma \frac{1-\chi}{\lambda-r^\gamma}$

Tableau A3.4 : taille des différentes phases (morphologie complexe)

	Solide 1	Solide 2	Liquide extradendritique
Solidification primaire	$r^s(t)$	/	$R_f - R_{eq}(t)$
Transformation péritectique	$r^\delta(t)$	$r^\gamma(t)-r^\delta(t)$	$R_f - R_{eq}(t)$

Tableau A3.5 : changement de coordonnées associé à la transformation de Landau
(morphologie complexe)

	Solide 1	Solide 2	Liquide extradendritique
Solidification primaire	$\zeta = \frac{\bar{r}}{r^s(t)}$	/	$\chi = \frac{\bar{r}-r^s(t)}{R_f - R_{eq}(t)}$
Transformation péritectique	$\zeta = \frac{\bar{r}}{r^\delta(t)}$	$\eta = \frac{\bar{r}-r^\delta(t)}{r^\gamma(t)-r^\delta(t)}$	$\chi = \frac{\bar{r}-r^\gamma(t)}{R_f - R_{eq}(t)}$

Tableau A3.6 : expressions de S_w (valables également pour S_e en remplaçant l'indice w par l'indice e)

	Solide 1	Solide 2	Liquide extradendritique
Solidification primaire	$\zeta_w S^{s/li}$	/	$\chi_w S^{ext} + (1-\chi_w) S^{env}$
Transformation péritectique	$\zeta_w S^{\delta/\gamma}$	$\eta_w S^{\gamma/l} + (1-\eta_w) S^{\delta/\gamma}$	$\chi_w S^{ext} + (1-\chi_w) S^{env}$

(l = li ou le)

Tableau A3.7 : expressions de Vol_w^{tot}/V_0 (valables également pour Vol_e^{tot}/V_0 en remplaçant l'indice w par l'indice e)

	Solide 1	Solide 2	Liquide extradendritique
Solidification primaire	$\zeta_w^2 g^s$	/	$\chi_w^2 + (1-\chi_w^2) g^{env}$
Transformation péritectique	$\zeta_w^2 g^\delta$	$\eta_w^2 (g^\delta + g^\gamma) + (1-\eta_w^2) g^\delta$	$\chi_w^2 + (1-\chi_w^2) g^{env}$

Tableau A3.8 : expressions des coefficients de l'équation (A3.31)

	Géométrie simplifiée	Géométrie complexe
$A^{\varphi 1/\varphi 2}$	$S^{\varphi 1/\varphi 2} \delta t \left[\frac{D}{X^2} \frac{R-1}{d} - V(\xi=1) \right]$	$S^{\varphi 1/\varphi 2} \delta t \left[\frac{D}{X} \frac{R-1}{d} \right] - \delta(Vol_e^{tot})$
$A(W)^{t+\delta t}$	$S_w \delta t \left[\frac{D}{X^2} \frac{1}{\delta \xi_w} + \max(0, V_w) \right] + S^{\varphi 1/\varphi 2} \delta t \left[\frac{D}{X^2} \frac{1}{d} \right]$	$S_w \delta t \left[\frac{D}{\delta_w} \right] + \max(0, \delta(Vol_w^{tot})) + S^{\varphi 1/\varphi 2} \delta t \left[\frac{D}{X} \frac{1}{d} \right]$
$A(P)^t$	$\frac{1}{X} Vol_p$	Vol_p
$A(P)^{t+\delta t}$	$A^{\varphi 1/\varphi 2} + A(W)^{t+\delta t} + A(P)^t$	

Tableau A4-1 : coefficients de diffusion utilisés dans les calculs pour les alliages Fe-Ni-C et Fe-C-Cr (en m²/s)

	Ferrite	Austénite	Liquide
C	$1.3 \exp(-81\ 400/8,314T).10^{-6}$ [45]	$7.6 \exp(-134\ 600/8,314T).10^{-6}$ [45]	10^{-8}
Ni	$1.6 \exp(-240\ 000/8,314T).10^{-4}$ [45]	$3.4 \exp(-282\ 400/8,314T).10^{-5}$ [45]	10^{-8}
Cr	/	$2.2 \exp(-286\ 000/8,314T).10^{-4}$ [45]	10^{-8}

Tableau A4-2 : Valeurs des grandeurs thermophysiques des équations (5.8) et (5.9) pour les alliages étudiés dans le chapitre V

Coefficient de dilatation thermique β_T	$-8,8527.10^{-5}K^{-1}$
Coefficient d'expansion solutale en carbone β_w^C	$-0,01416\%mass^{-1}$
Coefficient d'expansion solutale en nickel β_w^{Ni}	$6,85.10^{-4}\%mass^{-1}$
Coefficient d'expansion solutale en chrome β_w^{Cr}	$-9,915.10^{-4}\%mass^{-1}$
Distance entre bras primaires de dendrite λ_1	1mm*
Densité du fer liquide pur	7060Kg/m ³
Viscosité μ	0.0042Pa.s
Tortuosité t	2
Constante de Carman-Kozeny k_c	5

*La valeur de λ_1 a été fixée à 1mm pour favoriser la convection du liquide au cours de la solidification.

Tableau A4.3 : Propriétés thermophysiques du moule, du réfractaire, de la poudre isolante et de l'acier dans le cas du lingot représenté sur la figure V-3

Matériau	Densité [kg/m ³]	Chaleur spécifique [J/kg.K]	Conductivité thermique [W/m.K]
Moule (fonte)	7000	540	26,3
Bord réfractaire	185	1040	1,4
Poudre isolante	260	1040	1,88
Acier solide	7060	700	29
Acier liquide	7060	700	39,3

Tableau A4.4 : Propriétés thermophysiques du moule, du réfractaire et de l'acier dans le cas du lingot représenté sur la figure V-9

Matériau	Densité [kg/m ³]	Chaleur spécifique [J/kg.K]	Conductivité thermique [W/m.K]
Moule (fonte)	7000	550	26,3
Bord réfractaire	1300	1050	0,7
Acier solide	7060	715	29
Acier liquide	7060	715	39,3

FIGURES

Chapitre I

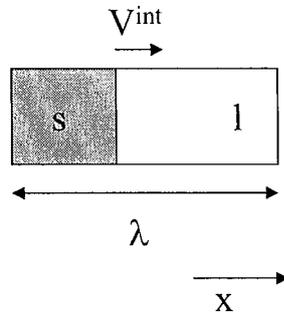


Figure I-1 : système d'étude de la microségrégation

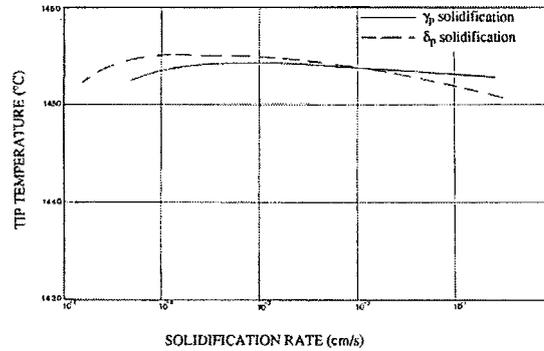


Figure I-2 : températures des points de dendrites δ et γ calculées en fonction de la vitesse de croissance pour un acier Fe-18.5%Cr-11%Ni. Au dessus de 10^{-2} cm/s, la phase primaire sera γ au lieu de δ [39].

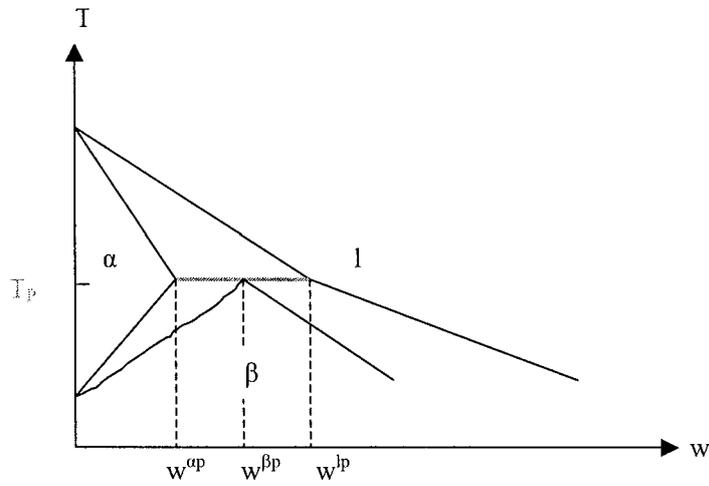


Figure I-3 : diagramme de phase binaire schématique comportant une réaction péritectique où T_p est la température d'équilibre de la réaction péritectique. $w^{\alpha p}$, $w^{\beta p}$, et w^{lp} sont respectivement les titres massiques de la phase primaire α , du liquide l et de la phase β pour cette température.

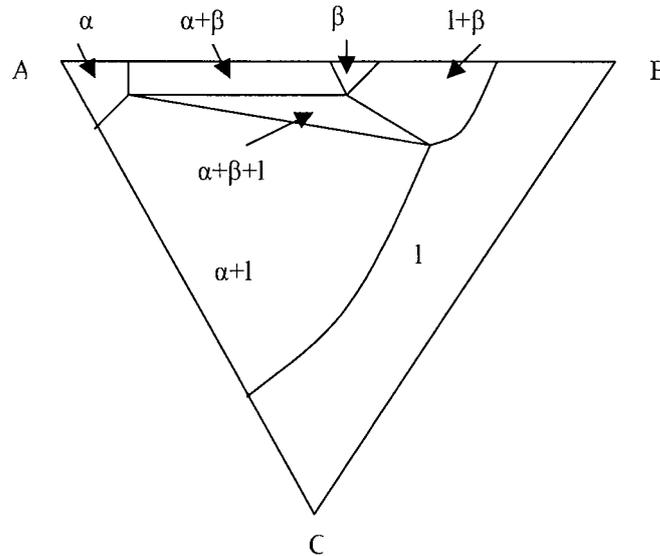


Figure I-4 : Triangle formé par les trois phases en équilibre dans une section isotherme d'un système ternaire (les trois éléments sont désignés par les lettres A, B et C).

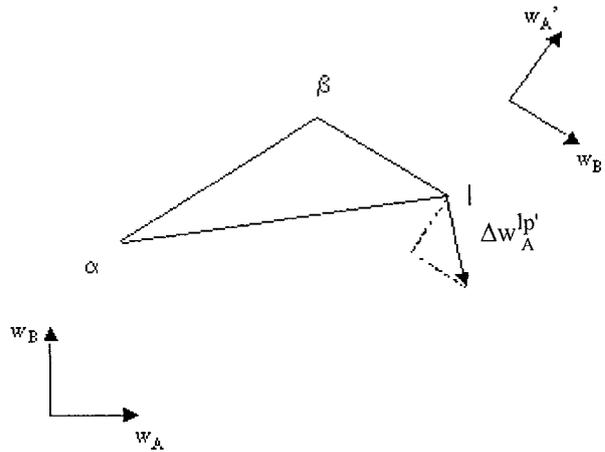


Figure I-5 : triangle d'équilibre dans un système ternaire et illustration du critère de Ricci pour déterminer si la réaction est péritectique ou eutectique. Sur l'exemple montré sur la figure, $\Delta w_A^{lp'} < 0$: le critère de Ricci prévoit donc une réaction péritectique.

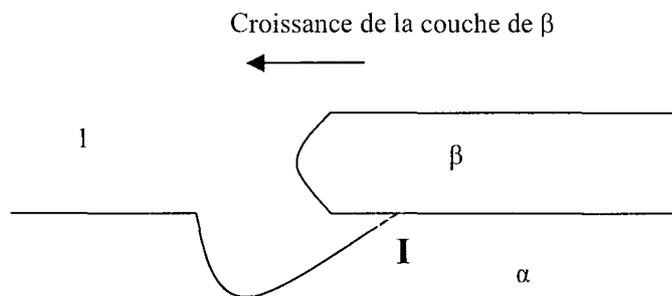


Figure I-6 : schéma de la réaction péritectique, avec les trois phases en contact à une jonction triple I, montrant une dissolution et une resolidification de la phase primaire α lors de la formation de la couche β entre α et le liquide.

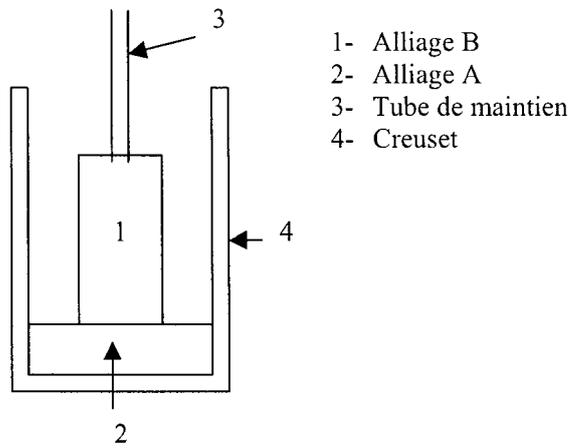


Figure I-7 : Schéma du dispositif expérimental de Matsuura et coll. [18]

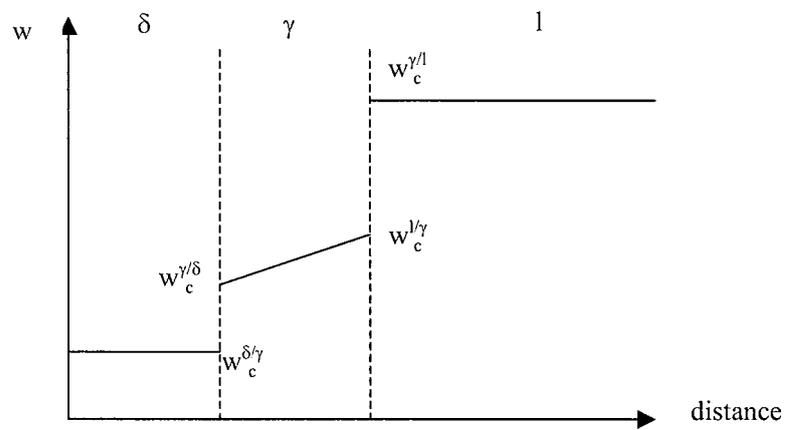


Figure I-8 : représentation schématique de la concentration en carbone pendant la transformation péritectique.

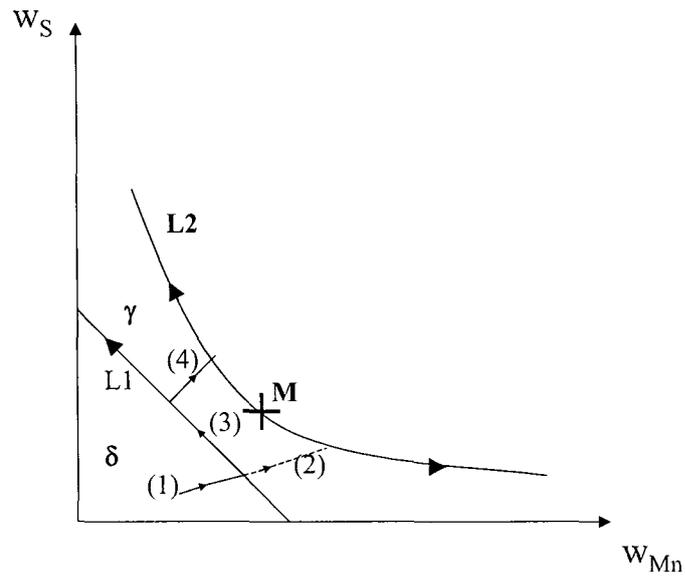


Figure I-9 : projections des nappes de liquidus sur le plan (w_{Mn} , w_S) dans le coin riche en fer du diagramme de phases.

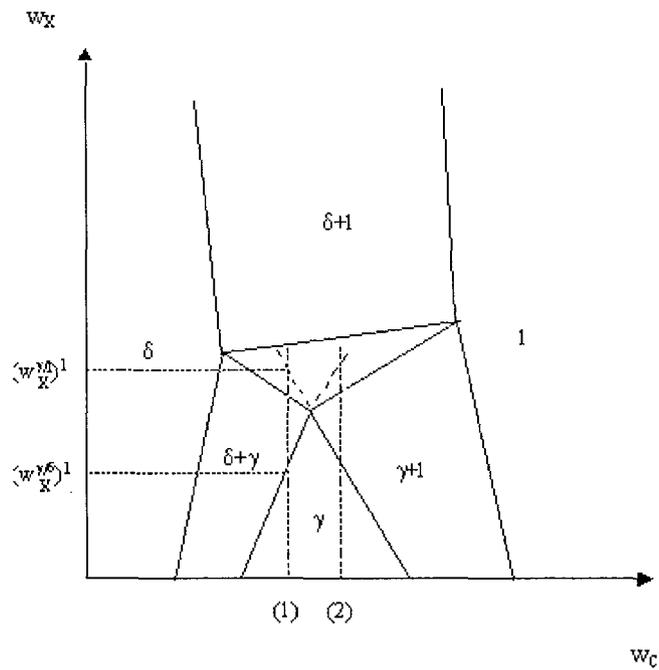


Figure I-10 : coupe isotherme dans le diagramme d'équilibre de phases ternaire Fe-C-X.

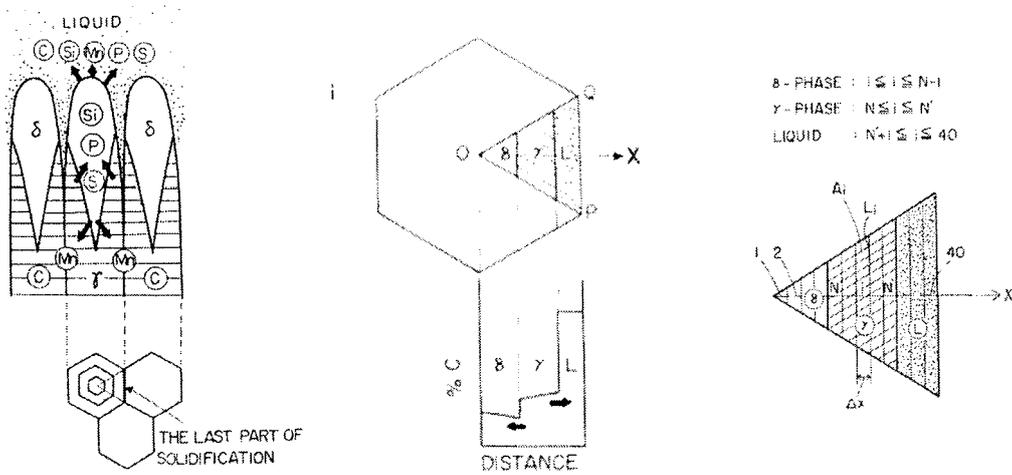


Figure I-11 : géométries adoptées par Ueshima et coll. [24] dans leur modèle de microségrégation.

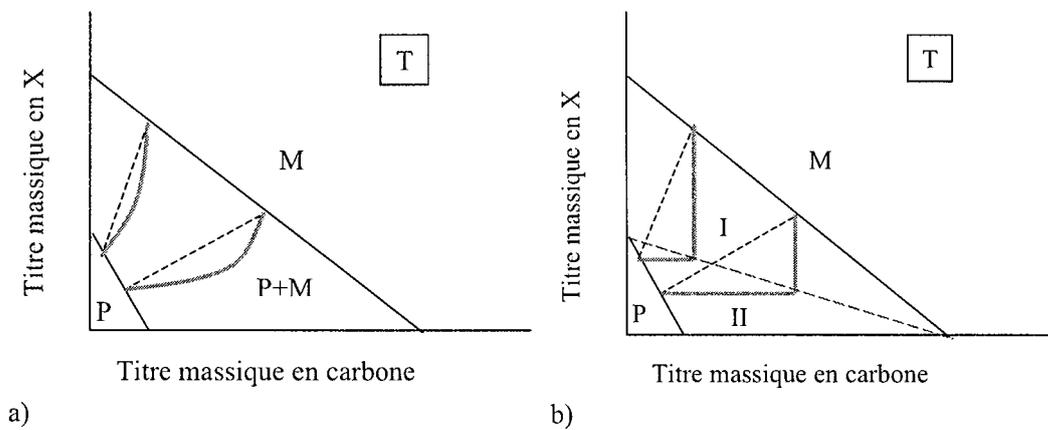


Figure I-12 : compositions interfaciales données par la connode (trait pointillée) correspondant aux compositions nominales appartenant à la courbe IC (en trait plein). a) cas général et b) système où $D_c^M \gg D_X^M$.

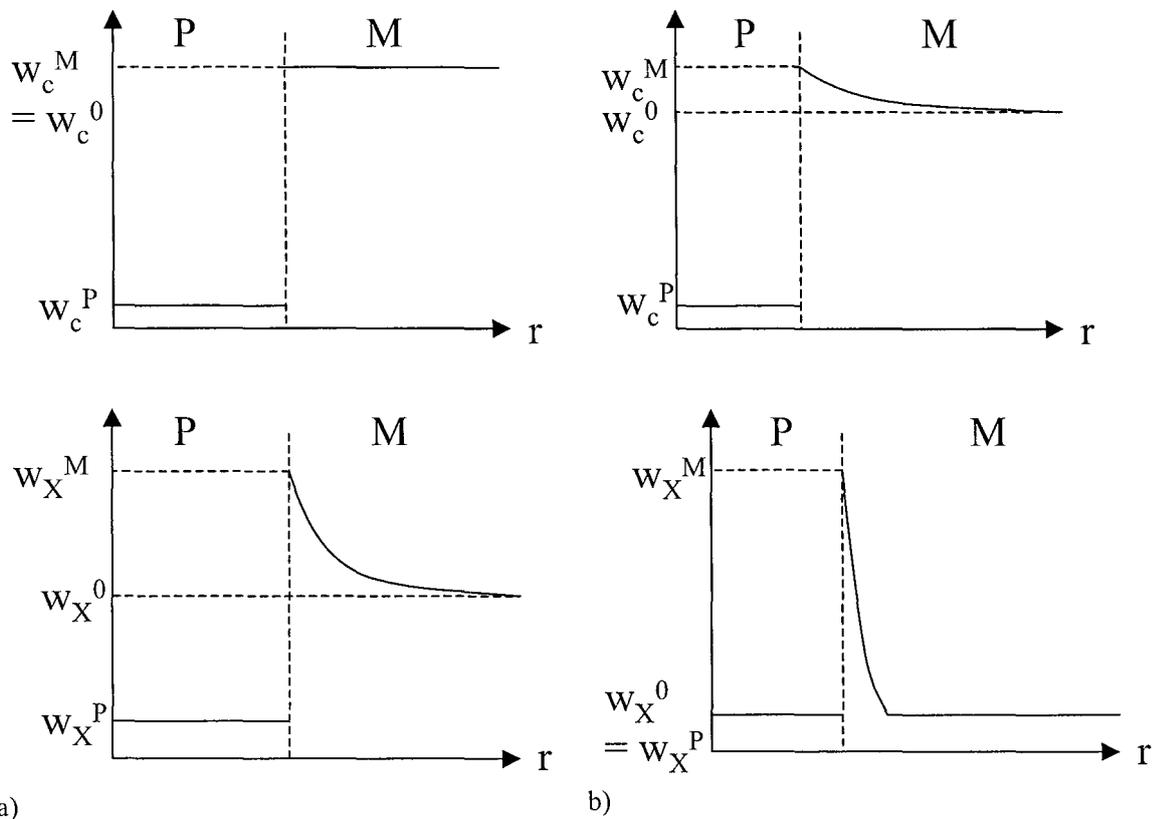


Figure I-13 : profils de composition schématique pour (w_c^0, w_X^0) appartenant (a) à la région I ou (b) à la région II.

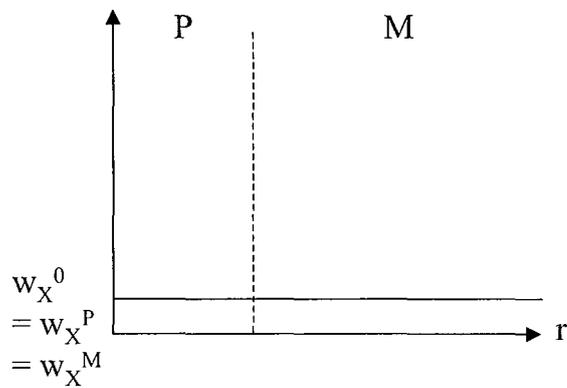


Figure I-14 : comportement du soluté X à l'interface P/M en situation de paraéquilibre.

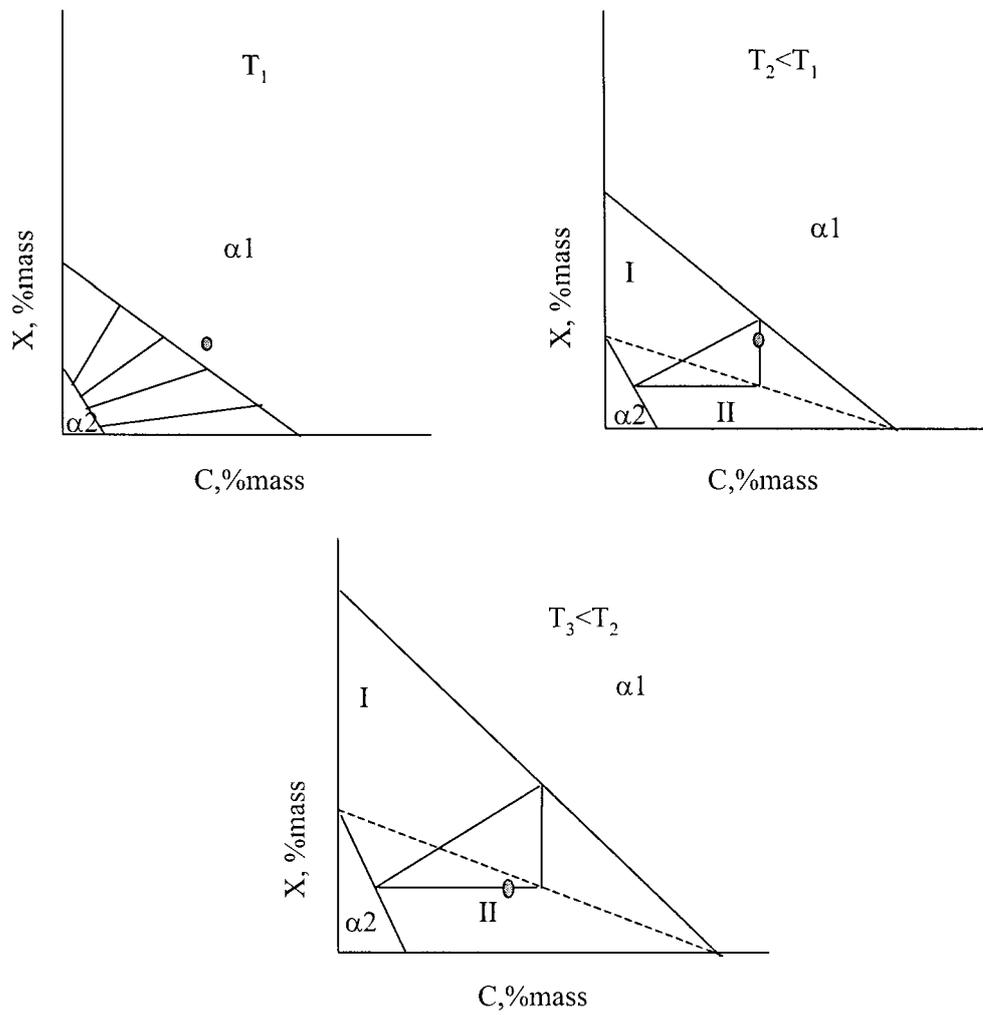


Figure I-15 : variation du diagramme de phases et de la courbe IC au cours du refroidissement.

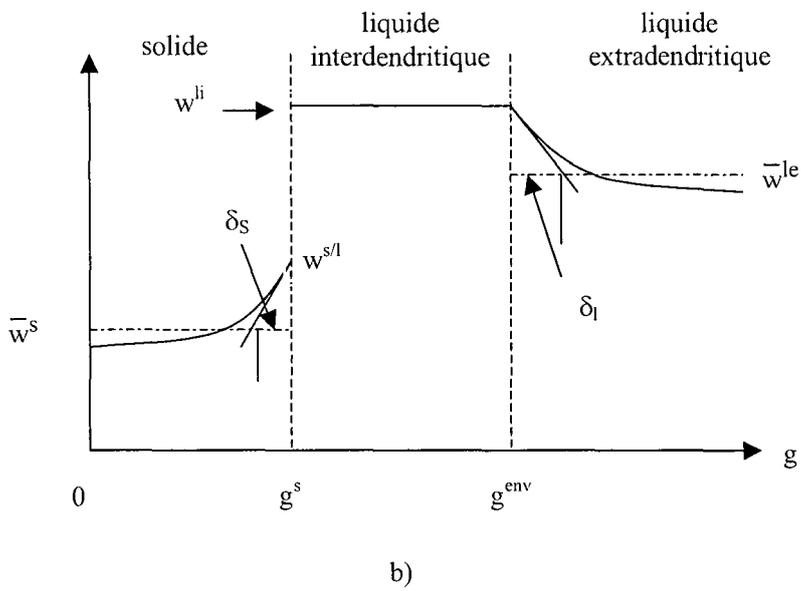
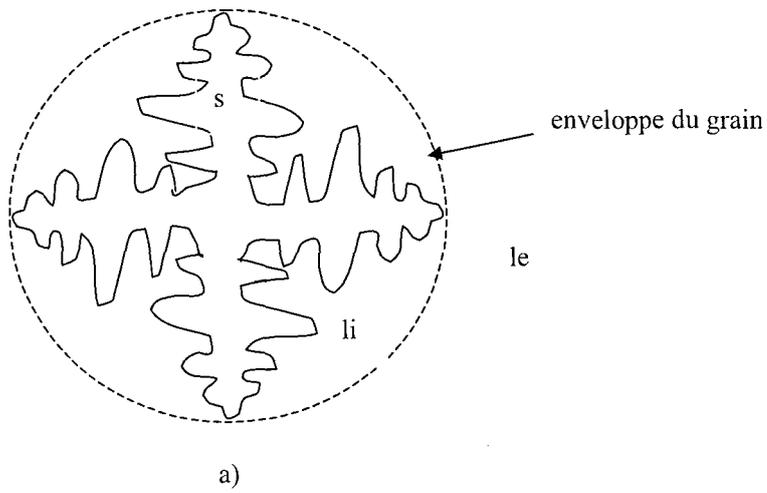


Figure I-16 a) représentation schématique d'un grain équiaxe dendritique en croissance et profils de soluté associés dans chacune des phases dans le modèle de Rappaz et Thévoz.

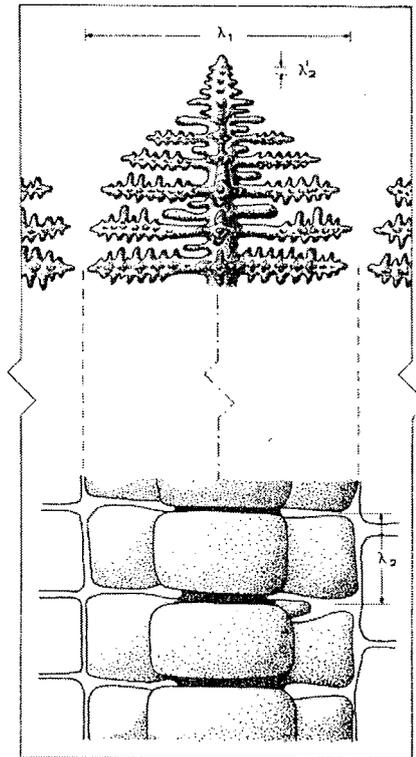


Figure I-17 : Phénomène de maturation dans une dendrite en cours de croissance (source : référence [31]).

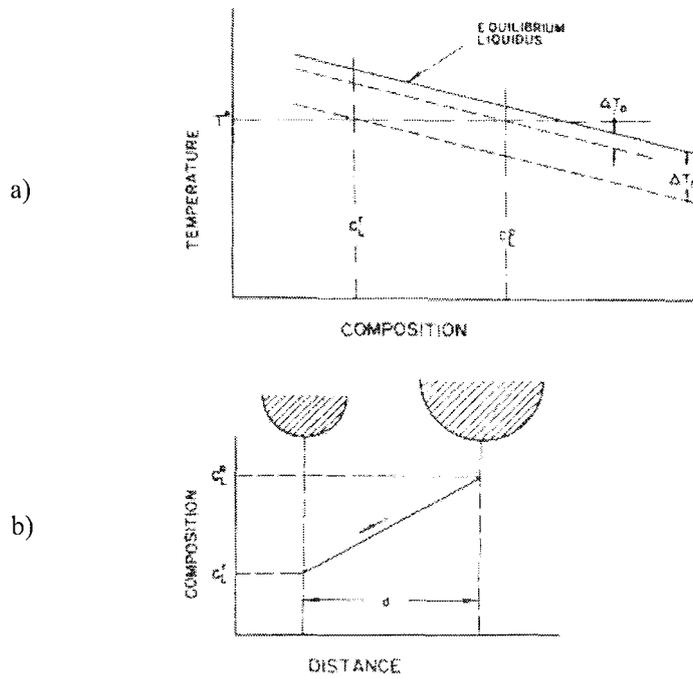


Figure I-18 : a) Dépression de la température de liquidus due aux effets de courbure. b) Gradient de soluté dans le liquide (source : référence [32]).

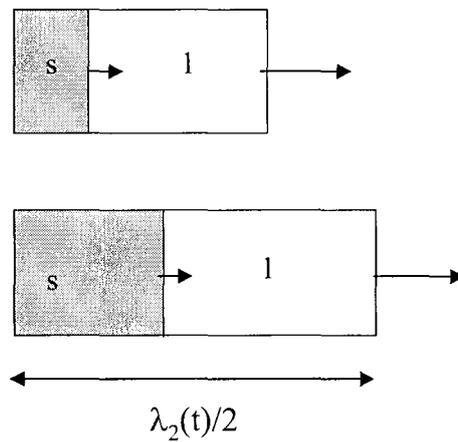


Figure I-19 : représentation schématique du domaine d'étude de la microségrégation en cours de maturation.

Chapitre II

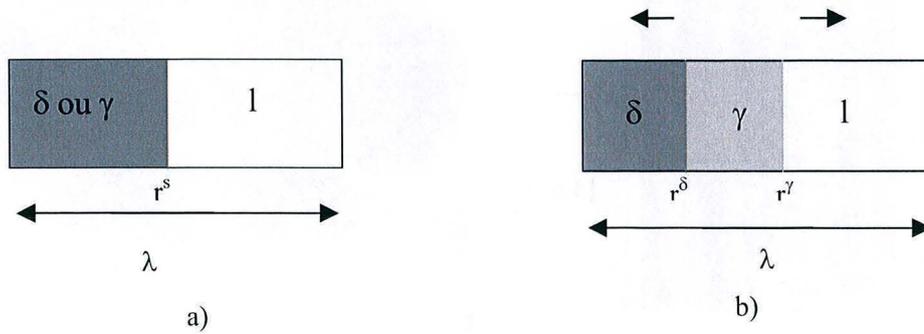


Figure II-1 : représentation schématique du domaine de calcul de la microségrégation dans le cas d'une géométrie simplifiée en a) solidification primaire et b) pendant la transformation péritectique. Les flèches au dessus du schéma b) indiquent le mouvement des interfaces au cours du refroidissement.

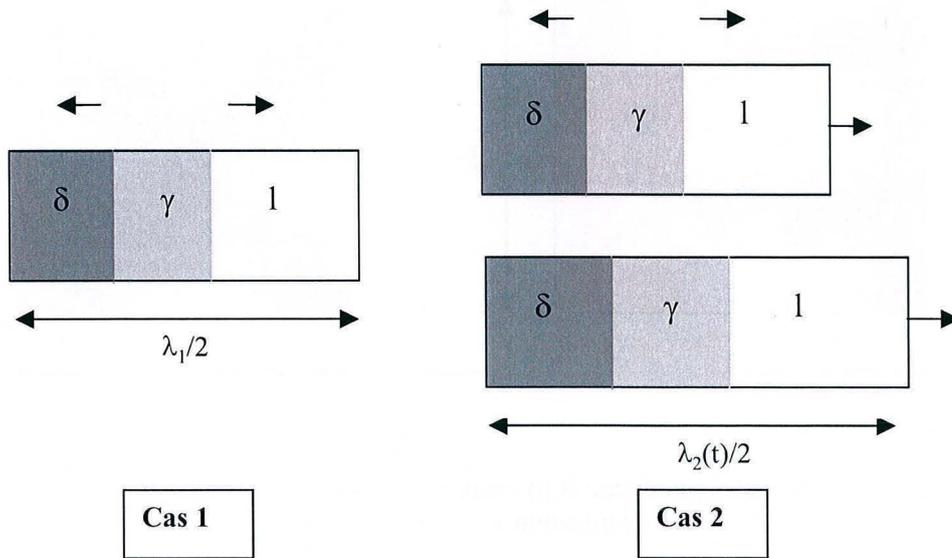


Figure II-2 : Définition du domaine d'étude de la microségrégation (pendant la transformation péritectique) selon que la distance caractéristique est prise égale à $\lambda_1/2$ ou $\lambda_2/2$ dans le cas du modèle à morphologie simplifiée. Les flèches figurant au dessus des différents schémas indiquent le mouvement des interfaces au cours du refroidissement.

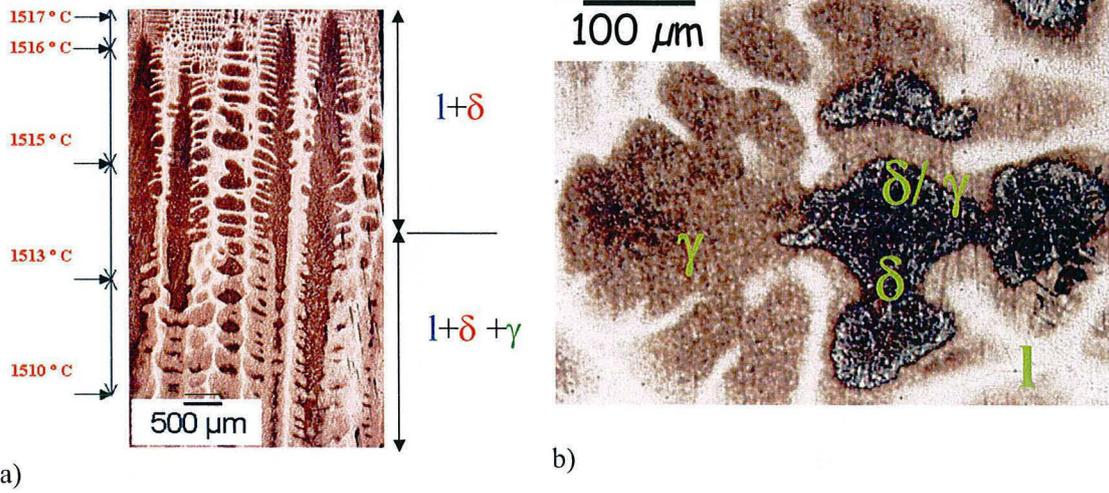


Figure II-3 : a) Coupe longitudinale et b) coupe transversale d'une dendrite obtenues à partir d'un barreau de TSD de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C.

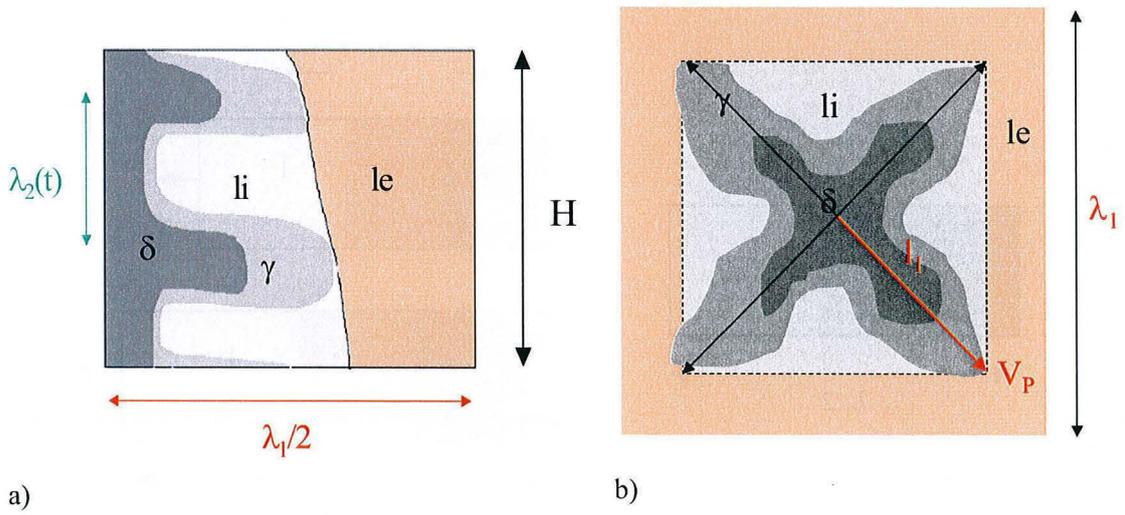


Figure II-4 : a) coupe longitudinale et b) coupe transversale du volume représentatif de la microségrégation à géométrie complexe

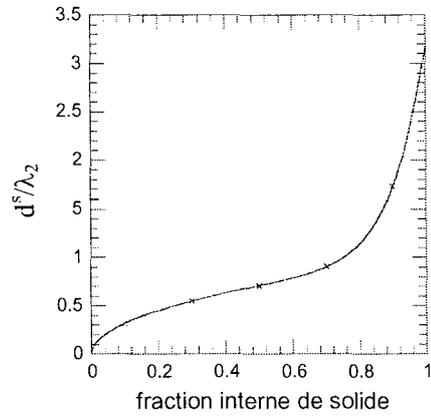


Figure II-5 : rapport d^s/λ_2 en fonction de la fraction volumique interne de solide dans l'enveloppe avec $l_1/\lambda_2 = 2$.

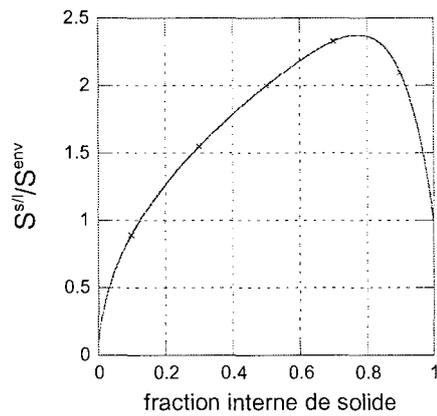


Figure II-6 : rapport S^s/S^{env} en fonction de la fraction volumique interne de solide dans l'enveloppe avec $l_1/\lambda_2 = 2$

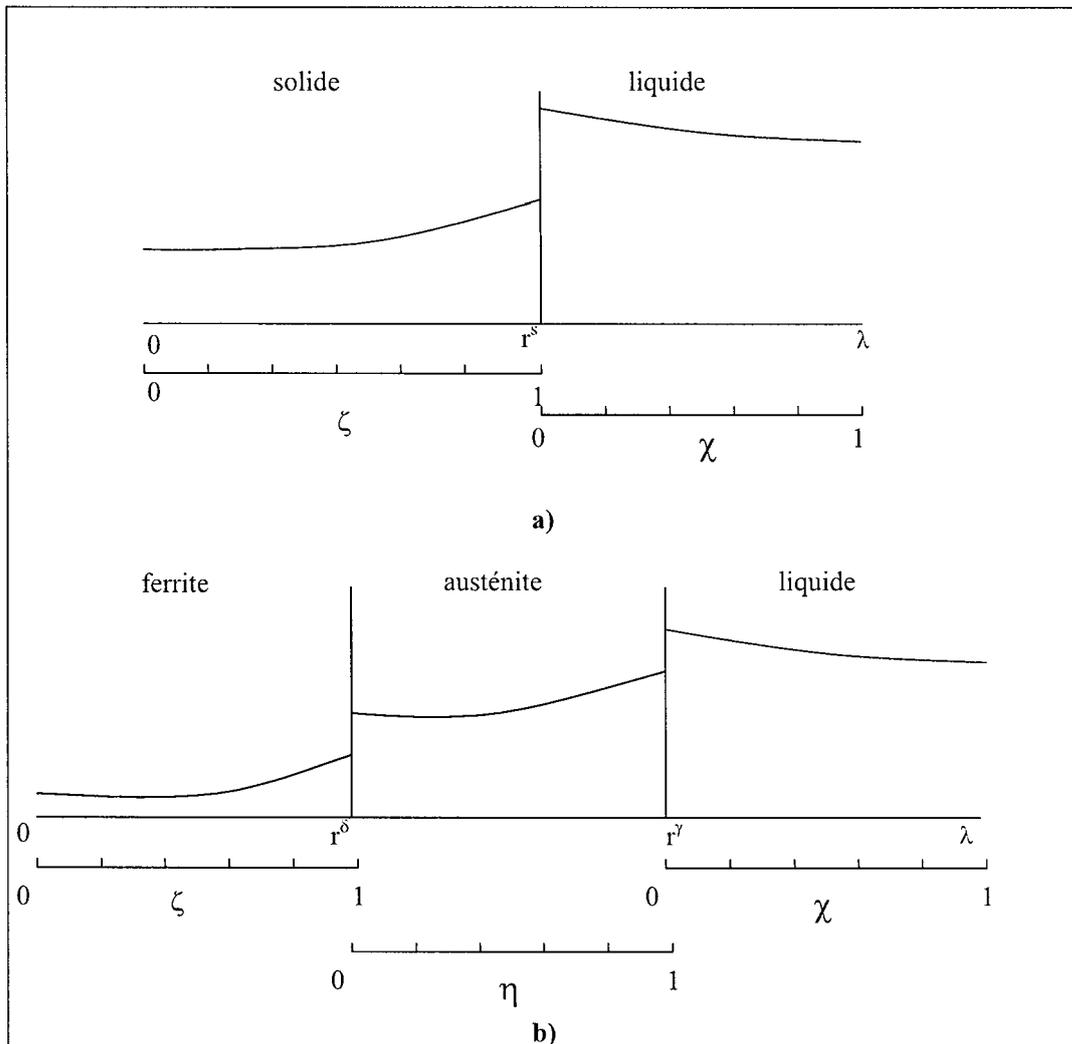


Figure II-7 : transformation de Landau associée au profil de soluté a) en solidification primaire et b) pendant la transformation péritectique.

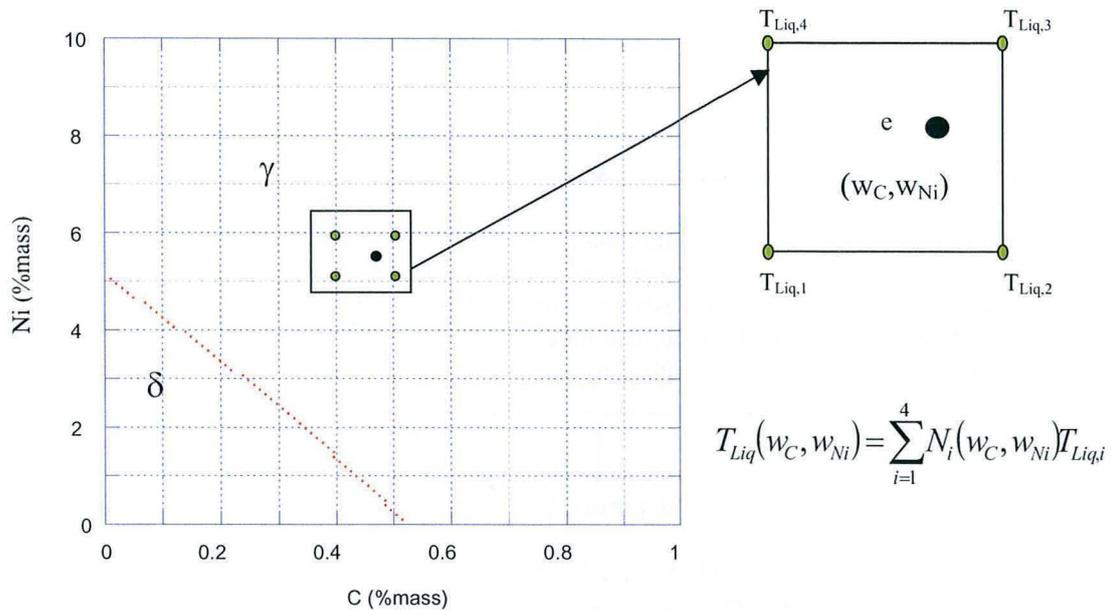


Figure II-8 : principe de l'approche tabulaire. L'exemple choisi correspond au système ternaire Fe-Ni-C. Les températures de liquidus de chaque point du maillage sont calculées par Thermo-Calc. La température de liquidus en un point quelconque est déterminée à partir des températures de liquidus des quatre points les plus proches du maillage par interpolation linéaire. Les N_i sont les fonctions d'interpolation associées à l'élément e.

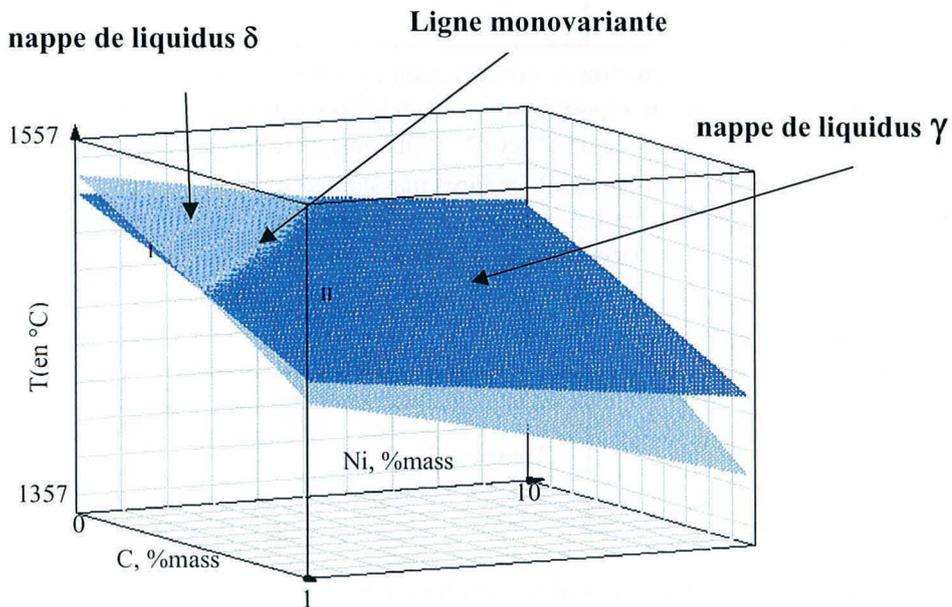


Figure II-9 : représentation 3D des nappes de liquidus δ et γ du système Fe-Ni-C à l'aide de l'approche tabulaire

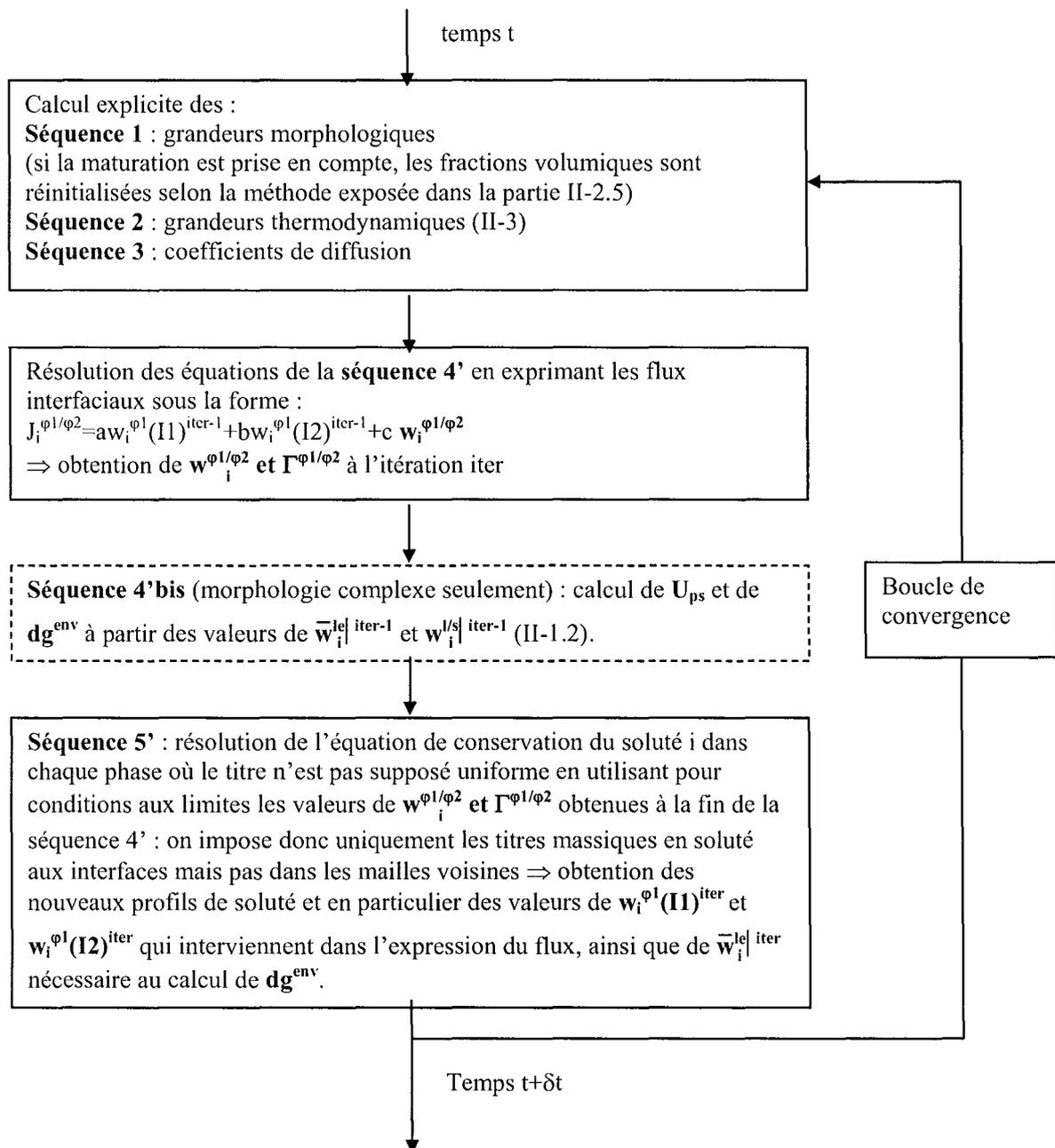


Figure II-10 : algorithme général du calcul de l'évolution de la microségrégation sur un pas de temps δt

Chapitre III

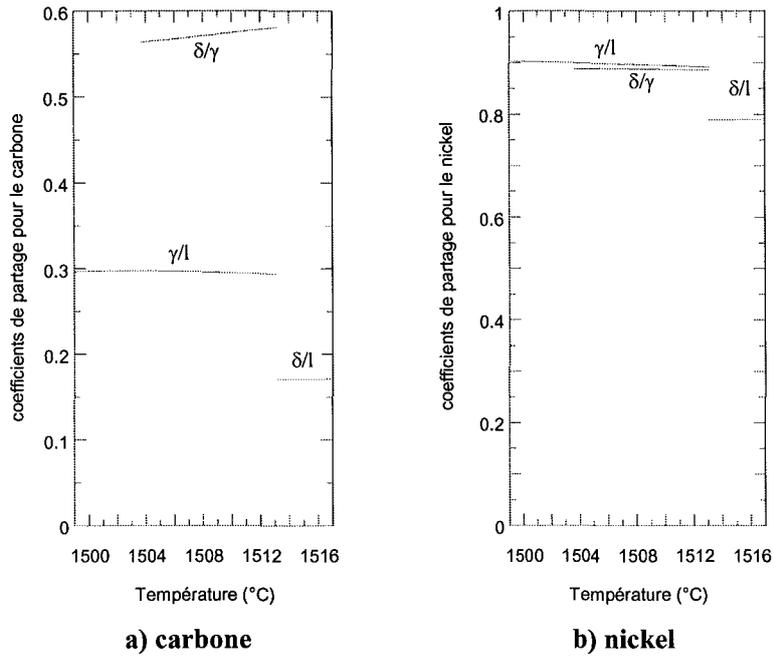
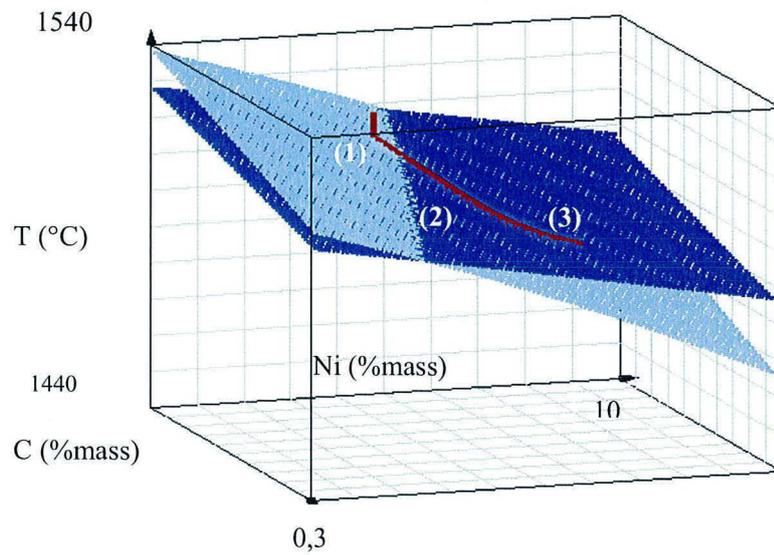
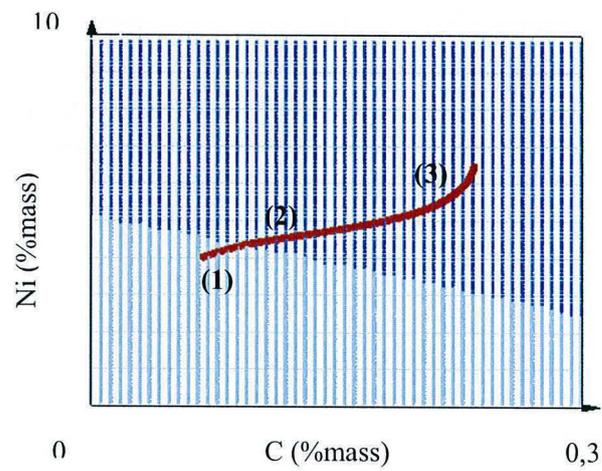


Figure III-1 : Evolution des coefficients de partage du nickel et du carbone en cours de solidification pour chaque interface présente dans le domaine d'étude



a)



b)

Figure III-2 : a) Représentation 3D du chemin de solidification. b) Projection du chemin de solidification sur le plan (w_C, w_{Ni}) .

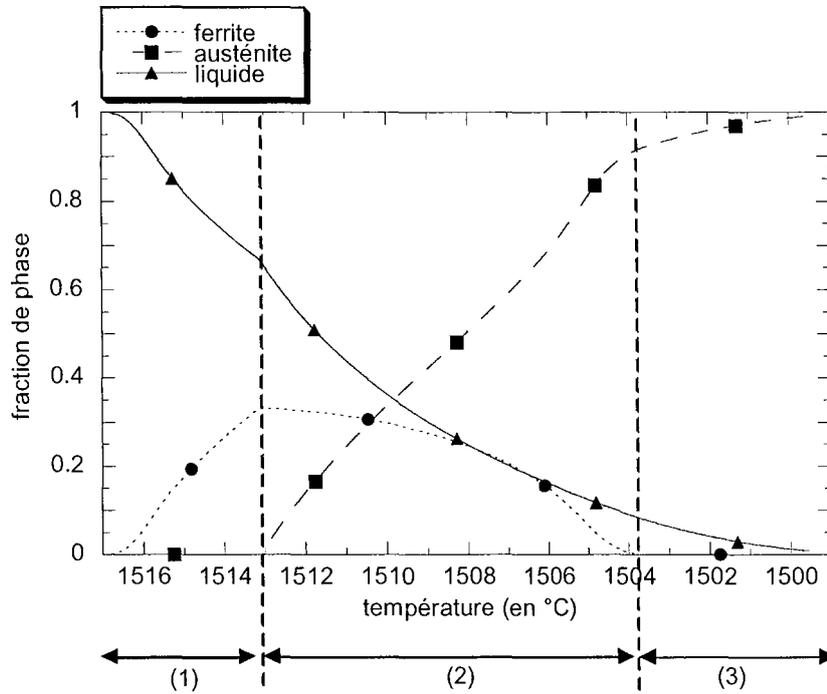


Figure III-3 : évolution des taux de phase au cours du refroidissement

- (1) solidification primaire en ferrite
- (2) transformation péritectique jusqu'à disparition complète de la ferrite
- (3) fin de solidification en austénite

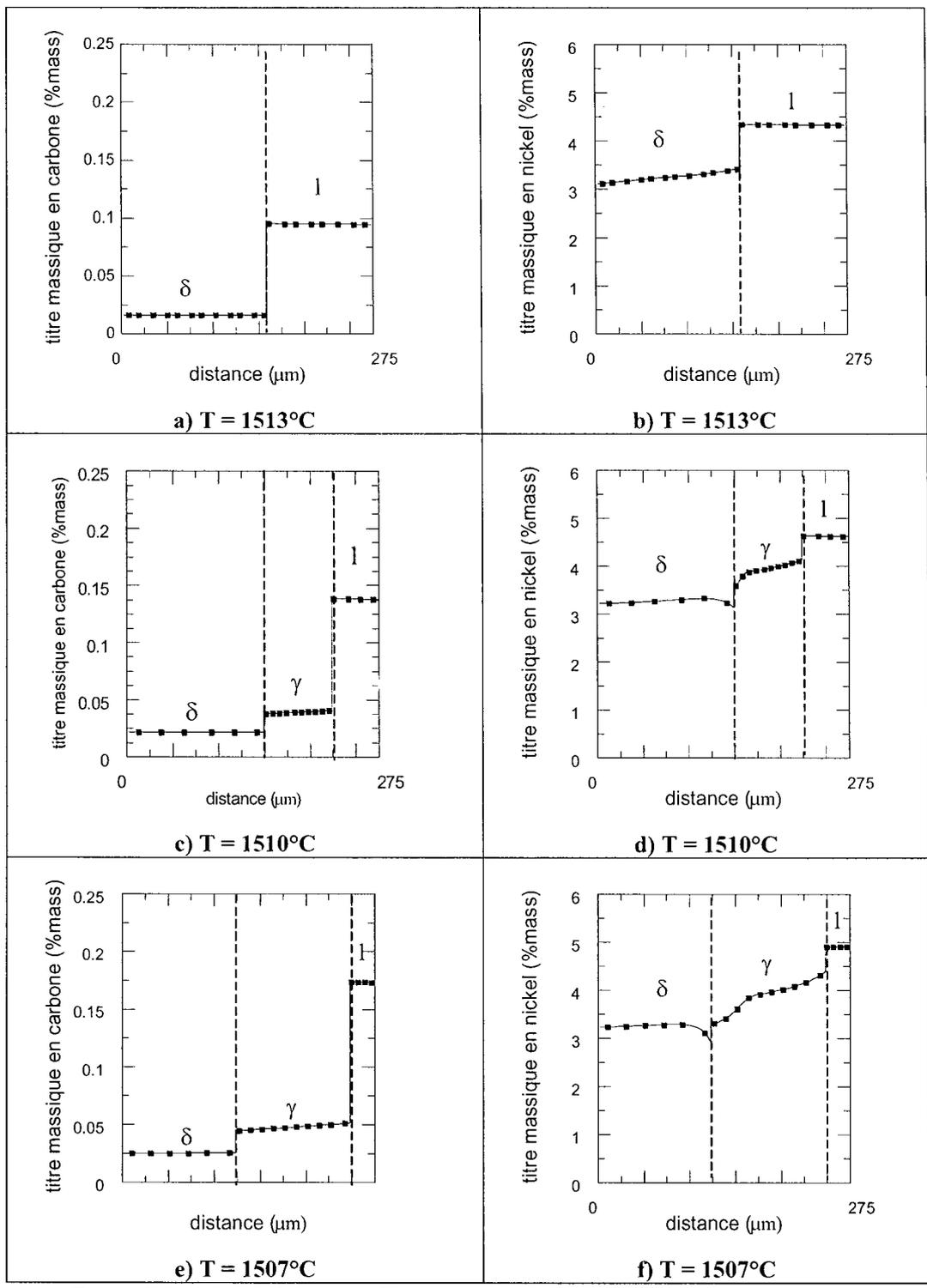


Figure III-4 : Evolution du profil en carbone (a,c,e) et nickel (b,d,f) au cours de la solidification

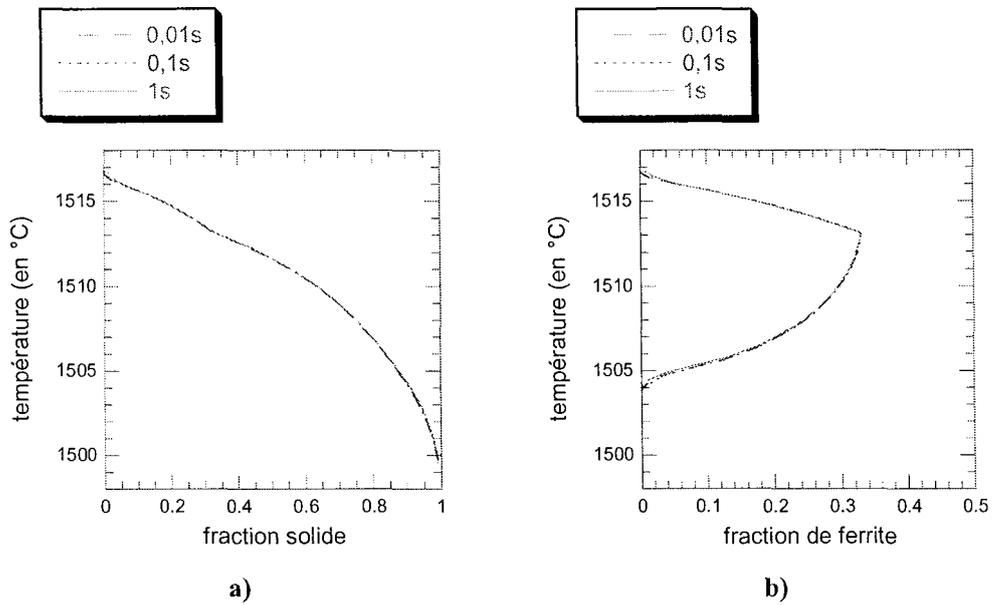


Figure III-5 : comparaison de l'évolution de la fraction solide (a) et de la fraction de ferrite (b) au cours du refroidissement calculée par le modèle pour différents pas de temps microscopique δt

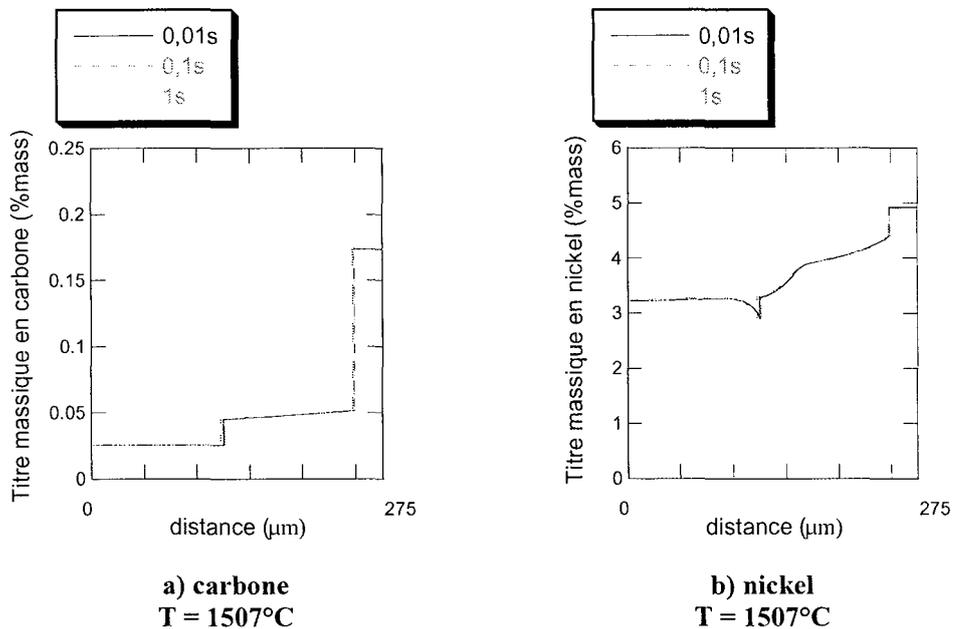


Figure III-6 : comparaison des profils en carbone (a) et nickel (b) à $T = 1507^{\circ}C$ calculés par le modèle pour différents pas de temps microscopiques

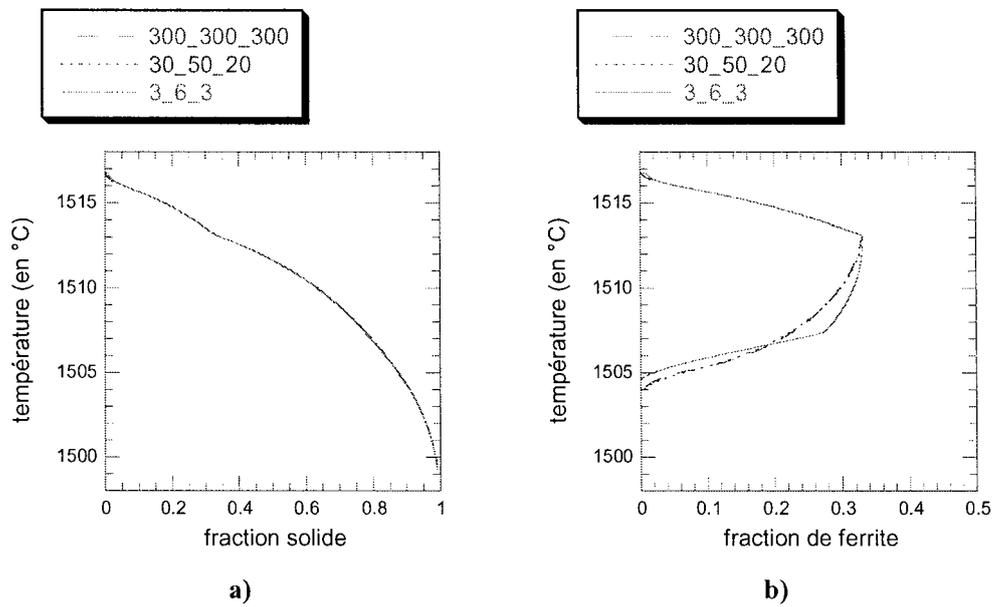


Figure III-7 : influence du maillage sur l'évolution de a) la fraction solide et b) de la fraction de ferrite en cours de solidification

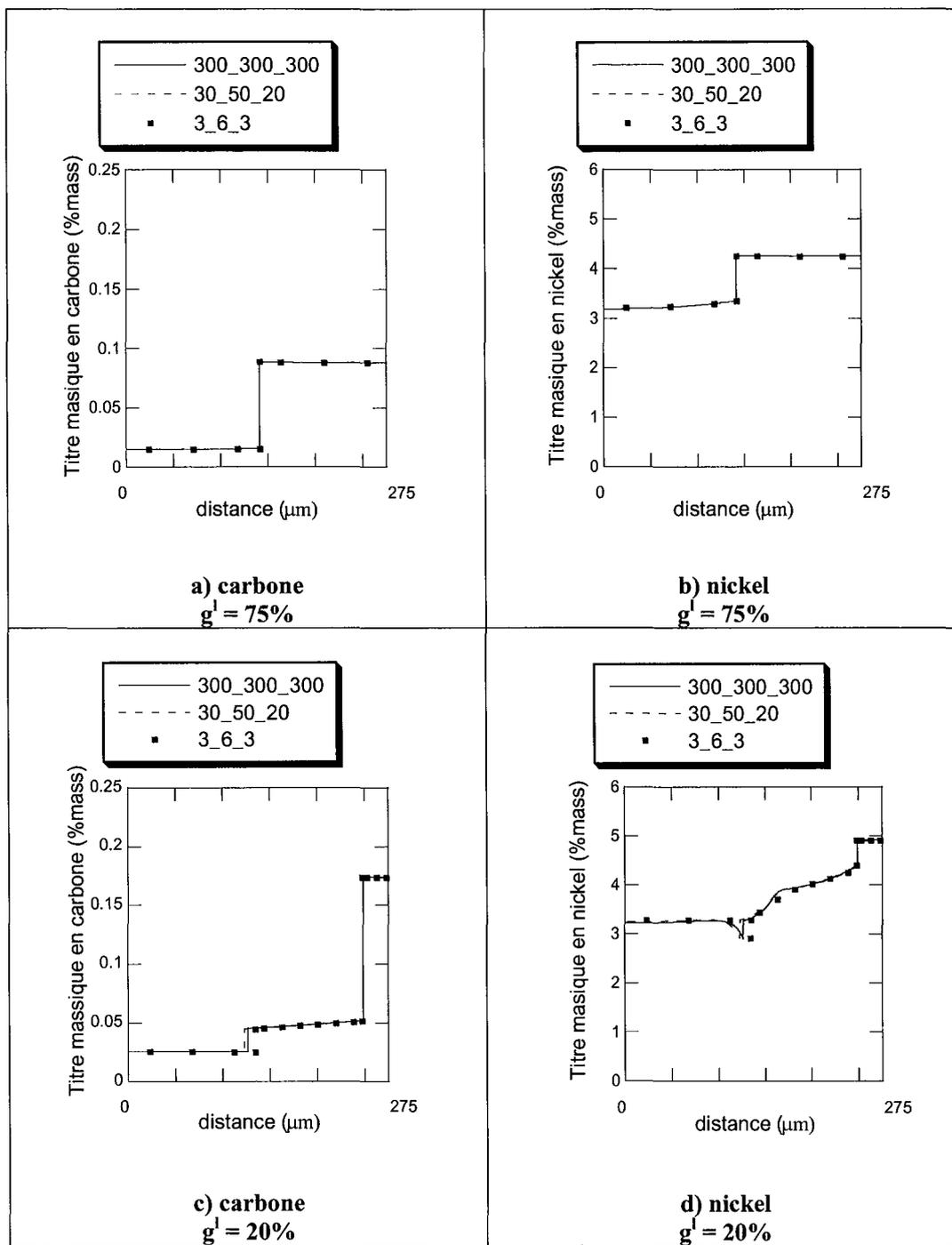


Figure III-8 : profils de soluté pour chacun des maillages pendant la solidification primaire à $g^I = 75\%$ (a,b) et pendant la transformation péritectique à $g^I = 20\%$ (c,d).

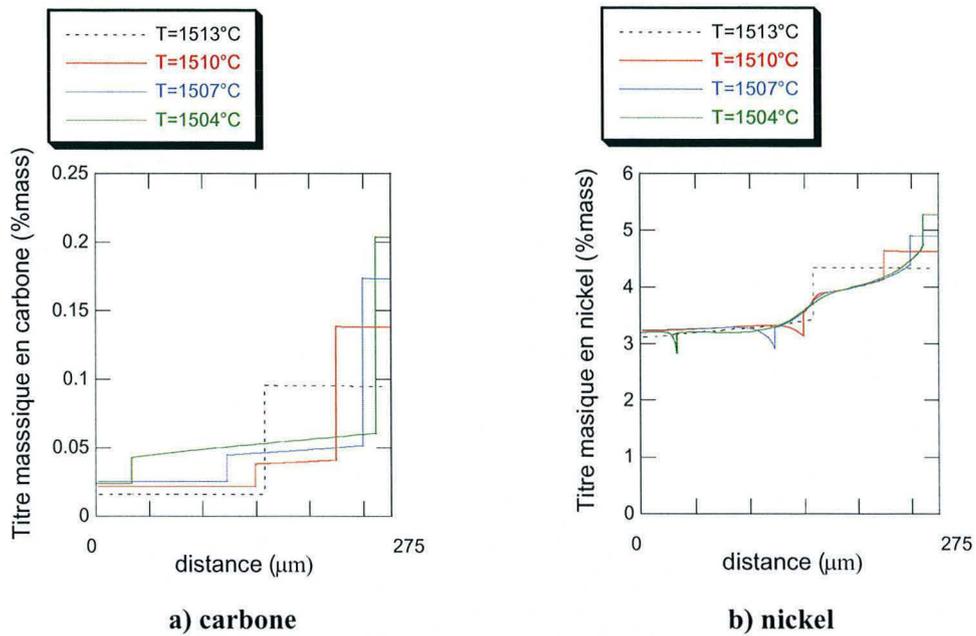


Figure III-9 : superposition des profils de titres massiques en solutés au cours de la transformation péritectique

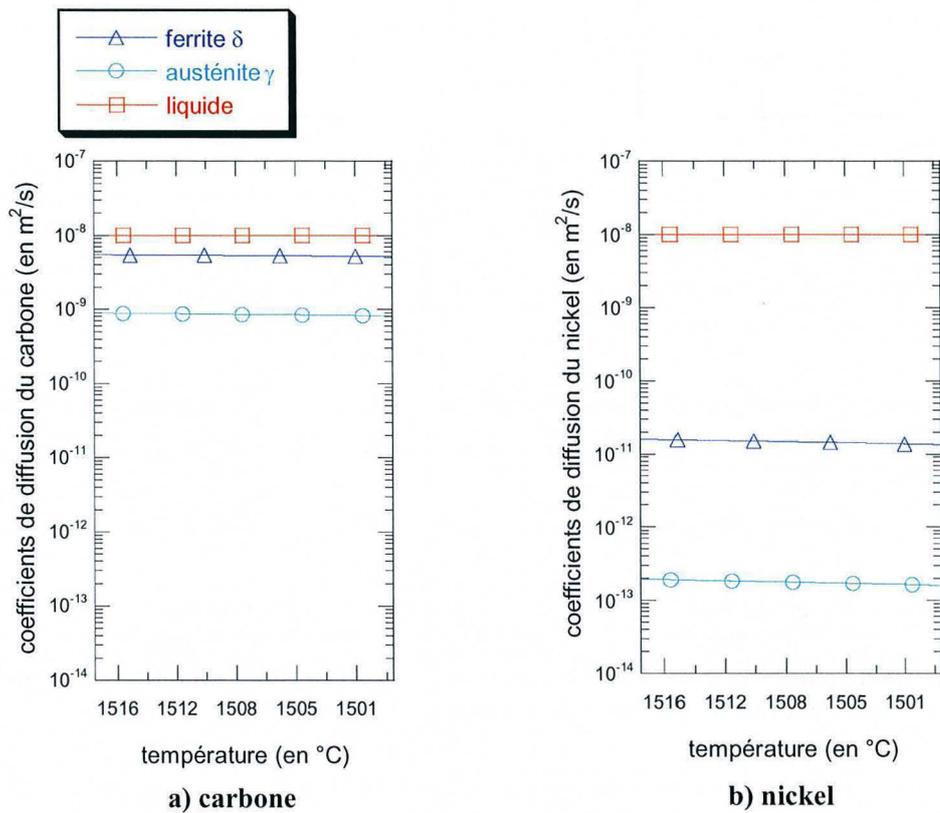
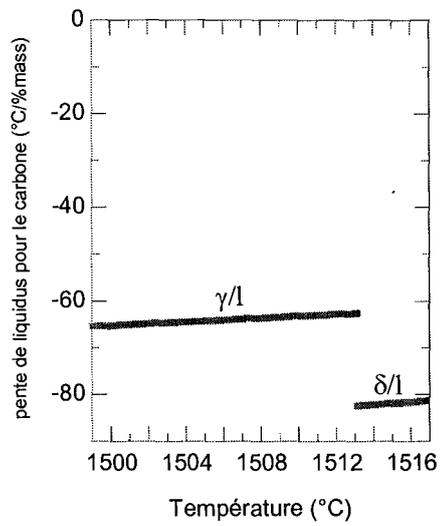
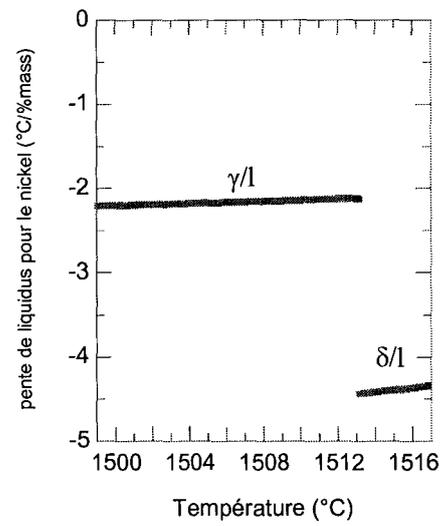


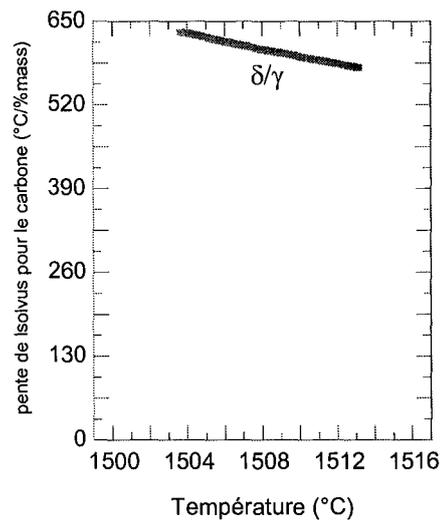
Figure III-10 : coefficients de diffusion du carbone et du nickel dans la ferrite, l'austénite et le liquide en fonction de la température



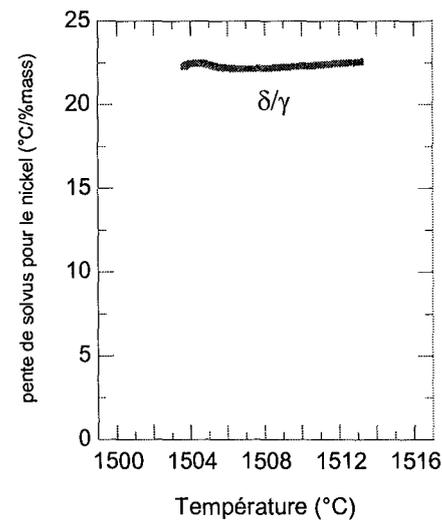
a) $m_c^{l/s}$



b) $m_{Ni}^{l/s}$



c) $m_c^{\delta/\gamma}$



d) $m_{Ni}^{\delta/\gamma}$

Figure III-11 : Evolution des pentes de liquidus et de solvus relatives au nickel et au carbone en cours de solidification

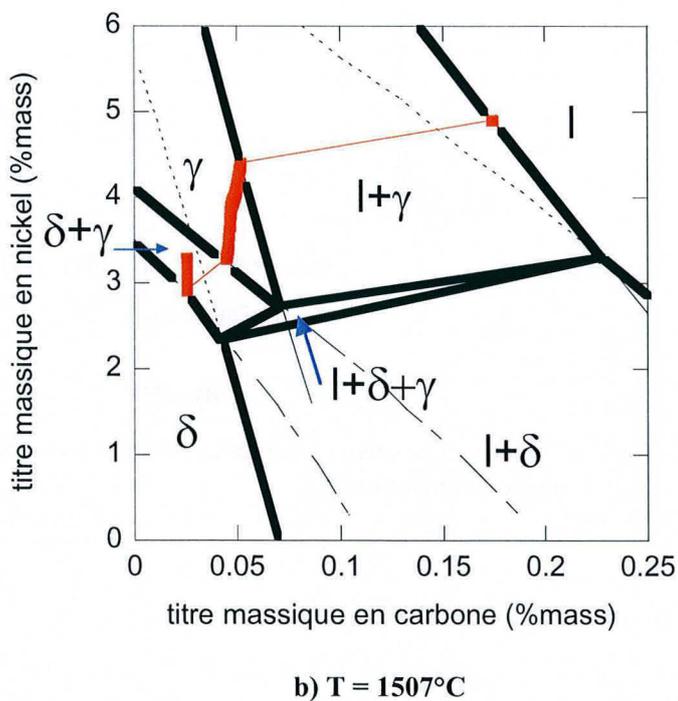
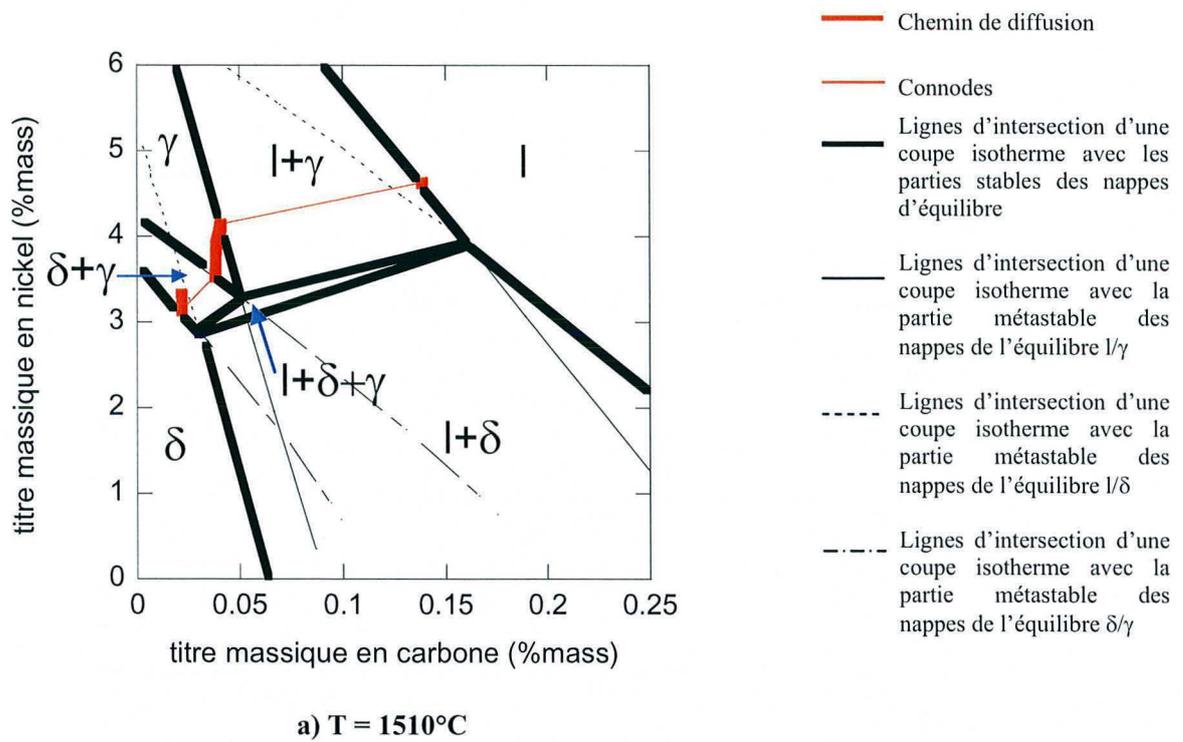


Figure III-12 : représentation du chemin de diffusion (trait rouge épais) dans les coupes isothermes du diagramme d'équilibre des phases ternaire Fe-Ni-C

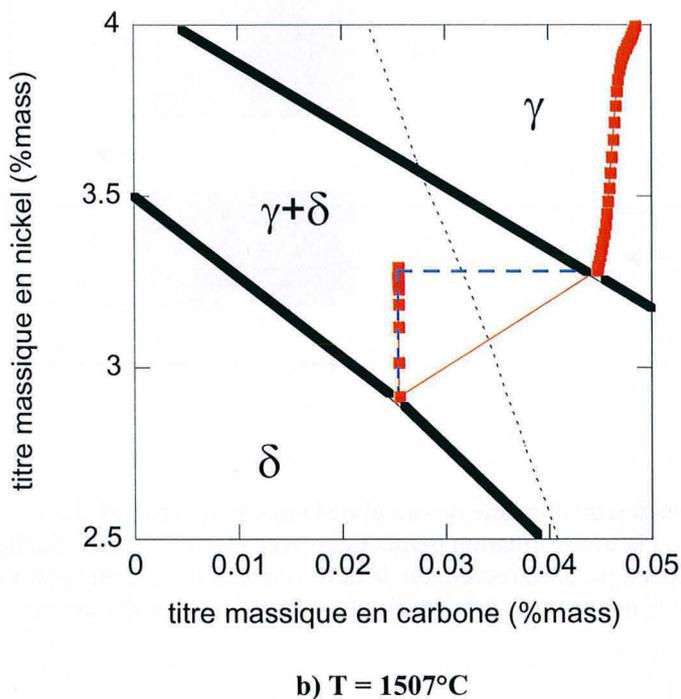
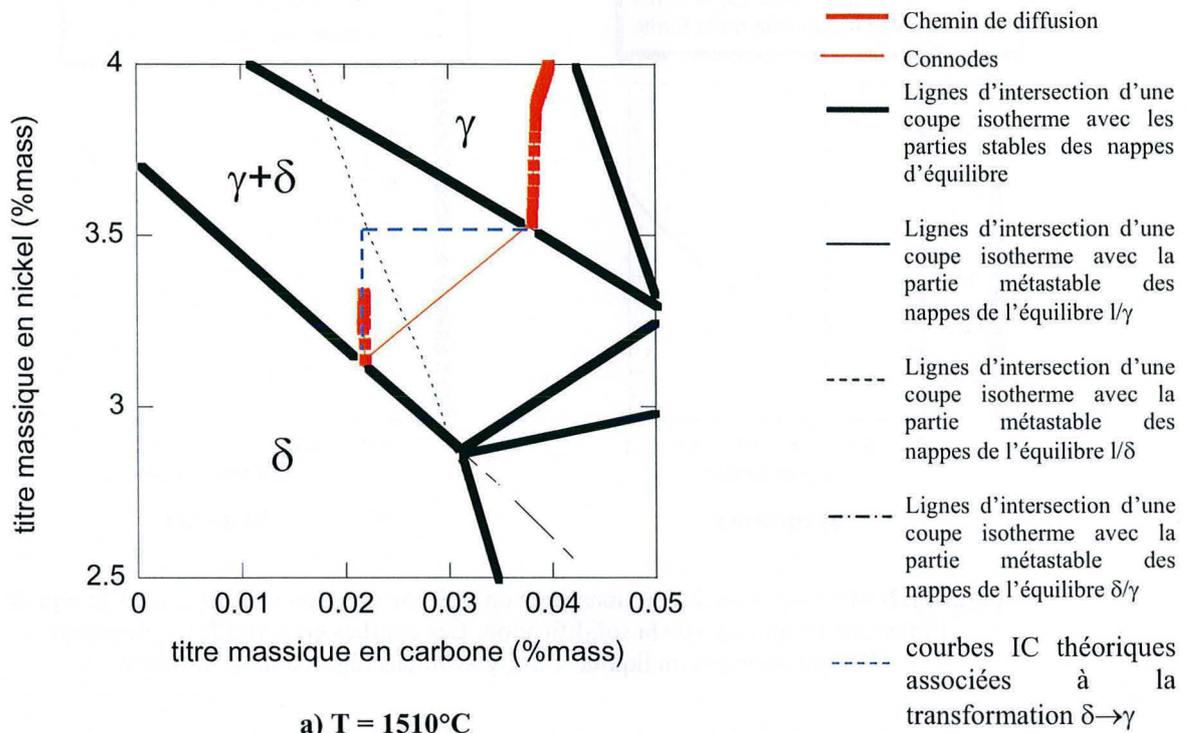


Figure III-13 : superposition des chemins de diffusion et des courbes IC théoriques associées à la transformation $\delta \rightarrow \gamma$

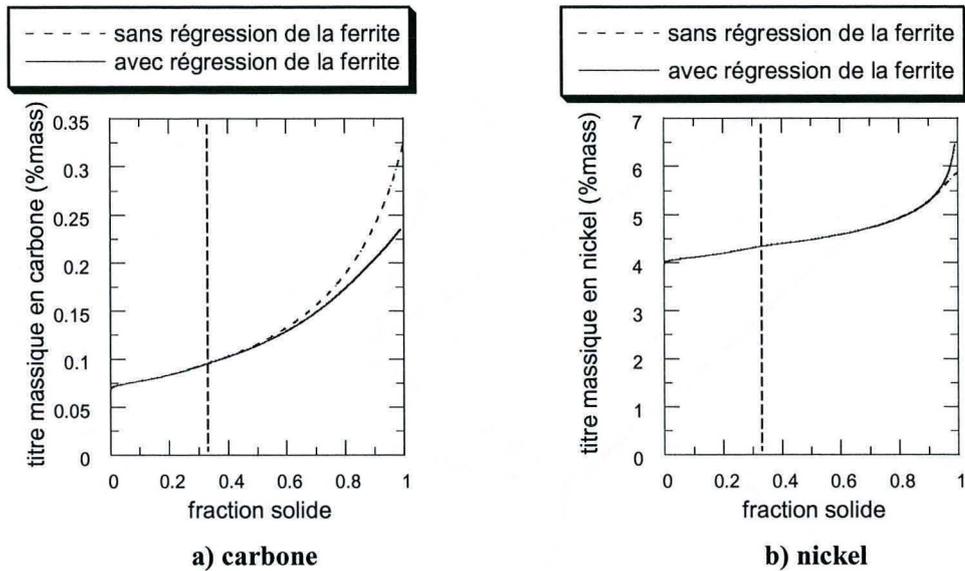


Figure III-14 : Évolution du titre massique en carbone (a) et en nickel (b) dans le liquide à l'interface l/s au cours de la solidification. Les courbes en pointillés représentent l'enrichissement du liquide s'il n'y avait pas régression de la ferrite.

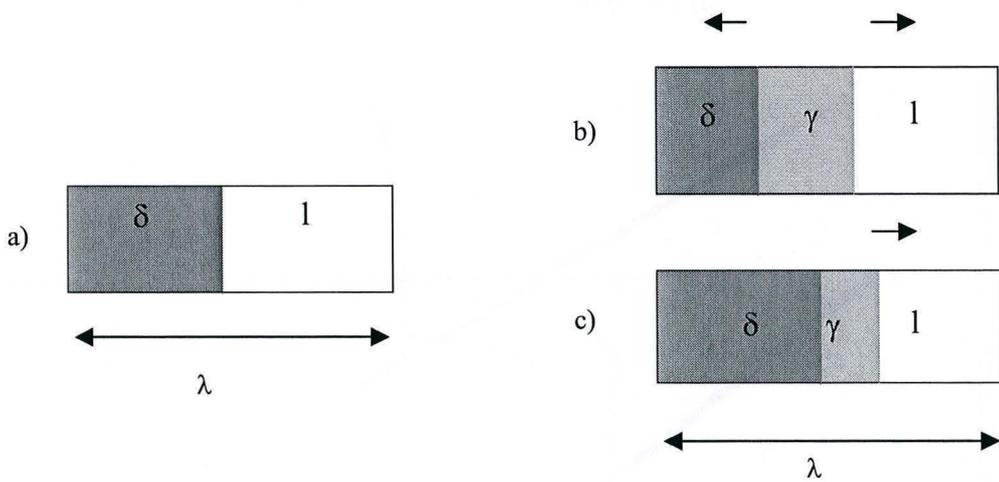


Figure III-15 : représentation du domaine de calcul de la microségrégation a) en solidification primaire, b) durant la transformation péritectique avec régression de la ferrite et c) durant la transformation péritectique sans régression de la ferrite. Les flèches au dessus des schémas b) et c) indiquent le mouvement des interfaces au cours du refroidissement.

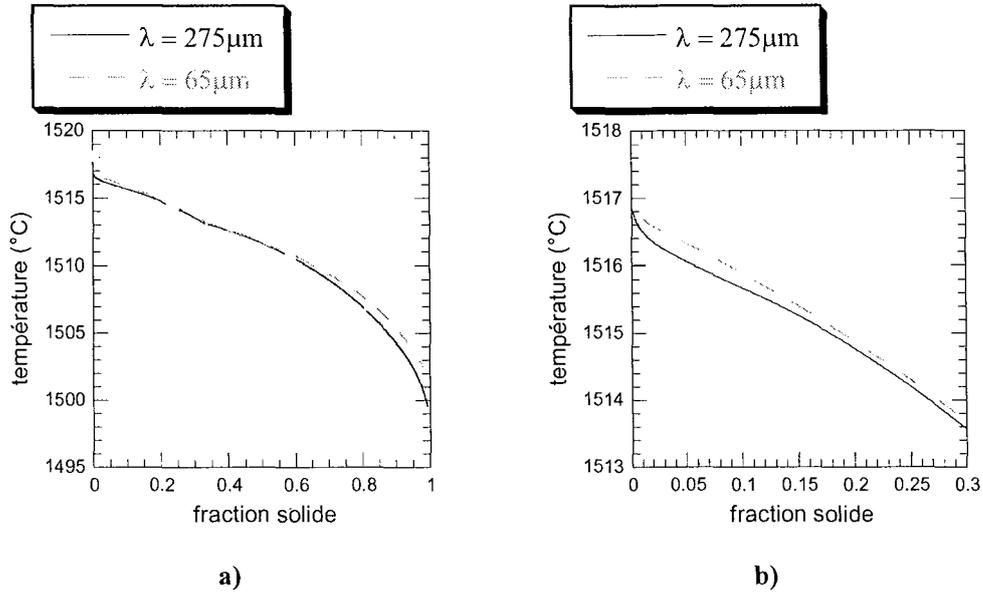


Figure III-16 : a) comparaison des chemins de solidification obtenus pour les deux valeurs de λ . b) Agrandissement de la courbe précédente sur le début de la solidification.

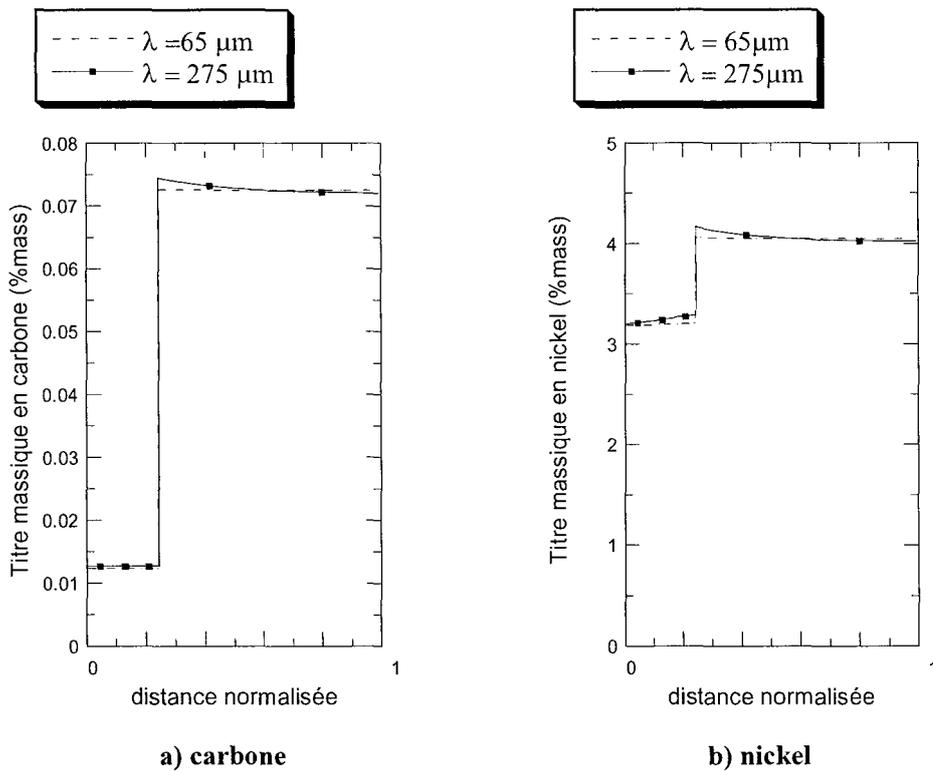


Figure III-17 : profils de solutés obtenus pour une fraction de solide déposée de 5%.

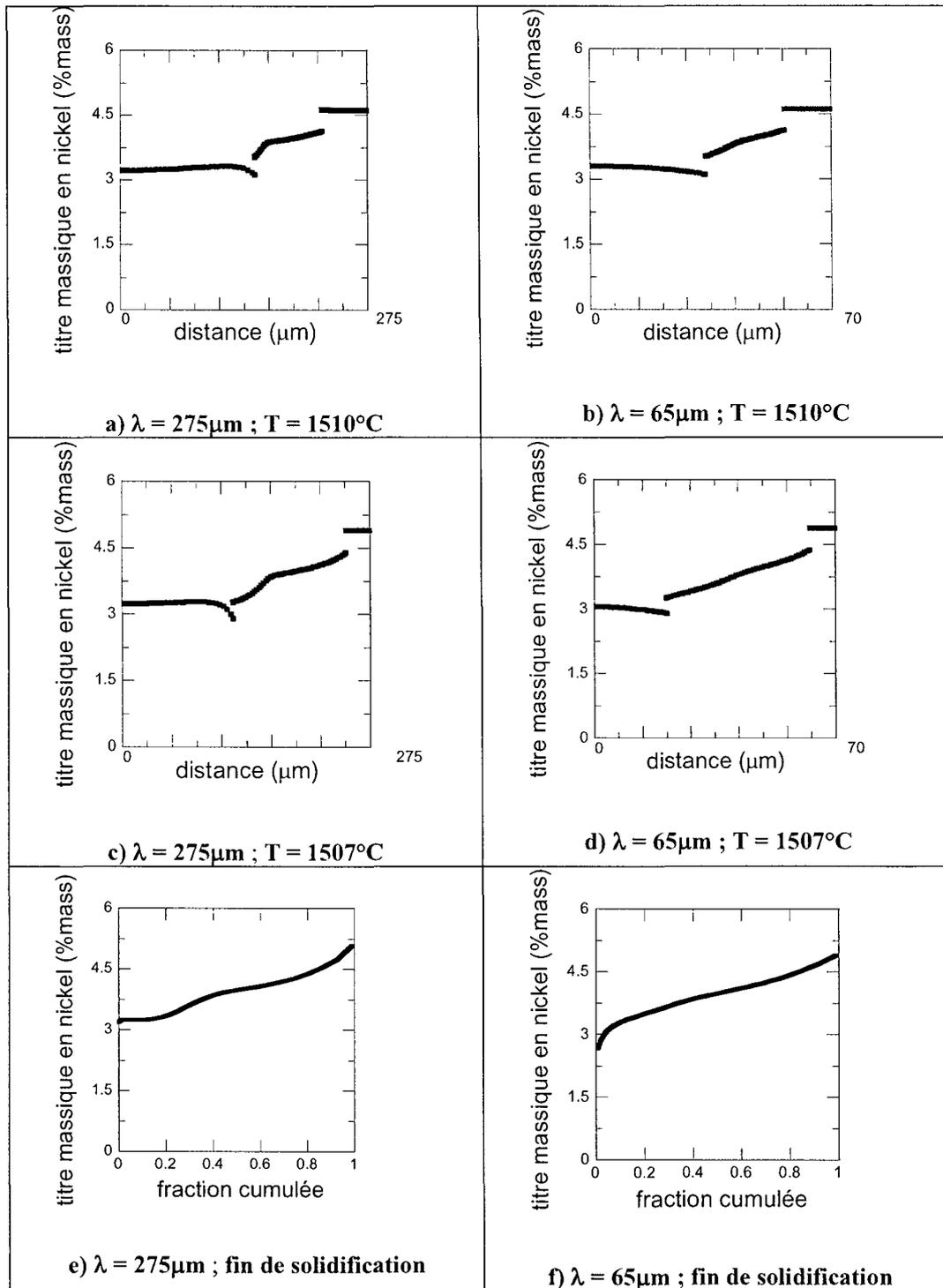


Figure III-18 : Profils linéiques en nickel pour $\lambda = 275\mu\text{m}$ (a et c) et pour $\lambda = 65\mu\text{m}$ (b et d) en cours de solidification. e, f) Profils cumulés en nickel obtenu en fin de solidification pour $\lambda = 275\mu\text{m}$ (e) et $\lambda = 65\mu\text{m}$ (f).

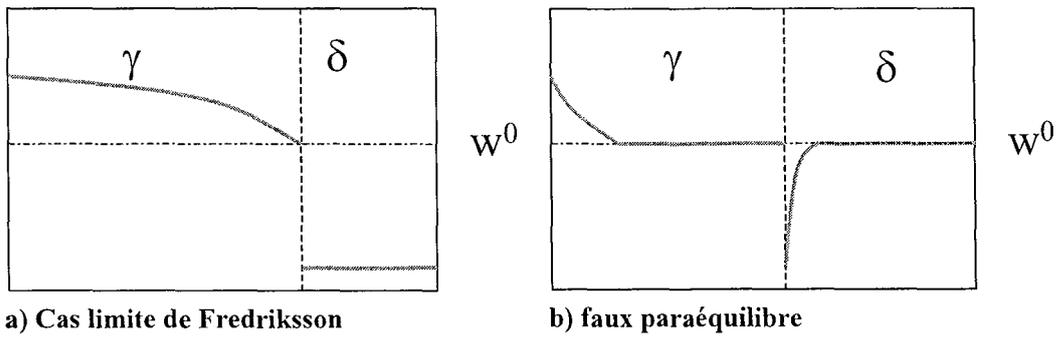


Figure III-19 : Etude de la régression de la ferrite en fonction de la diffusion du nickel dans les phases solides.

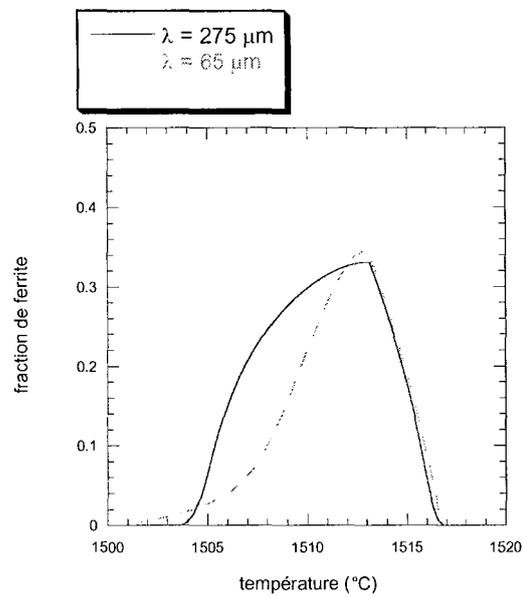


Figure III-20 : évolution de la fraction de ferrite au cours de la solidification pour $\lambda = 65\mu\text{m}$ et $\lambda = 275\mu\text{m}$

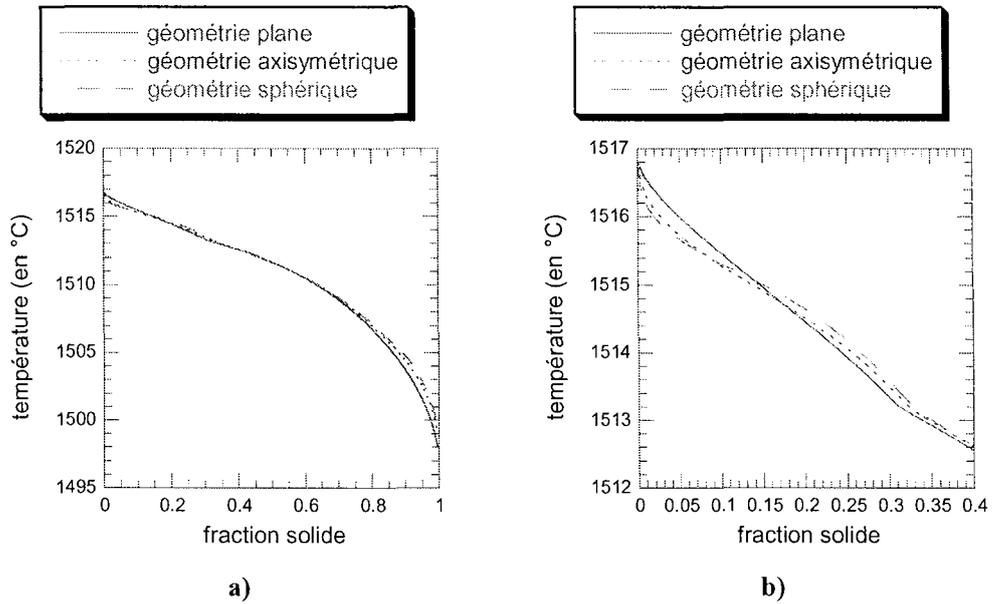


Figure III-21 : a) comparaison des chemins de solidification obtenus pour les différentes géométries b) Agrandissement de la courbe précédente sur le début de la solidification.

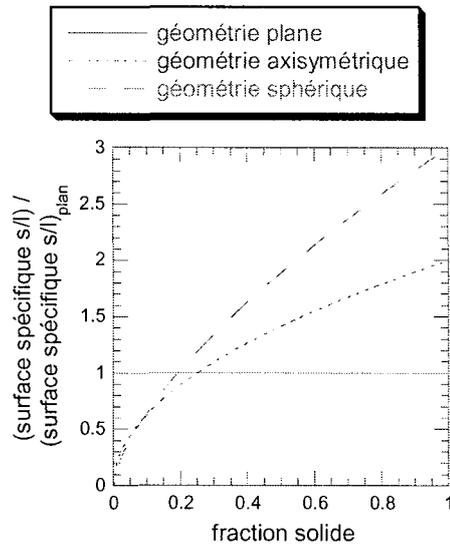


Figure III-22 : évolution de la surface spécifique de l'interface s/l en fonction de la fraction solide

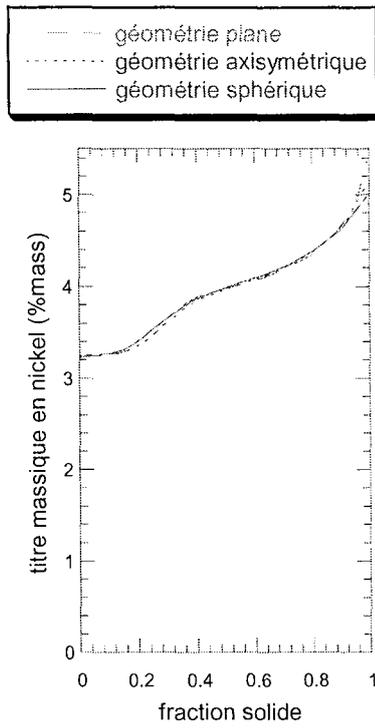


Figure III-23 : profils cumulés en nickel pour les trois géométries

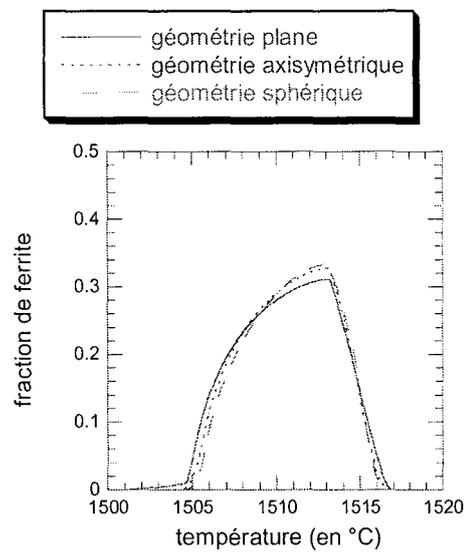


Figure III-24 : évolution de la fraction de ferrite au cours de la solidification

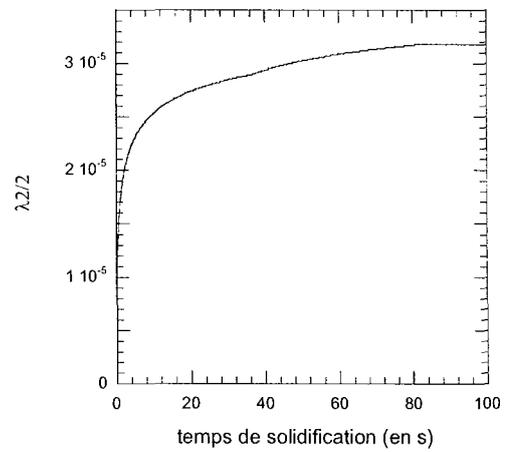


Figure III-25 : évolution de la taille du domaine de microségrégation λ au cours de la solidification

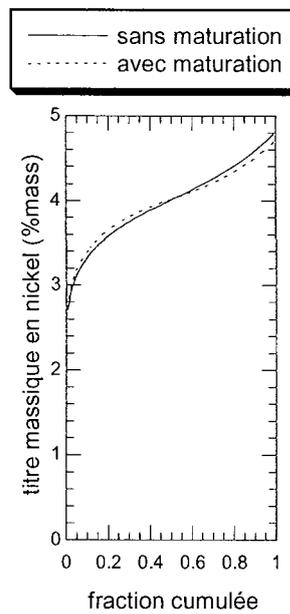


Figure III-26 : profils cumulés calculés avec et sans maturation

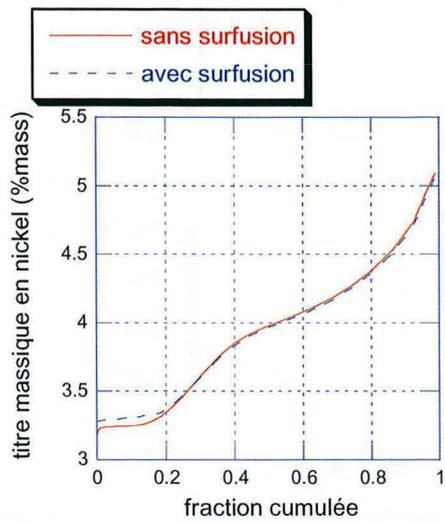


Figure III-27 : Courbe de ségrégation finale obtenue avec et sans surfusion à la pointe

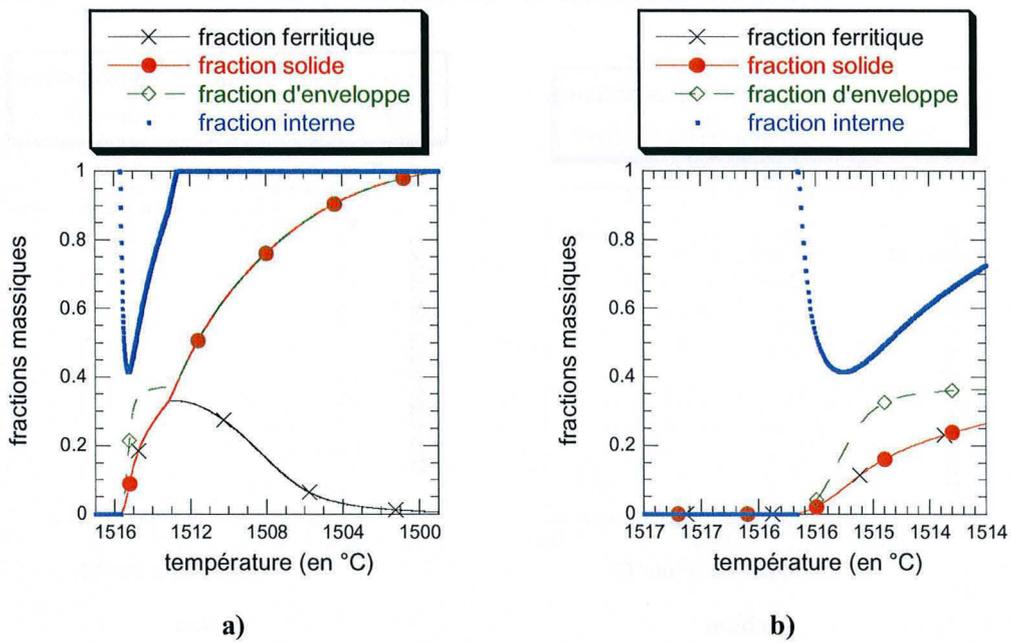


Figure III-28 : évolutions de la fraction ferritique, de la fraction solide, de la fraction interne de solide et de la fraction de l'enveloppe au cours de la solidification

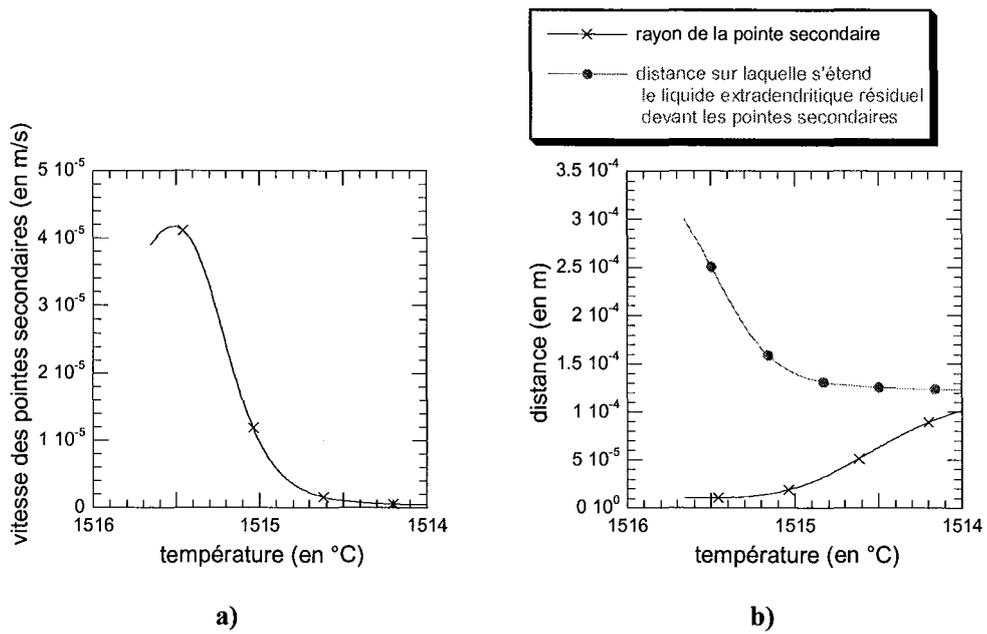


Figure III-29 : évolution en début de solidification a) de la vitesse des pointes secondaires de dendrites et b) du rayon de la pointe secondaire de dendrite comparé à la distance sur laquelle s'étend le liquide extradendritique devant les pointes secondaires

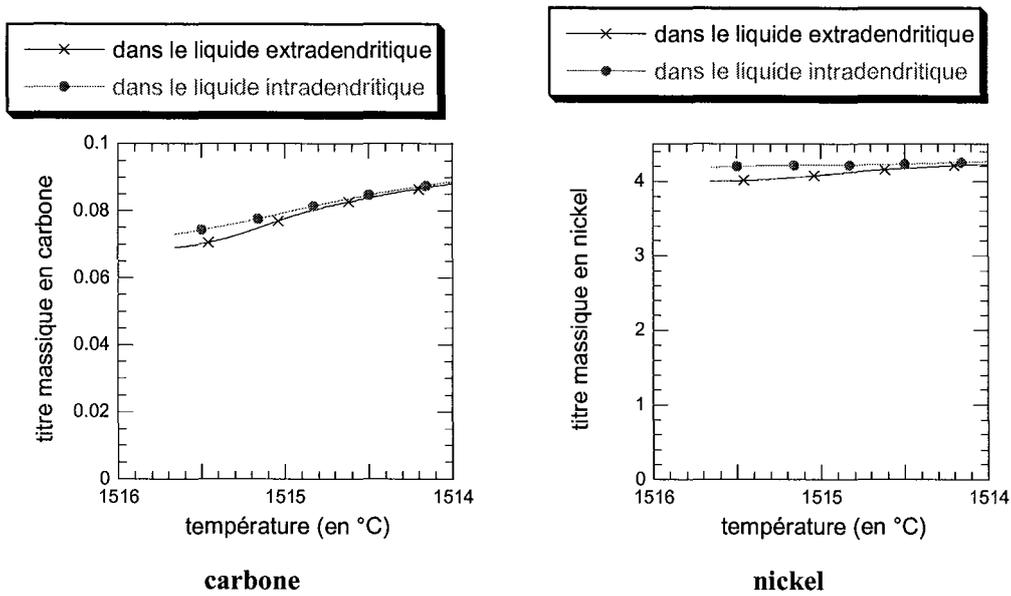


Figure III-30 : évolution des titres massiques dans le liquide intradendritique et extradendritique au début de la solidification

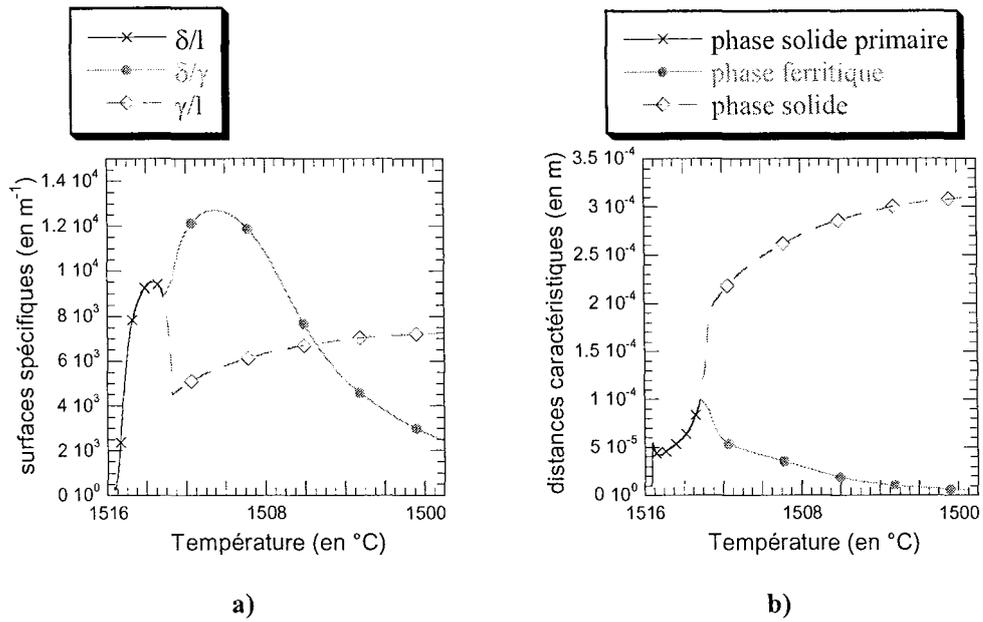


Figure III-31 : évolution en cours de solidification a) des surfaces spécifiques relatives à chaque interface et b) des distances caractéristiques relatives à chaque phase

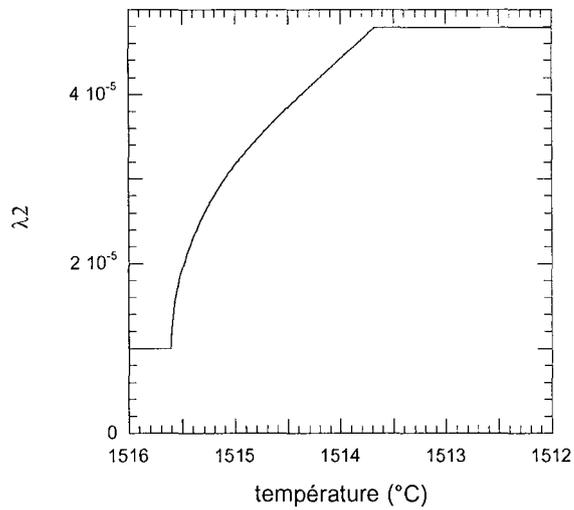


Figure III-32 : évolution de la distance entre bras secondaires de dendrite au cours de la solidification

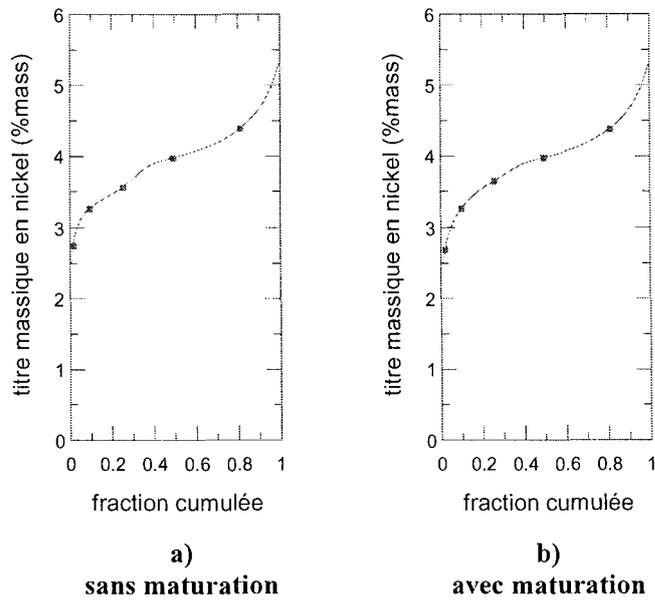


Figure III-33 : profils cumulés obtenus en fin de solidification avec le modèle à morphologie complexe

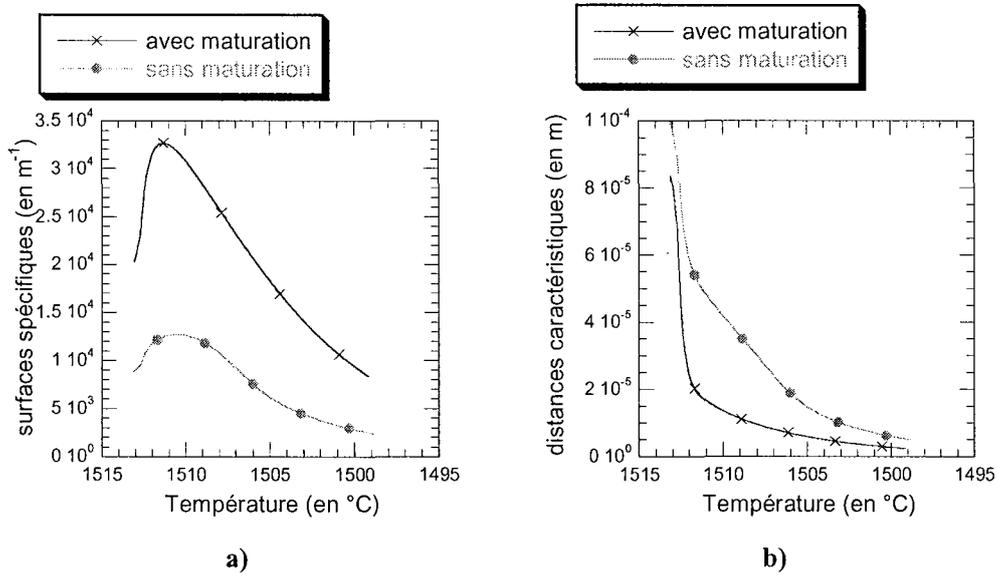


Figure III-34 : évolution au cours de la transformation péritectique de a) la surface spécifique $S_v^{\delta/\gamma}$ et b) de la distance caractéristique r^δ .

Chapitre IV

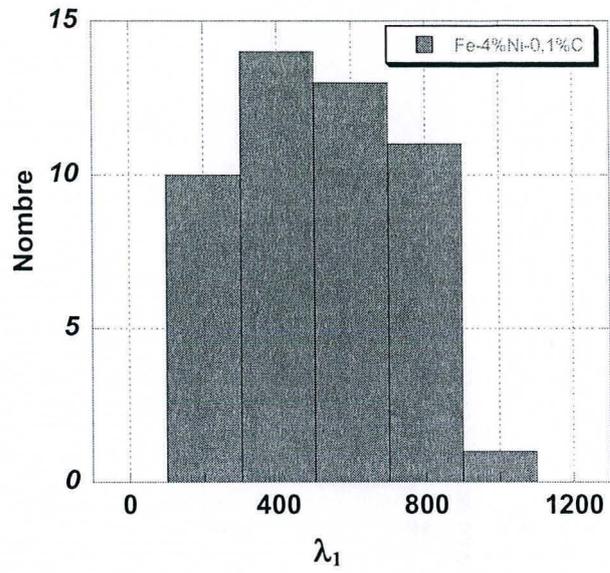


Figure IV-1 : distribution de la distance entre bras primaire de dendrites obtenue sur l'alliage 2 en fin de solidification dirigée

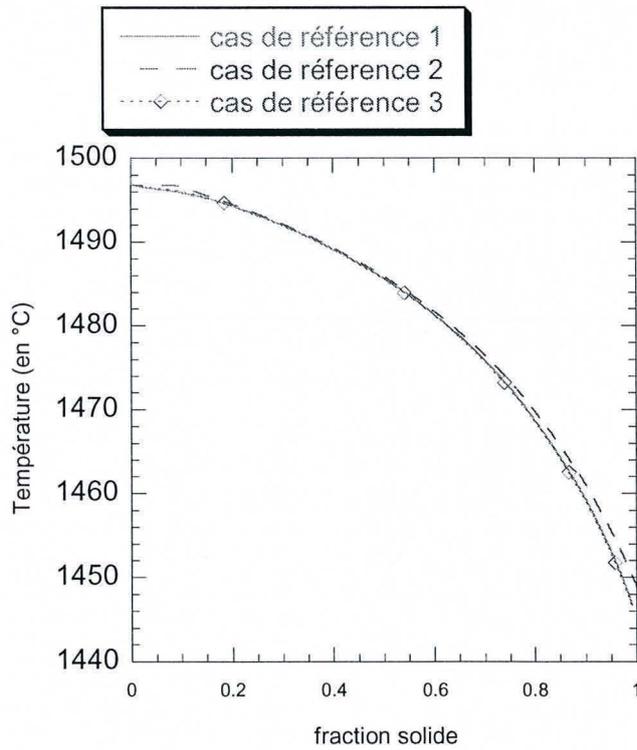


Figure IV-2 : chemins de solidification obtenus sur les trois cas de référence

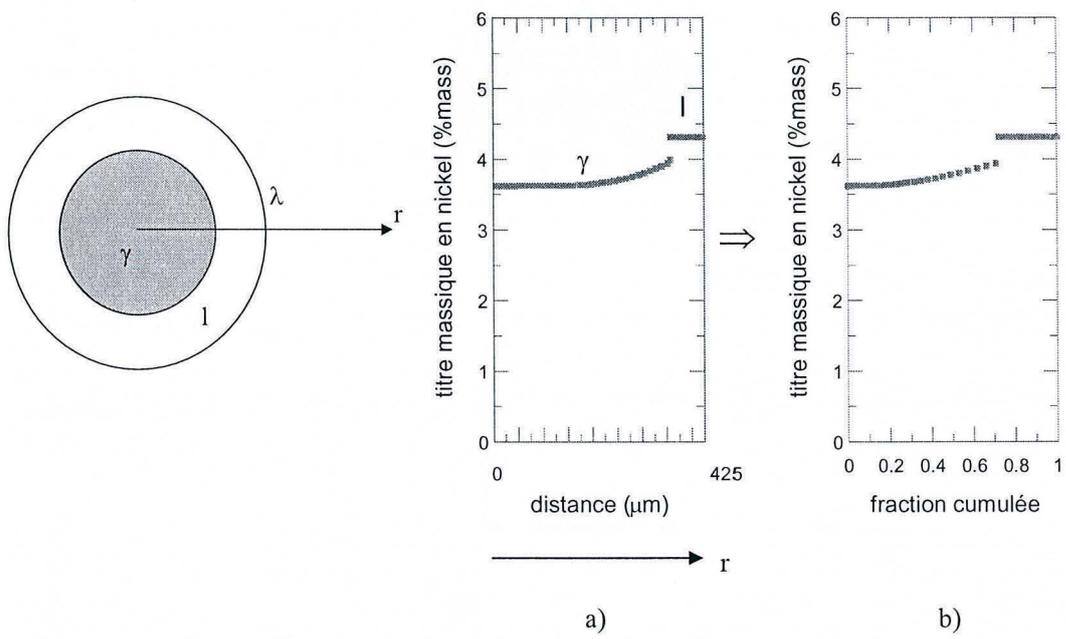


Figure IV-3 : Conversion a) du profil linéique de composition en b) une courbe de fraction cumulée pour le cas de référence 1.

Critère de comparaison entre modèle et expérience : les profils cumulés sont représentés pour une même fraction solide $f^S = 70\%$

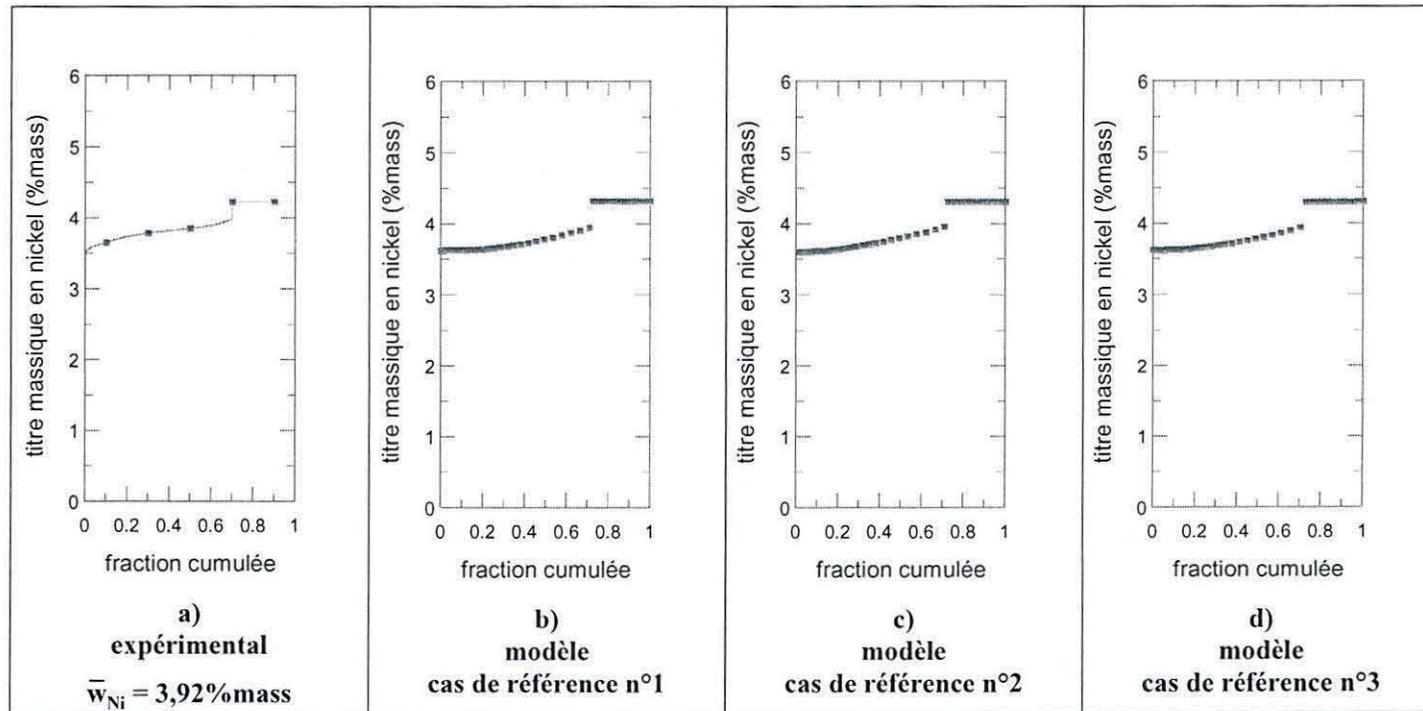


Figure IV-4 : profils cumulés du titre massique en nickel simulés et obtenu expérimentalement à partir d'une trempe en cours de solidification dirigée de l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C. La fraction résiduelle de liquide est de 30%.

Critère de comparaison entre modèle et expérience : les profils cumulés sont représentés pour une même fraction solide $f^S = 80\%$

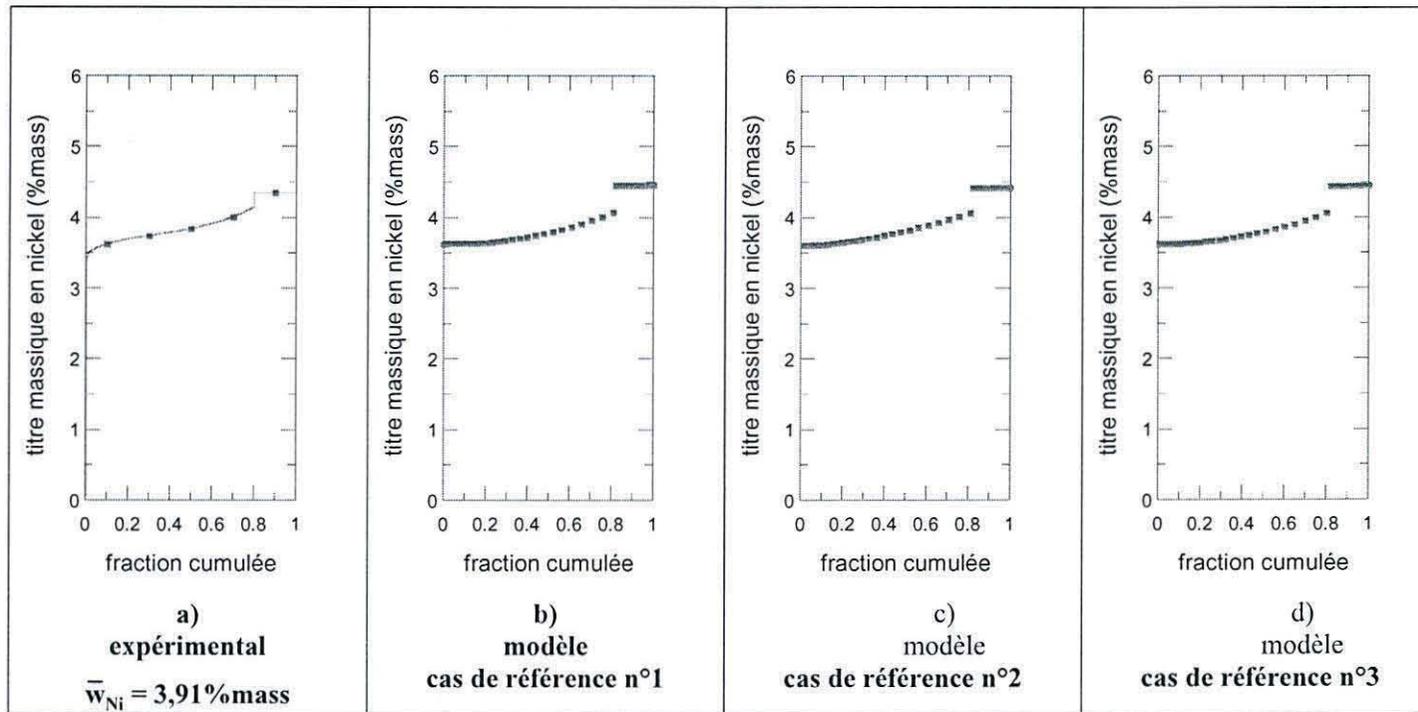


Figure IV-5 : profils cumulés du titre massique en nickel simulés et obtenu expérimentalement à partir d'une trempe en cours de solidification dirigée de l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C. La fraction résiduelle de liquide est de 20%.

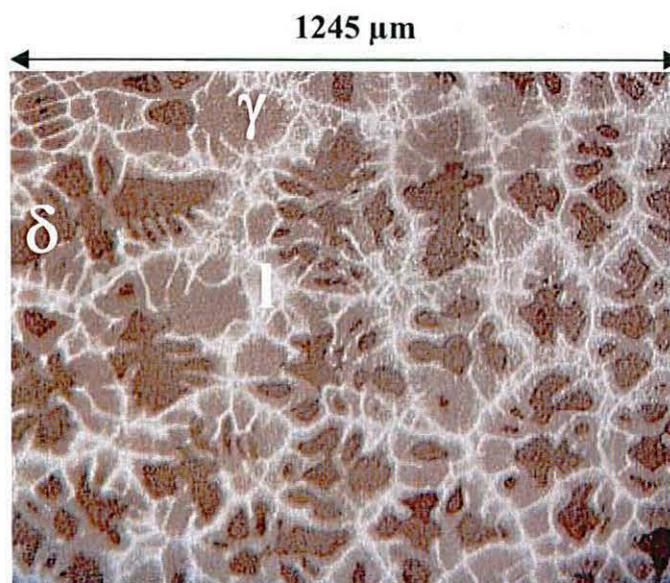
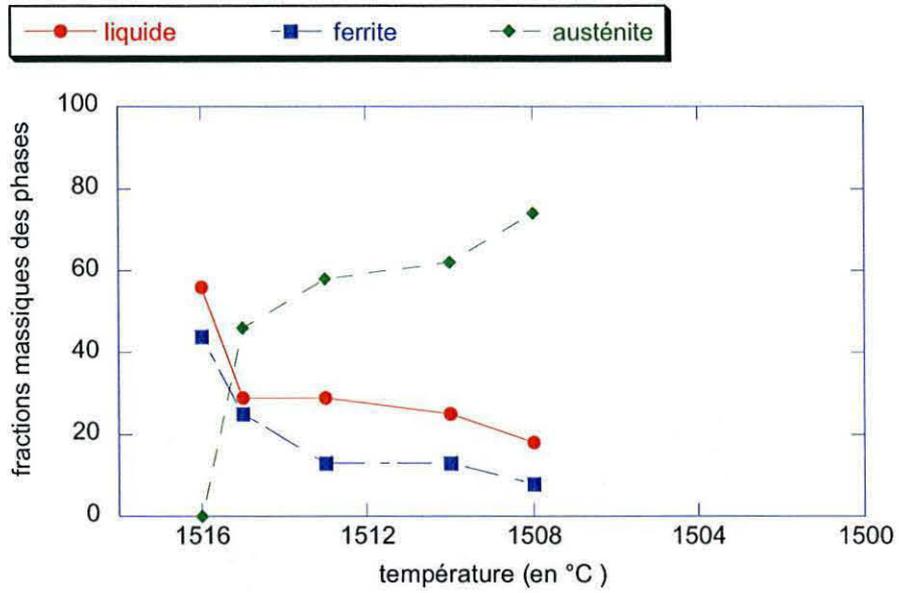
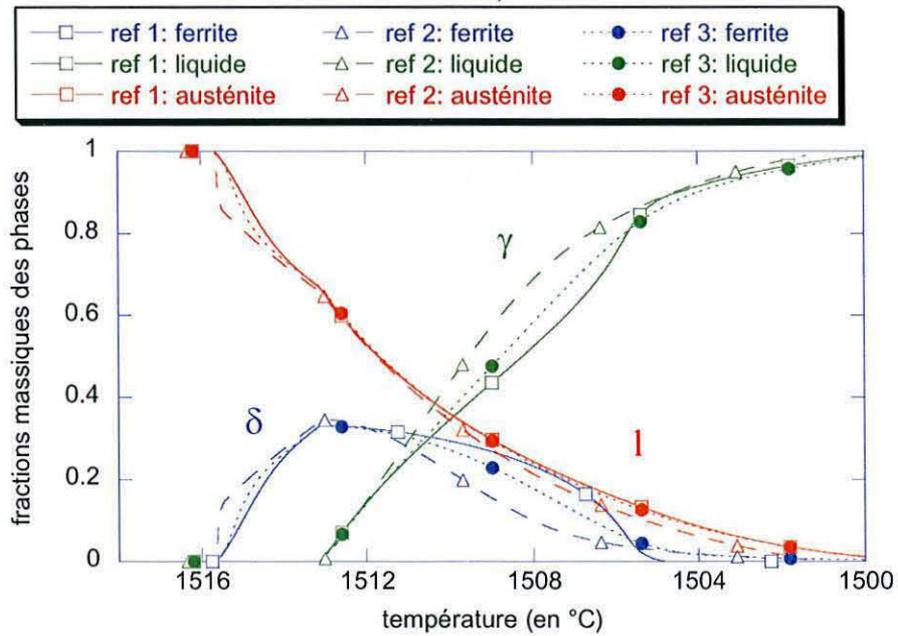


Figure IV-6 : zone d'une coupe transversale d'un barreau de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C trempé en cours de solidification dirigée pendant la transformation péritectique obtenu par Addad.



a)



b)

Figure IV-7 : a) Evolution en cours de solidification des fractions de phase mesurées par Addad et b) évolutions en cours de solidification des fractions de phases calculées dans les 3 cas de référence.

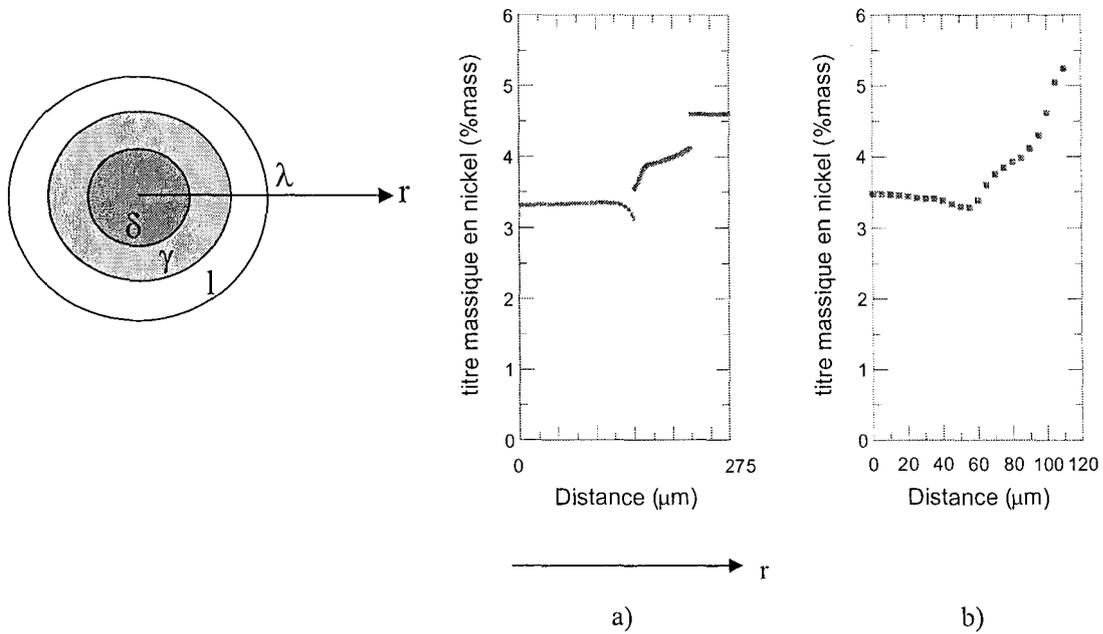


Figure IV-8 : a) profil calculé par le modèle à morphologie simplifiée en assumant une géométrie axisymétrique et $\lambda = \lambda_1/2$, b) profil expérimentalement mesuré par Addad.

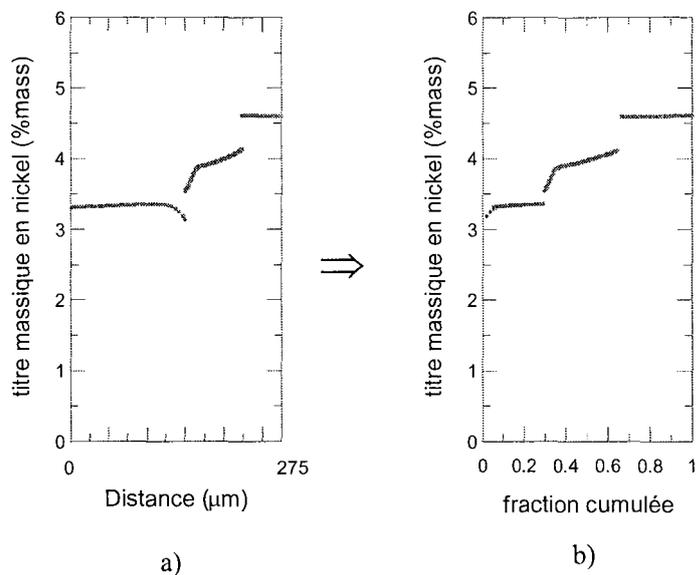


Figure IV-9 : Conversion a) du profil de composition en b) une courbe de fraction cumulée selon la méthode donnée dans le chapitre II.

Critère de comparaison entre modèle et expérience : les profils cumulés sont représentés pour une même fraction solide $f^s = 65\%$

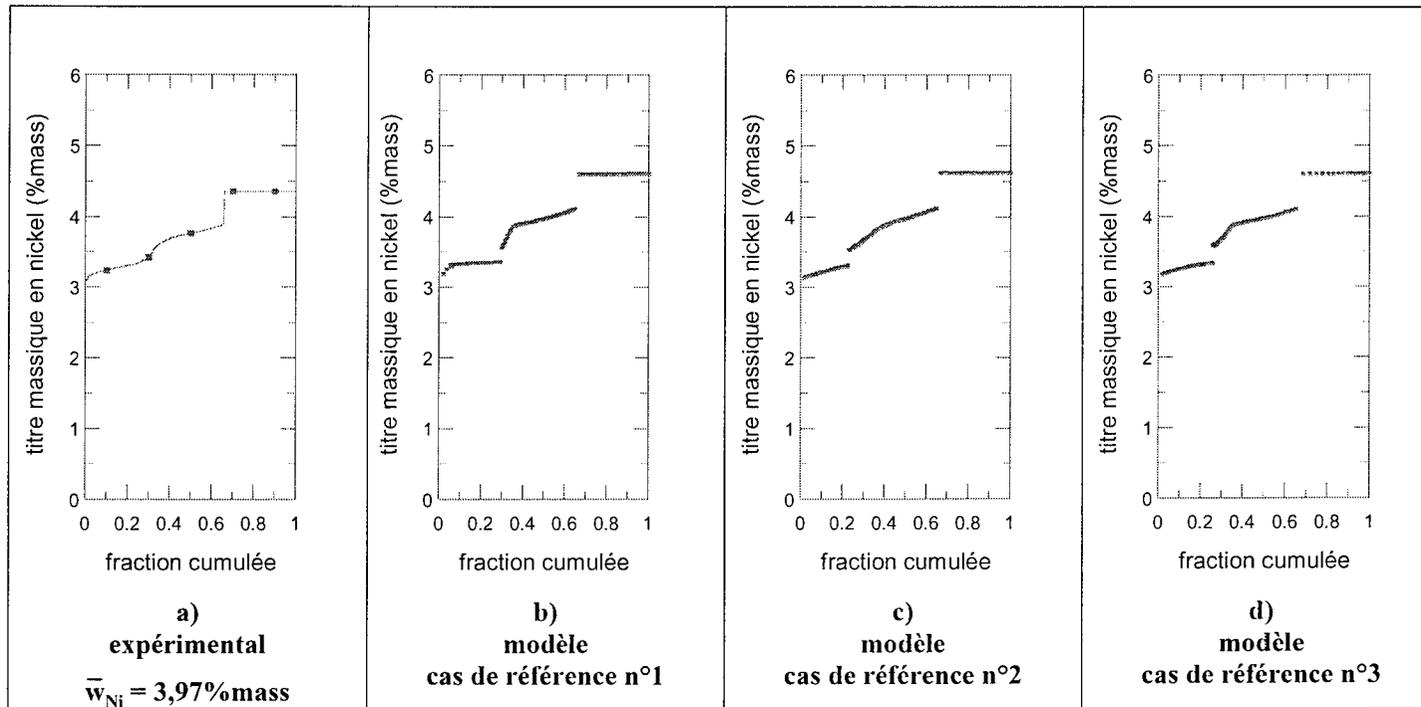


Figure IV-10 : profils cumulés du titre massique en nickel simulés et obtenu expérimentalement à partir d'une trempe en cours de solidification dirigée de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. La fraction résiduelle de liquide est de 35%.

Critère de comparaison entre modèle et expérience : les profils cumulés sont représentés pour une même fraction solide $f^S = 80\%$

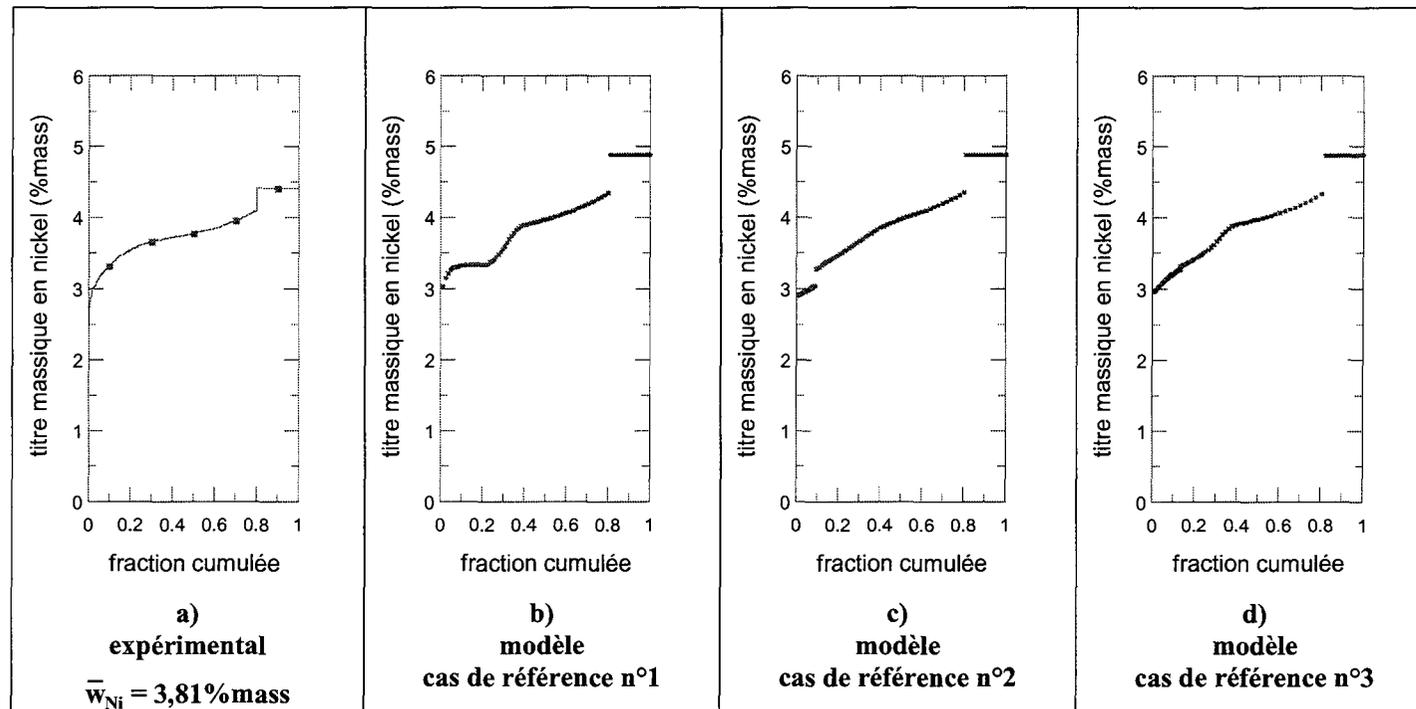


Figure IV-11 : profils cumulés du titre massique en nickel simulés et obtenu expérimentalement à partir d'une trempe en cours de solidification dirigée de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. La fraction résiduelle de liquide est de 20%.

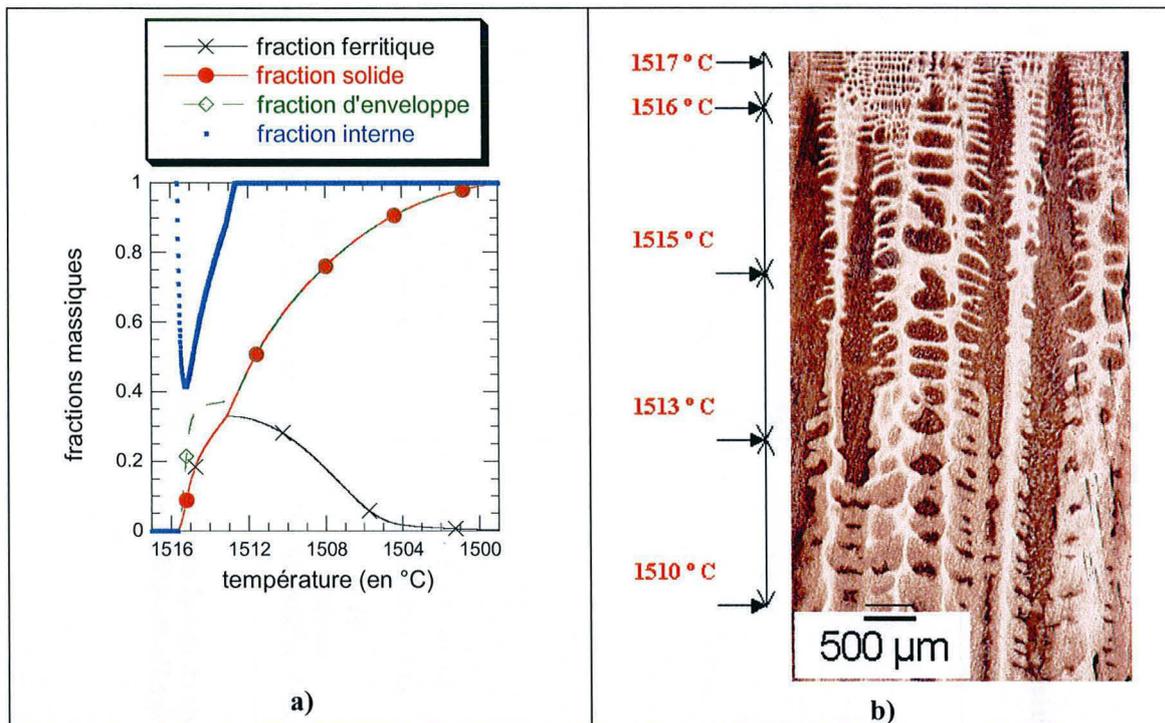


Figure IV-12 : a) Evolutions de la fraction ferritique, de la fraction solide, de la fraction interne de solide et de la fraction de l'enveloppe calculées pour le cas de référence n°3 au cours de la solidification. b) Coupe longitudinale obtenue à partir d'un essai de TSD sur l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C.

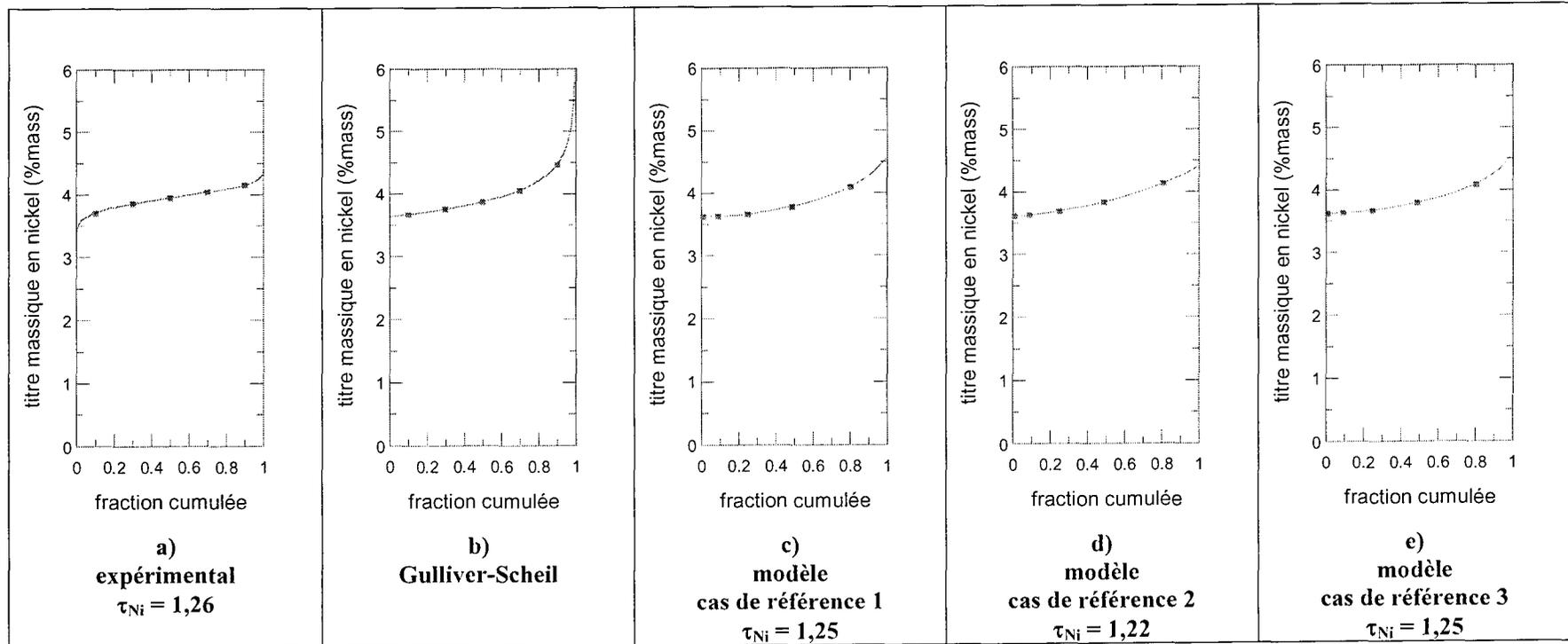


Figure IV-13 : a) Profils cumulés finaux a) expérimental, b) calculé par la loi de Gulliver-Scheil, et c, d et e) obtenus par le modèle pour les trois cas de référence.

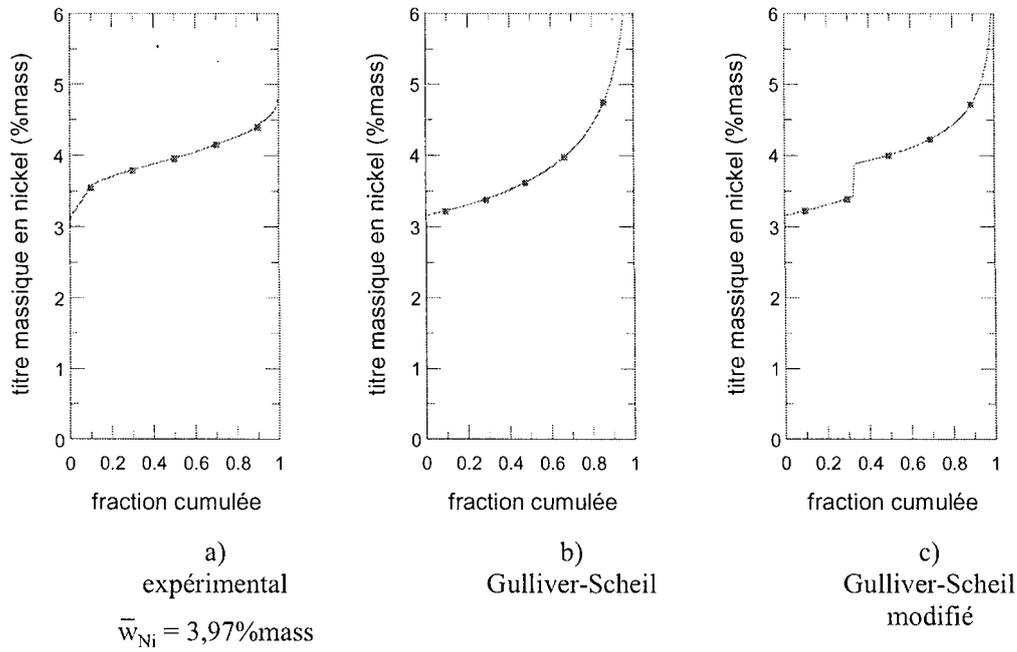


Figure IV-14 : a) Profil cumulé expérimental en nickel obtenu en fin de solidification dirigée. b) Profil cumulé en fin de solidification modélisé avec la loi de Gulliver-Scheil. c) Profil cumulé en fin de solidification modélisé avec la loi de Gulliver-Scheil modifiée.

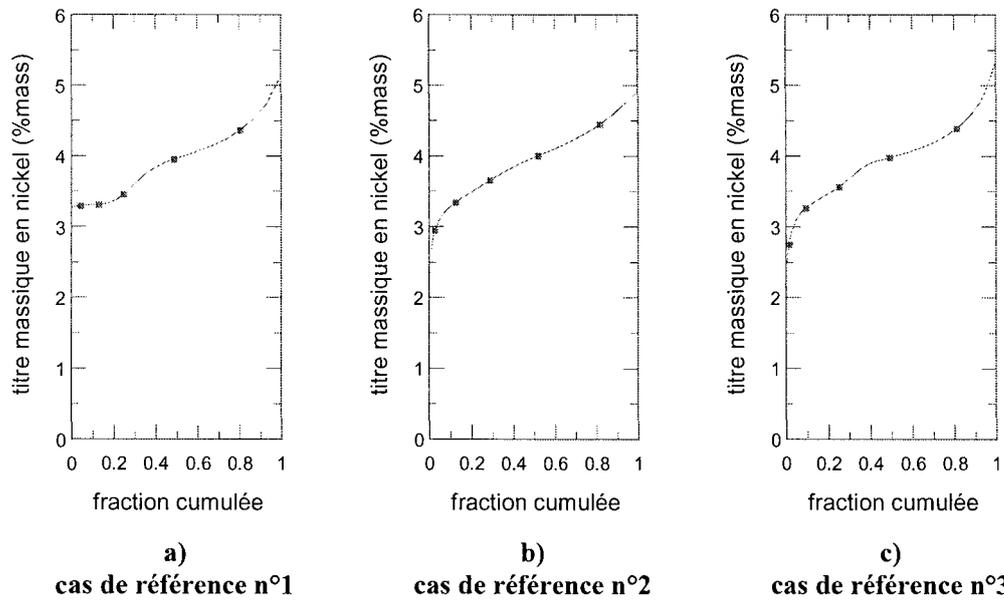


Figure IV-15 : profils cumulés du titre massique en nickel en fin de solidification calculés pour les trois cas de référence.

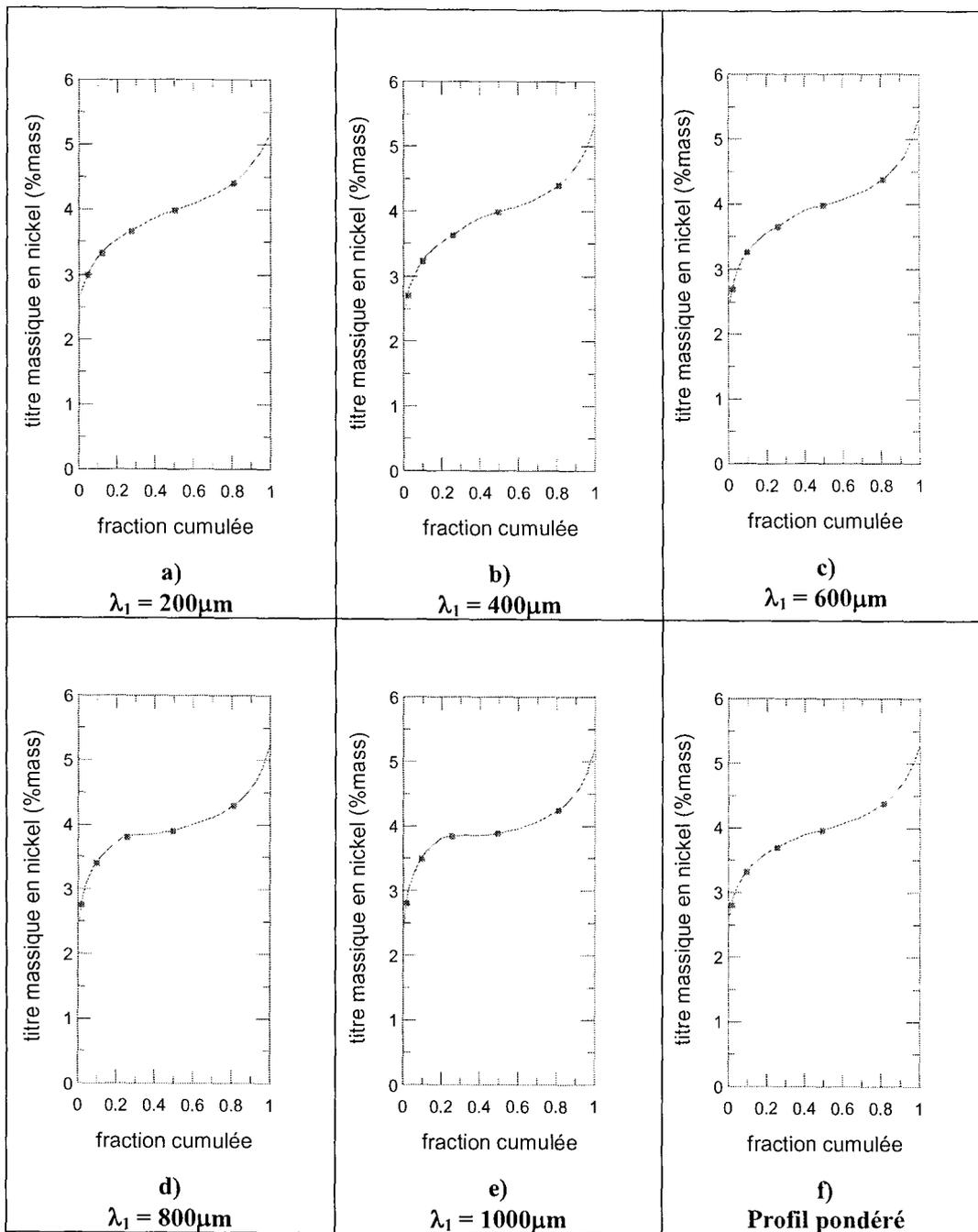


Figure IV-16 : a, b, c, d et e) Profils cumulés en fin de solidification dirigée calculés pour différentes zones d'une coupe transversale d'un barreau $\phi 20$ où λ_1 est uniforme. f) Profil pondéré.

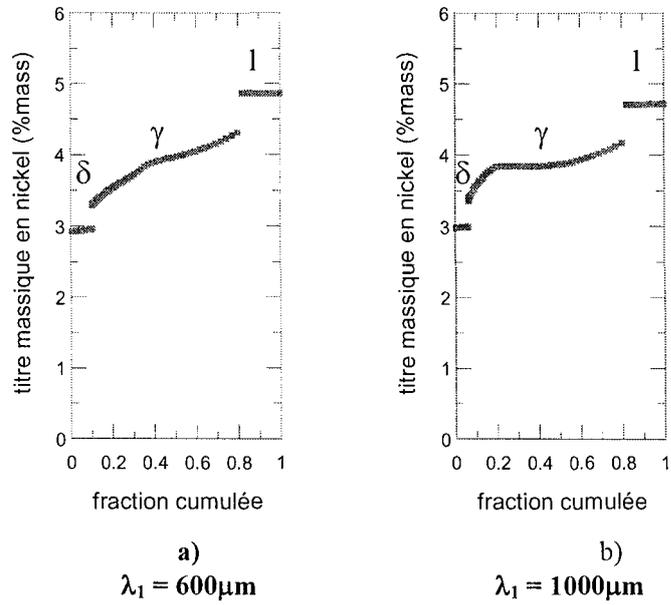


Figure IV-17 : profils cumulés du titre massique en nickel calculés pour deux valeurs différentes de λ_1 en cours de solidification. La fraction de liquide résiduel est de 20%.

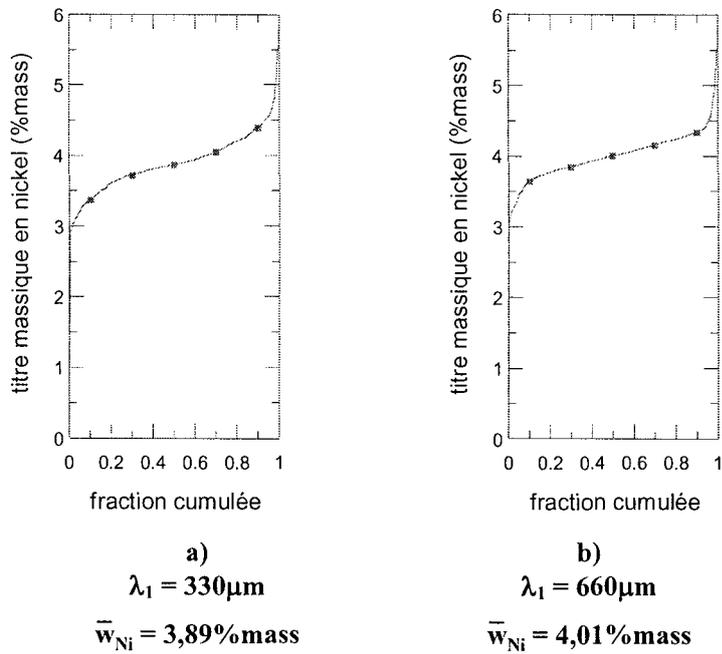


Figure IV-18 : profils cumulés expérimentaux mesurés en différentes zones d'une coupe transversale d'un barreau $\phi 20$ où λ_1 est uniforme

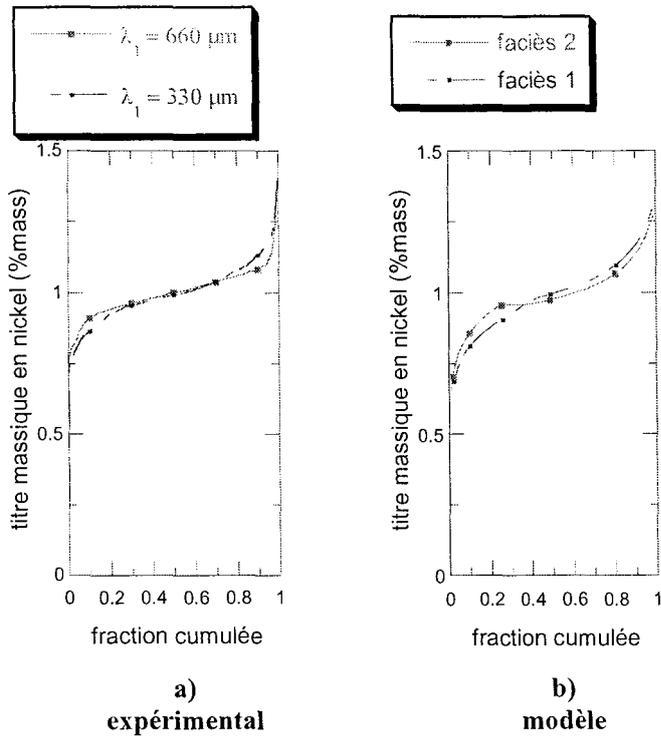


Figure IV-19 : effet de λ_1 sur les profils cumulés

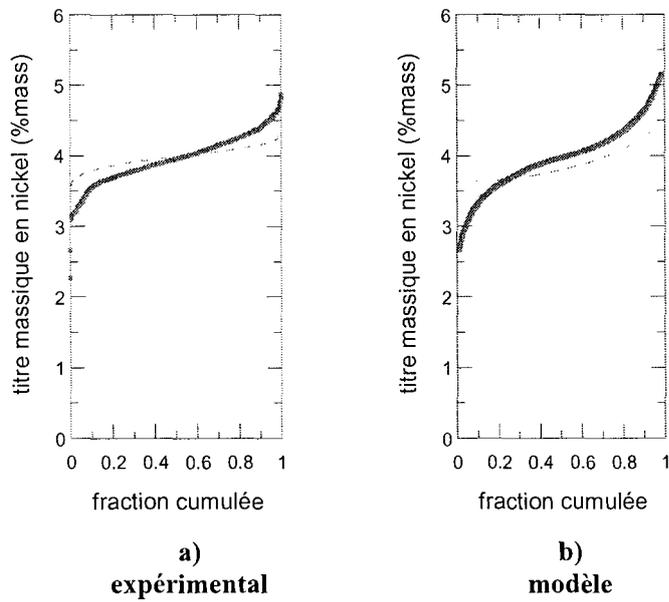


Figure IV-20 : a) profils cumulés expérimentaux en nickel pour l'alliage 1 (trait pointillé) et 2 (ligne continue) obtenue en fin de solidification dirigée. b) Profils cumulés en nickel prédits par le modèle pour l'alliage 1 (ligne pointillée) et 2 (ligne continue).

Chapitre V

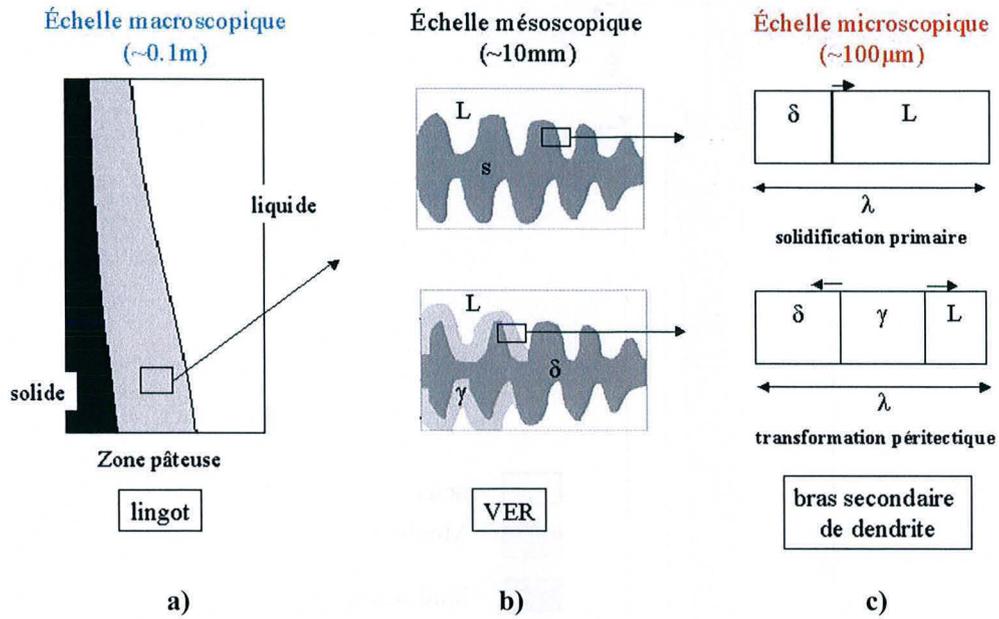


Figure V-1 : Distinction entre l'échelle microscopique et l'échelle macroscopique dans un lingot

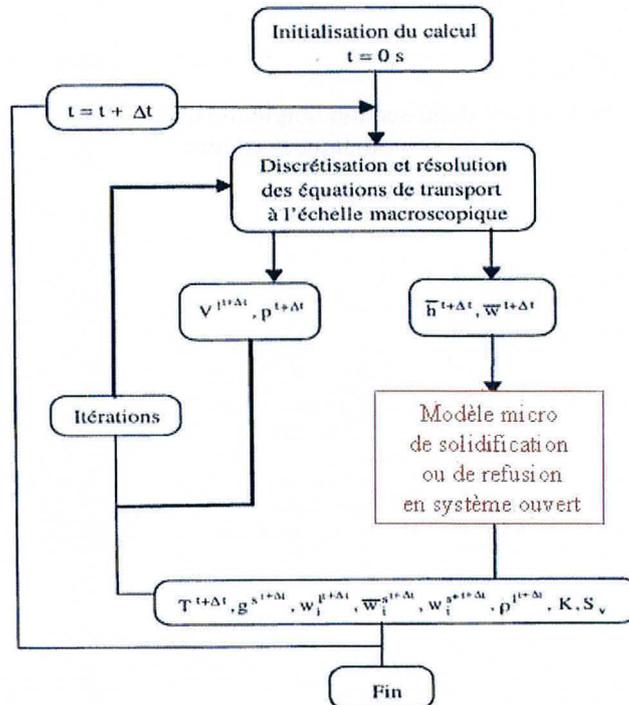


Figure V-2 : forme générale de l'algorithme de résolution micro-macro [93]

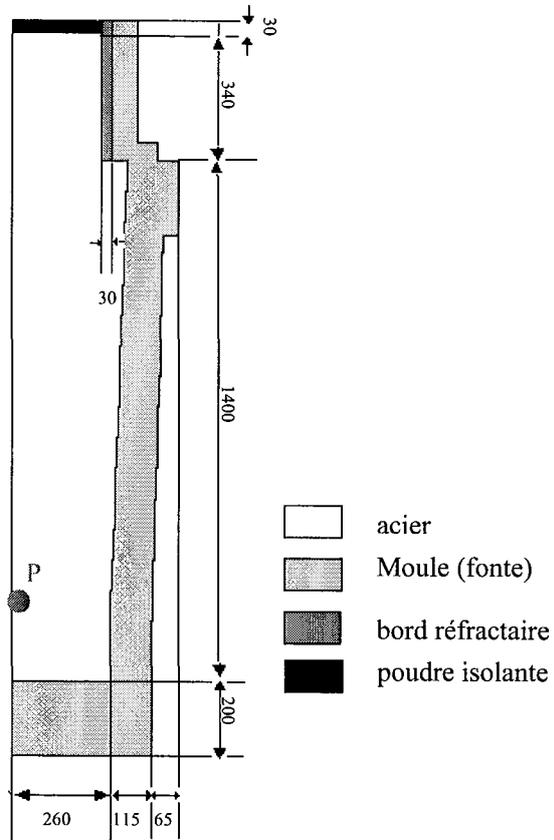
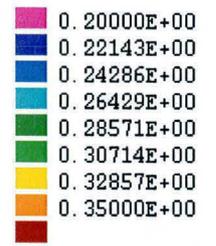


Figure V-3 : schéma d'une demi-section longitudinale du lingot simulé (les longueurs sont indiquées en mm)

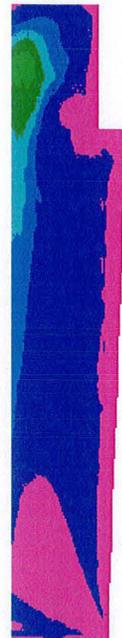


titre massique en
carbone

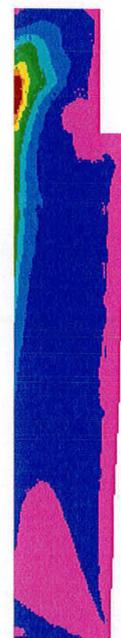
($w_c^0 = 0,2 \text{ \%mass}$)



a)



b)

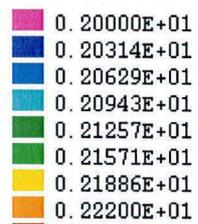


c)

$0,148 < w < 0,267$

$0,148 < w < 0,296$

$0,148 < w < 0,397$



titre massique en
nickel

($w_{Ni}^0 = 2 \text{ \%mass}$)



d)



e)



f)

$1,89 < w < 2,13$

$1,89 < w < 2,17$

$1,89 < w < 2,28$

Figure V-4 : cartes de macroségrégation en carbone a) à 3428s, b) à 4628s, c) en fin de solidification et cartes de macroségrégation en nickel d) à 3428s, e) à 4628s, f) en fin de solidification.

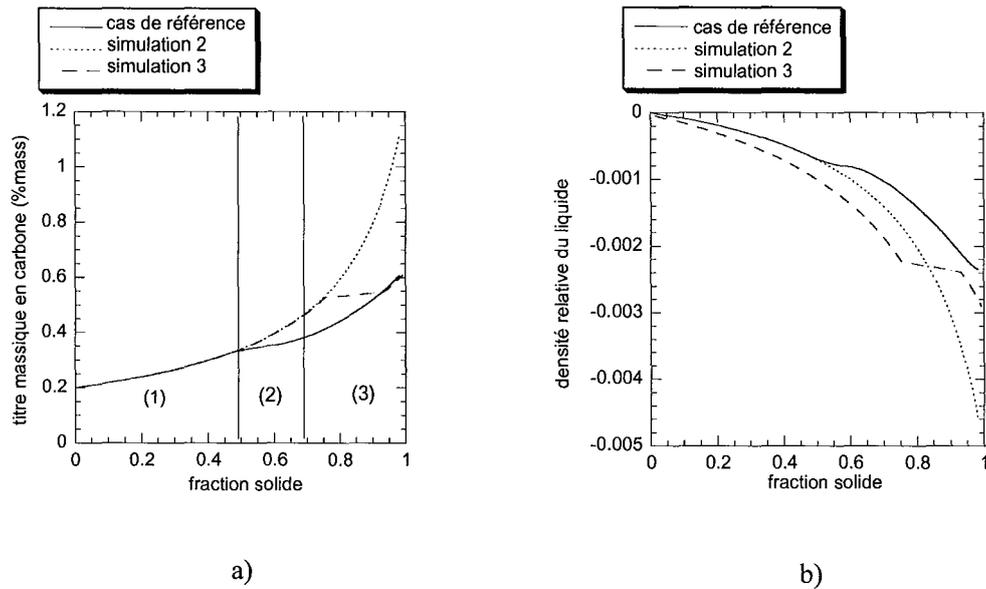
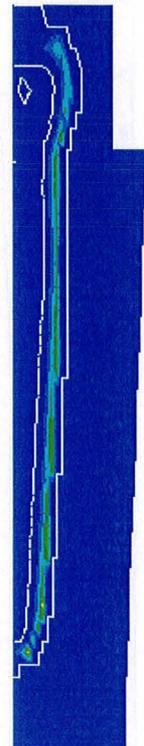
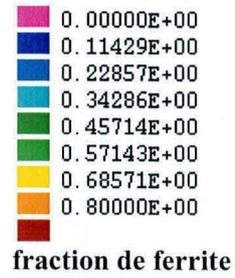
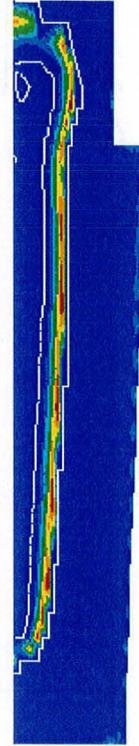


Figure V-5 : a) Evolution de la teneur en carbone dans le liquide durant la solidification prédite par le modèle de microségrégation dans le cas ternaire (ligne continue) et binaire (ligne pointillée). b) Evolution de la densité relative du liquide dans la zone pâteuse calculée à partir du chemin de solidification obtenu par le modèle microscopique dans le cas ternaire (ligne continue) et binaire (ligne pointillée).



$0 < f^{\delta} < 0,48$



a)

$0 < f^{\delta} < 0,79$

b)

Figure V-6 : fraction de ferrite à $t = 3428s$ a) pour l'alliage ternaire Fe-2%Ni-0,2%C et b) pour l'alliage binaire Fe-0,2%C.

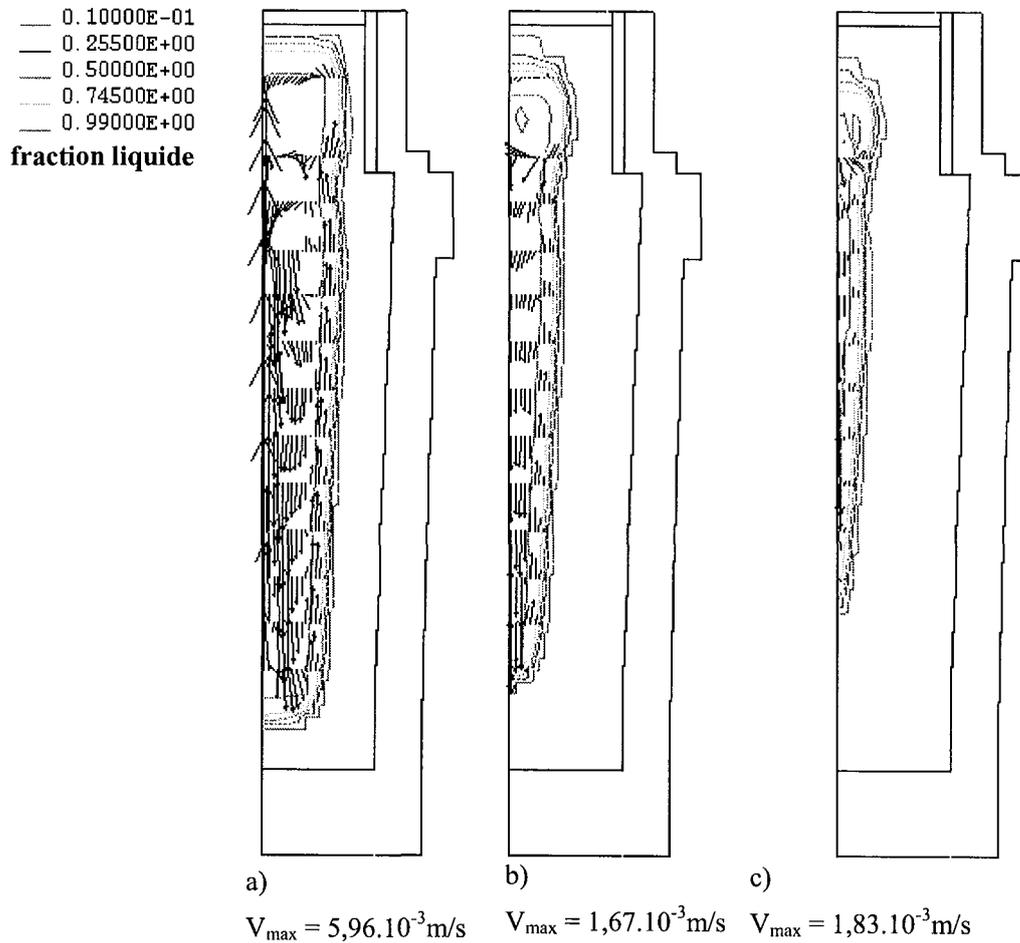


Figure V-7 : représentation des champs de vitesse de l'acier liquide en cours de solidification au temps a) $t = 1828\text{s}$, b) $t = 3428\text{s}$ et c) $t = 4628\text{s}$.

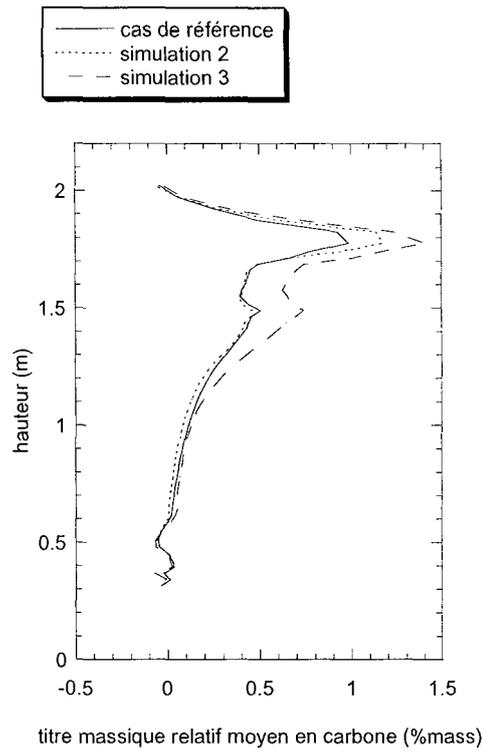


Figure V-8 : macroségrégation en carbone le long de l'axe vertical central du lingot à la fin de la solidification obtenue dans les trois simulations

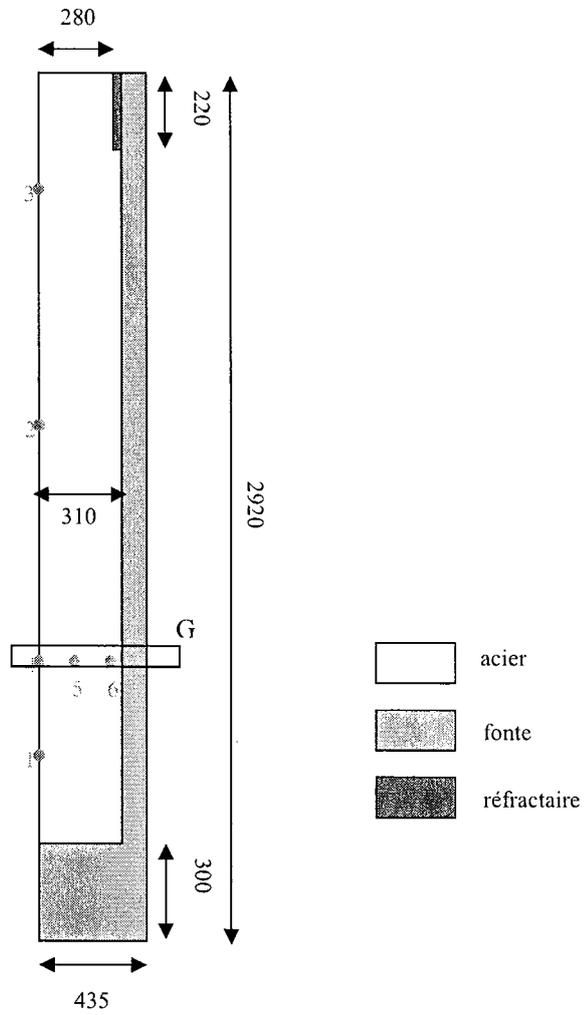


Figure V-9 : schéma d'une demi-section longitudinale du lingot Ascométal 6,2 tonnes (les longueurs sont indiquées en mm)

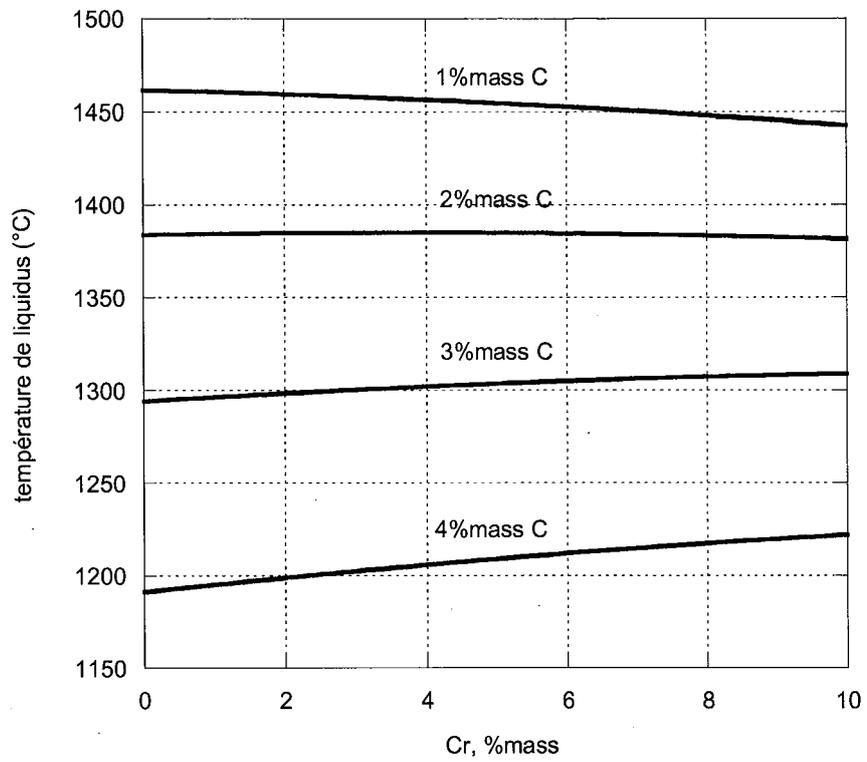
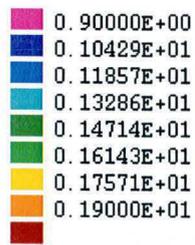


Figure V-10 : représentation de l'évolution de la température de liquidus austénitique en fonction du titre massique en Cr pour différentes concentrations en carbone.

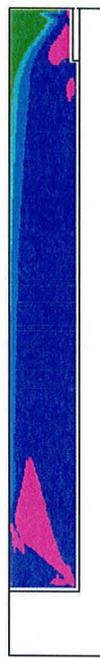


Titre massique en carbone (en %mass)

$(w_c^0 = 1,015 \text{ %mass})$



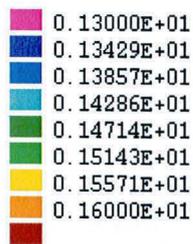
a) $0,74 < w < 1,25$



b) $0,74 < w < 1,67$

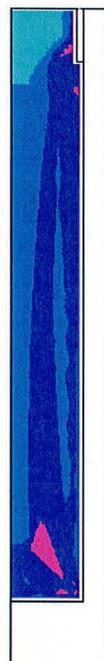


c) $0,74 < w < 2,5$

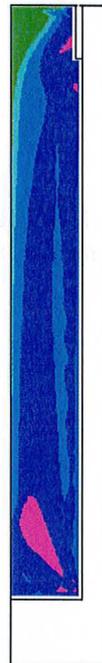


Titre massique en chrome (en %mass)

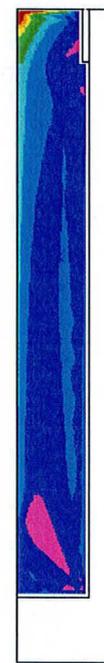
$(w_{Cr}^0 = 1,345 \text{ %mass})$



d) $1,27 < w < 1,41$



e) $1,27 < w < 1,52$



f) $1,27 < w < 1,74$

Figure V-11 : cartes de macroségrégation en carbone a) à 3055s, b) à 6169s, c) en fin de solidification et cartes de macroségrégation en chrome d) à 3055s, e) à 6169s, f) en fin de solidification.

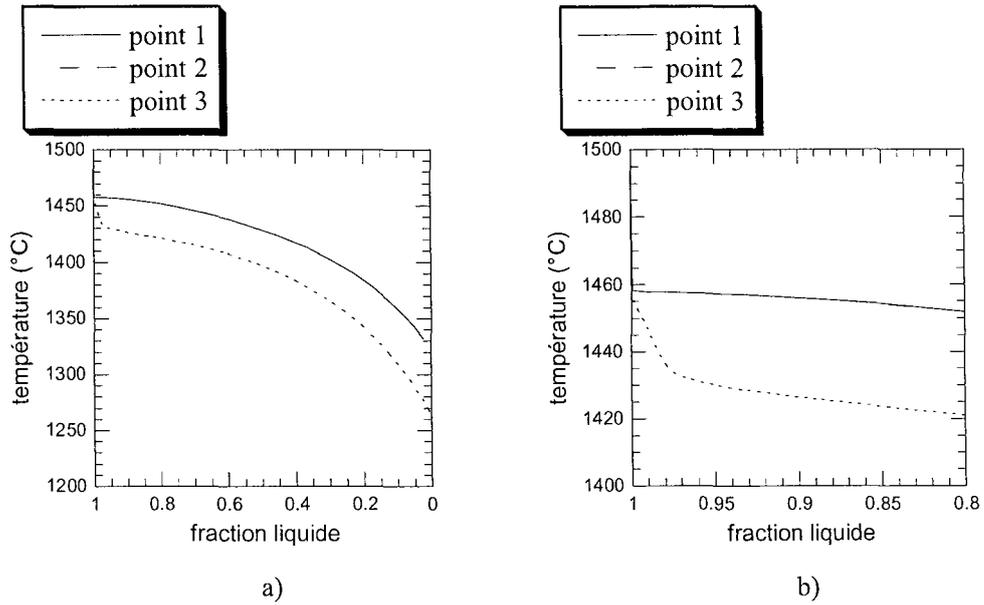


Figure V-12 : a) Chemin de solidification des points se situant sur l'axe central du lingot. b) Agrandissement de la courbe précédente sur le début de la solidification.

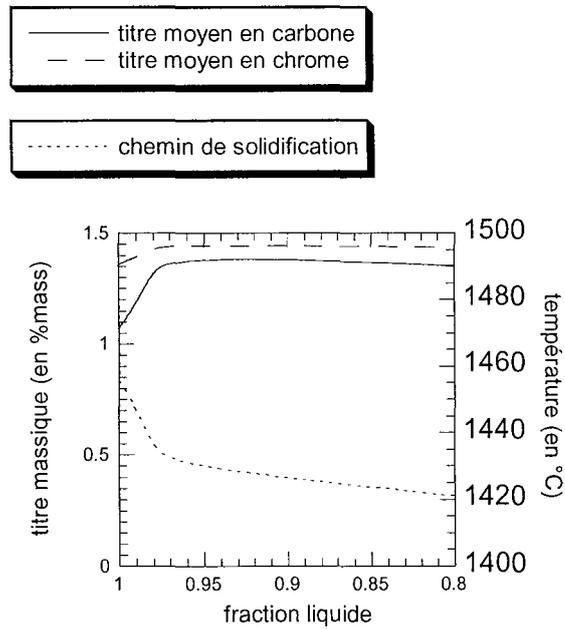
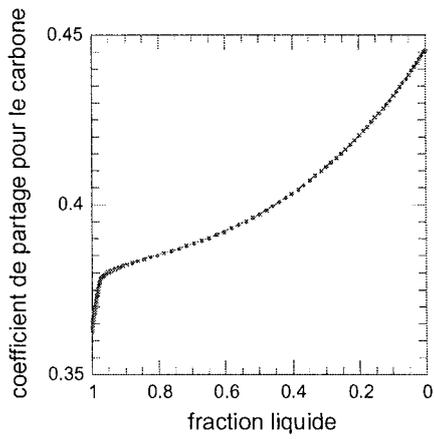
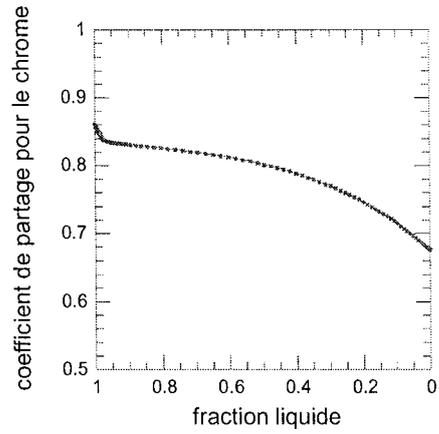


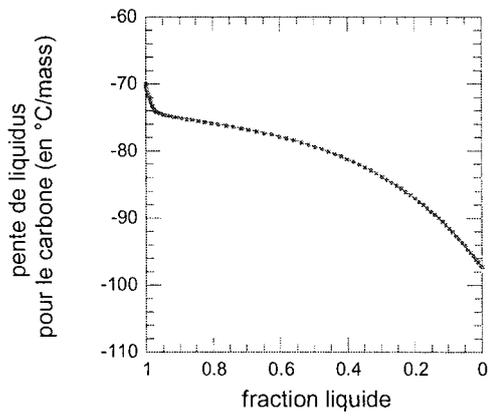
Figure V-13 : variation de la composition moyenne en carbone et en chrome au point 3 en début de solidification.



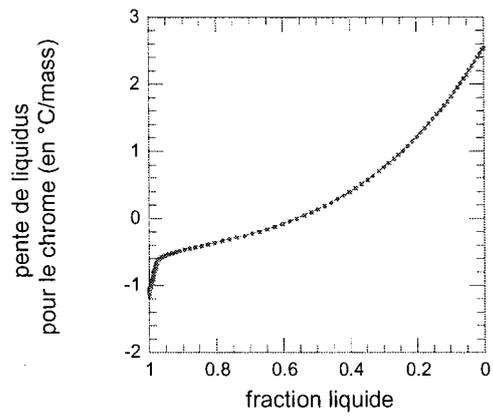
a) $k_c^{\gamma/l}$



b) $k_{Cr}^{\gamma/l}$



c) $m_c^{\gamma/l}$



d) $m_{Cr}^{\gamma/l}$

Figure V-14 : Evolution des coefficients de partage et des pentes de liquidus du chrome et du carbone en cours de solidification.

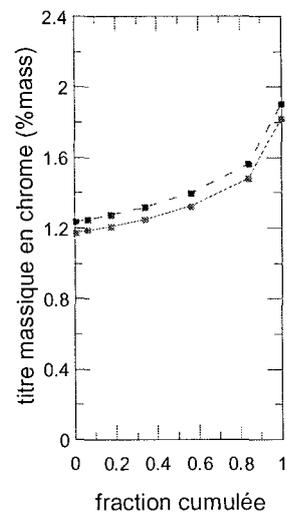


Figure V-15 : confrontation des profils cumulés en chrome en fin de solidification obtenus en tête (trait pointillé) et en pied de lingot (trait plein).

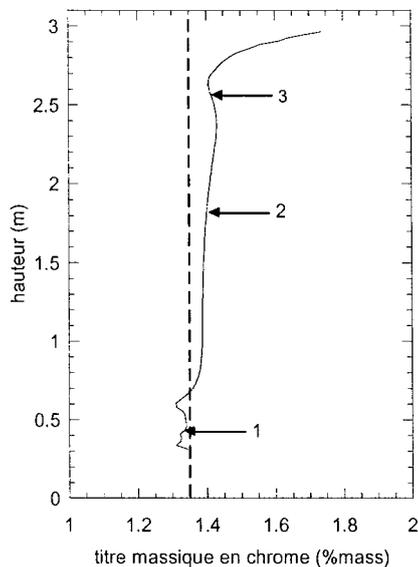
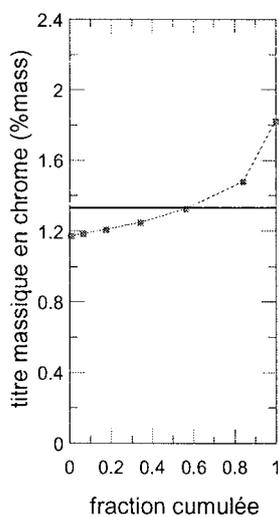
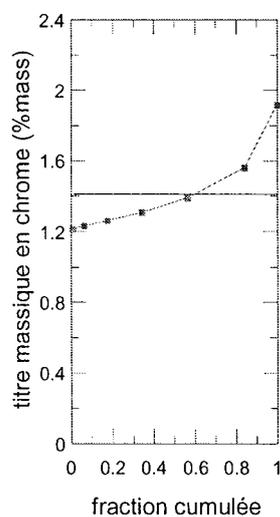


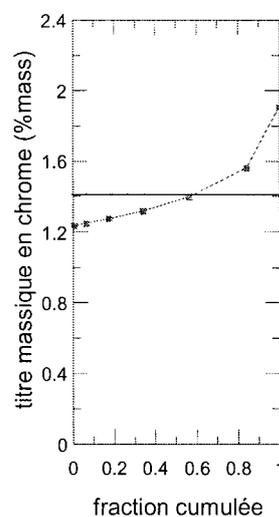
Figure V-16 : macroségrégation finale en chrome le long de l'axe vertical central du lingot. Le trait pointillé vertical indique la teneur nominale en chrome $w_{Cr}^0 = 1,345\%mass$.



a) Point 1
 $\bar{w}_{Cr} = 1,33\%mass$



b) Point 2
 $\bar{w}_{Cr} = 1,40\%mass$



c) Point 3
 $\bar{w}_{Cr} = 1,41\%mass$

Figure V-17 : profils cumulés de la microsegrégation en chrome en fonction de la hauteur du lingot. Le trait noir vertical indique la composition moyenne locale du chrome \bar{w}_{Cr} en chaque point d'analyse de la microsegrégation.

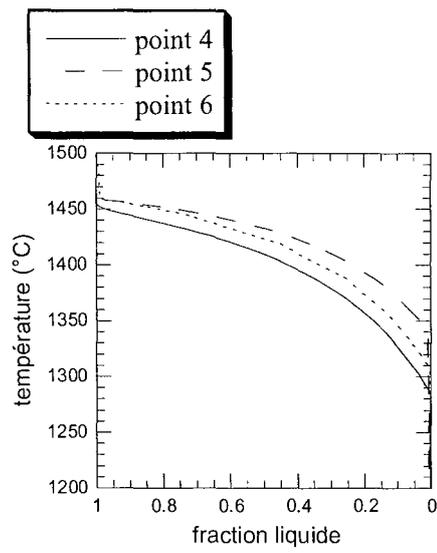


Figure V-18 : Chemin de solidification des points se situant dans la coupe G.

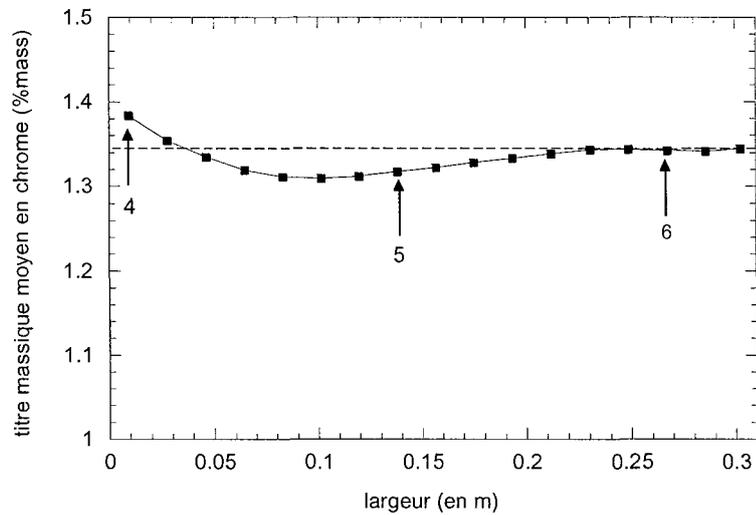


Figure V-19 : macroségrégation finale en chrome le long de l'axe longitudinal du lingot. Le trait pointillé horizontal indique la teneur nominale en chrome $w_{Cr}^0 = 1,345\%mass$.

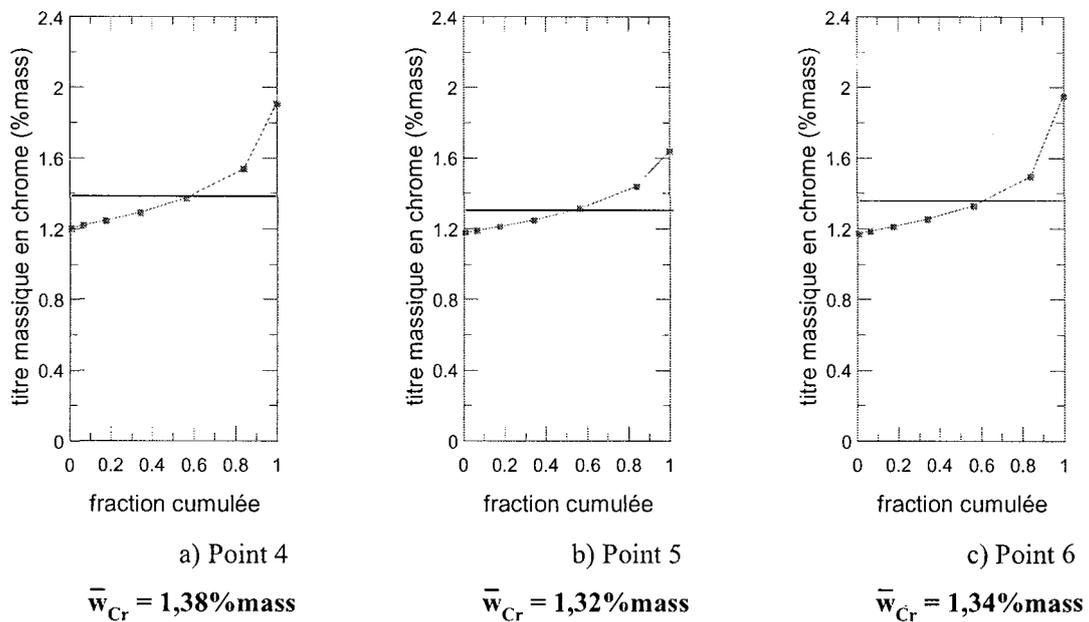


Figure V-20 : profils cumulés en chrome en fin de solidification en fonction de la distance à la peau du lingot. Le trait noir vertical indique la composition moyenne locale du chrome \bar{w}_{Cr} en chaque point d'analyse de la microségrégation.

ANNEXES

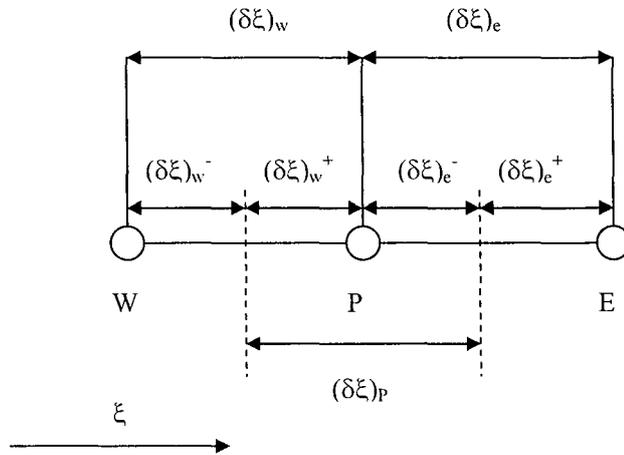


Figure A3.1 : notations adoptées pour les voisins d'un point P et les dimensions caractéristiques dans un maillage monodirectionnel. Le volume de contrôle est délimité par les traits pointillés.

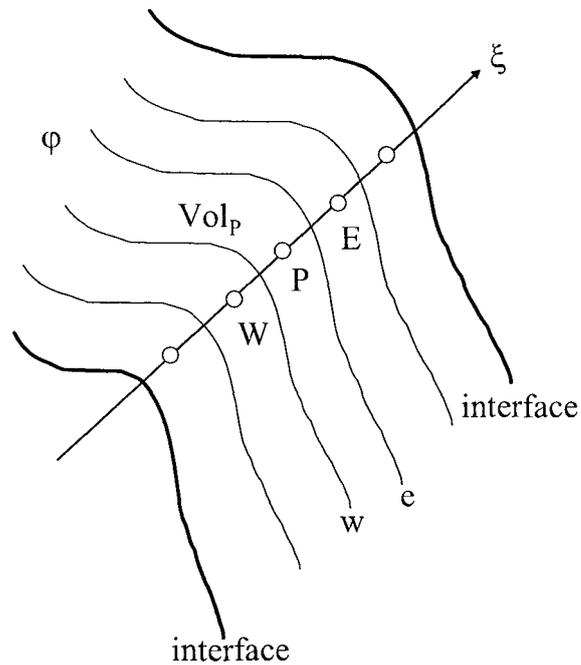


Figure A3.2 : représentation de la phase φ dans le cas d'une géométrie quelconque.

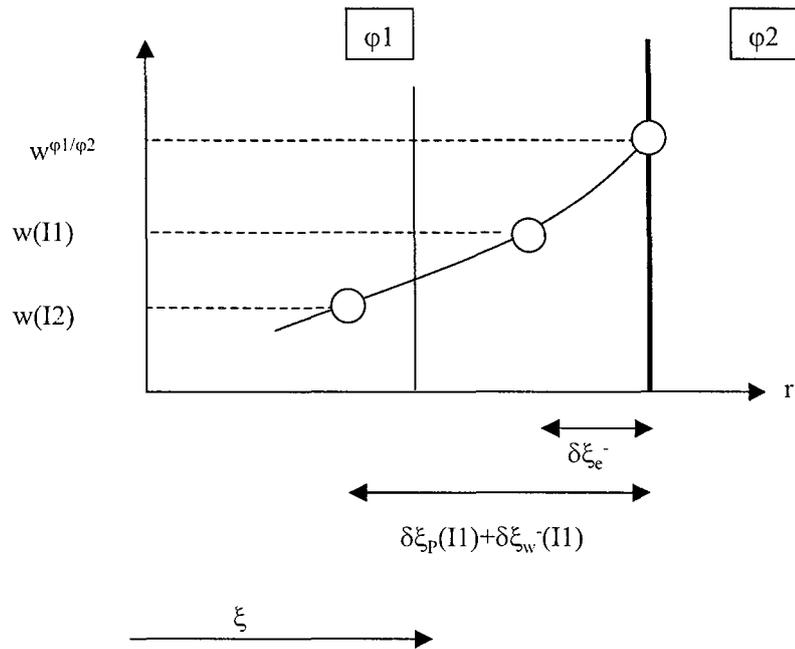
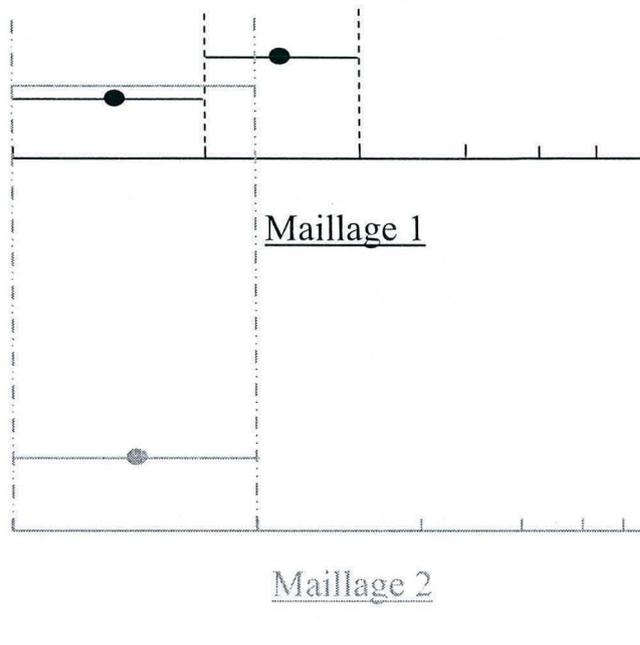


Figure A3.3 : maillage utilisé à la frontière de la phase $\phi 1$. $I1$ indique le nombre de mailles utilisé dans la phase $\phi 1$.



Service Commun de la Documentation
 INPL
 Nancy-Brabois

Figure A3.4 : Principe du maillage géométrique adaptatif utilisé dans le modèle

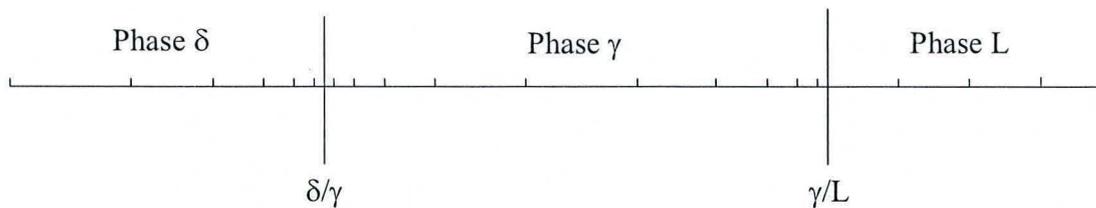


Figure A3.5 : représentation du maillage dans le cas où il est géométrique dans la ferrite, à double progression géométrique dans l'austénite et régulier dans le liquide pendant la transformation péritectique.

