

Contribution à la simulation numérique des procédés à haute température

Bernard Dussoubs

► To cite this version:

Bernard Dussoubs. Contribution à la simulation numérique des procédés à haute température : Développer des outils de recherche pour des applications industrielles. Matériaux. Université de Lorraine, 2021. tel-03476584v1

HAL Id: tel-03476584 https://hal.science/tel-03476584v1

Submitted on 13 Dec 2021 (v1), last revised 25 Nov 2022 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.





École Doctorale CM2P – spécialité Science des Matériaux

HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES DE L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

CONTRIBUTION À LA SIMULATION NUMÉRIQUE DES PROCÉDÉS À HAUTE TEMPÉRATURE : Développer des outils de recherche pour des applications industrielles

Présentée par

Bernard DUSSOUBS

Ingénieur de Recherche Hors Classe, expert en calcul scientifique

Soutenue publiquement le 1^{er} décembre 2021 devant la commission d'examen composée de :

Corinne CHAMPEAUX	Pr IRCER, Université de Limoges, Limoges	Rapporteure
Isabelle CHARPENTIER	DR CNRS, ICube, Strasbourg	Rapporteure
Hervé DUVAL	Pr LGPM, Centrale Supelec, Gif-sur-Yvette	Rapporteur
Silvère AKAMATSU	DR CNRS, Institut des Nanosciences de Paris, Paris	Examinateur
Marie DEBACQ	IGR SayFood, AgroParis Tech, Thiverval Grignon	Examinatrice
Emilie GAUDRY	Pr IJL, Université de Lorraine, Nancy	Examinatrice
Abdellah KHARICHA	Pr associé, Montanuniversität Leoben, Leoben	Examinateur
Alain JARDY	DR CNRS, IJL, Université de Lorraine, Nancy	Parrain scientifique
Denis ABLITZER	Pr IJL, Université de Lorraine, Nancy	Invité
Isabelle CRASSOUS	Ingénieur R&D Expert, Framatome CRC, Ugine	Invitée



Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

À Sophie

The promise is broken, you go on living It steals something from down in your soul And when the truth is spoken, and it don't make no difference Something in your heart goes cold

B. Springsteen, The Promise, 1977-78

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

Sommaire

Remerciements7
Liste des figures9
Introduction
A. La grande histoire
B. Et une plus petite13
C. Références de l'introduction14
Dossier Administratif
A. Curriculum Vitae
B. Enseignement, formation17
C. Administration
D. Thèses codirigées ou dans lesquelles j'ai été plus particulièrement impliqué18
E. Masters dirigés (participation aux jurys correspondants)
F. Activités de valorisation et de transfert – Expertise19
G. Rayonnement scientifique20
Liste des Publications
Activités de Recherche
A. Simulation tridimensionnelle du procédé de projection par plasma thermique
B. Simulation du procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure
C. Simulation des procédés d'élaboration des alliages71
C.1. Modélisation du bombardement électronique dans un four BE
C.2. Modélisation des procédés de refusion85
C.3. Modélisation de la solidification et établissement d'un benchmark numérique 129
D. Conclusion – Synthèse de mes activités de recherche
E. Synthèse de mes principaux développements de codes et de méthodes numériques 149
Projet de Recherche
A. Simulation fine des procédés d'élaboration des alliages par ESR (ou VAR)
B. Développement de modèles de changement d'échelle / de dimension 155
C. Simulation du mouvement des grains / gouttes dans un écoulement turbulent 156
D. À moyen terme
E. Références du projet de recherche159
Pièces jointes

Autorisation d'inscription à l'HDR de l'Université de Lorraine

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

REMERCIEMENTS

Au moment d'attaquer la dernière page à être rédigée dans ce document, mais souvent la première à être lue, je vais commencer par présenter mes excuses à toutes celles et ceux qui, du fait d'un nombre de neurones allant décroissant, auront été oublié(e)s, bien malgré moi.

J'exprime ma sincère gratitude à Mmes Corinne Champeaux et Isabelle Charpentier, ainsi qu'à M. Hervé Duval, pour avoir accepté d'examiner ce travail et d'en être les rapporteurs, tâche ô combien difficile vus les choix (assumés par l'auteur certes mais à tout le moins discutables) que j'ai pu effectuer. Je les remercie pour l'ensemble de leurs commentaires forts pertinents, et plus généralement pour les collaborations fructueuses que nous avons eues dans différents domaines.

Je suis reconnaissant à Mmes Marie Debacq et Émilie Gaudry, et à MM. Silvère Akamatsu et Abdellah Kharicha d'avoir accepté de faire partie du jury de cet HDR. Les échanges lors de la soutenance furent nourris et extrêmement intéressants ; c'est aussi grâce à eux. Je ne doute pas que nous aurons l'occasion de nous revoir, professionnellement ou pas, dans le futur, et j'en suis heureux.

Mme Isabelle Crassous et M. Denis Ablitzer n'ont peut-être administrativement reçu que le titre d'invités dans ce document, mais ils sont pour moi membre à part égale des examinateurs et rapporteurs dans le jury. Qu'ils reçoivent ici les remerciements qu'ils méritent. J'en profite pour souligner le soutien dont Denis Ablitzer a fait preuve à mon égard en étant le premier à m'inciter à soutenir l'HDR. Il était bien normal qu'il fût là pour juger de la pertinence de ses conseils ! Quant à Isabelle, je ne désespère pas de l'avoir motivée pour à son tour franchir le pas !

Alain Jardy a joué avec efficacité le rôle de parrain, sans même me faire une offre que je ne pourrais pas refuser. Je l'en remercie humblement, sans me targuer de pouvoir le remplacer.

Les travaux présentés ici sont issus de collaborations avec plusieurs personnes, et n'ont pu aboutir que grâce à elles, et avec elles. Je tiens donc à signaler combien j'ai apprécié travailler, apprendre, progresser avec Mathilde Hugo et Jérémy Chaulet, mes deux doctorants préférés, et avec Sabine Denis, Armelle Vardelle, Jean-Pierre Bellot, Hervé Combeau, Pierre Fauchais, Dominique Gobin, Fabrice Patisson, enseignants-chercheurs dont les qualités scientifiques et pédagogiques ne sont plus à démontrer.

Mes activités étant menées depuis longtemps au LSG2M, puis à l'IJL, cela m'a laissé un peu de temps pour tisser des liens avec beaucoup de gens. Parmi les anciens, citons Léa Décultot, Liliane Machepy, Josette Omé, Laurence Strohmeyer, Valentine Weber, Francesco Giannangeli. Loïc Mangin ; dans les actuels, je pense à Caroline Barjon, Géraldine Georges, Manon Jehl, Sophie Klein, Lucie Morville, Amandine Reiter, Martine Tailleur, Julien Banos, Julien Jourdan, Grégory Marcos, Thibault Quatravaux, Thomas Poullain et toute l'équipe ERMIONE (Patricio Francisco, Olivier Franzin, Francis Kosior, Christian Senet, Laurent Serrat), sans oublier quelques Directeurs anciens et futurs et membres de la direction du laboratoire : Séverine Rollet, Pierre Archambault, Thierry Belmonte, Jean-Marie Dubois, François Montaigne.

Une partie de mes recherches s'inscrit dans le cadre du Club SOLAR. J'ai pu y rencontrer des partenaires d'une rare compétence, comprenant bien les aléas d'un travail de recherche malgré la pression du résultat inhérente à une activité industrielle. Les discussions avec eux sont toujours extrêmement enrichissantes. Qu'il me soit permis de citer, outre Isabelle Crassous, Dominique Carcey-Collet, Jessica Escaffre, Faustine Leclerc, Sandra Ryberon, Sylvain Charmond, Jonathan Dairon, Vincent Descotes, Alexis Gaillac, Pascal Guérin, Stéphane Hans, Julien Jourdan, Yvon Millet, Andrew Wilson.

J'ai également été impliqué depuis longtemps dans le projet du Mésocentre EXPLOR, ce qui m'a permis de collaborer entre autres avec Isabelle Charpentier et Gérald Monard, que je remercie ici.

Un collègue de la section 15 du Comité National du CNRS nous a dit récemment une chose très juste : on sort meilleur du Comité National qu'on y est rentré. Je ne peux que souscrire, ayant pendant un premier mandat côtoyé des collègues brillants, mais également ouverts à leur environnement et humains, loin de l'idée du scientifique dans sa bulle. Que tous sachent combien ce mandat a pu m'être agréable grâce à eux. J'ai donc choisi de rejouer pour un second, avec des collègues certes largement renouvelés mais qui s'annoncent dans la droite ligne de leurs prédécesseurs.

Mes autres activités m'ont amené à bien des rencontres, que ce soit au niveau enseignement, jurys divers, réseau Calcul Scientifique du CNRS, Université de Lorraine, action syndicale. Pour le coup, j'adresse un salut amical à tou(te)s. Je me permettrai de citer seulement Émilie Gaudry et Thierry Verdel côté enseignement ; Violaine Louvet, Armelle Michau et Romaric David côté réseau Calcul ; Florence Bouchet-Moneret, Joëlle Thiery, Emmanuel Maujean, Gilles Mourot et Fabrice Orel au SNPTES ; Isabelle Baptista à l'Université de Lorraine.

Enfin j'aimerais terminer par celle qui partage ma vie, Sophie, car elle a la lourde tâche de me supporter, dans tous les sens du terme, au quotidien. En ce qui la concerne, développer ce que je voudrais lui dire prendrait un second volume. Vous me permettrez donc de m'arrêter là pour ce document.

Liste des Figures

Figure 1 : Domaine de calcul utilisé.

- *Figure 2 : Distribution des particules d'alumine et de fer au niveau du substrat, lorsque les deux poudres sont injectées a) par le même injecteur ; b) chacune par un injecteur.*
- Figure 3 : Représentation schématique du four LC.
- *Figure 4 : Carte de température dans le four LC.*
- *Figure 5 : Isovaleurs dans la zone d'hydrofluoration verticale a) fraction massique d'UF4, b) température* °C. Cas de référence.
- *Figure 6 : Isovaleurs dans la zone d'hydrofluoration verticale a) fraction massique d'UF4, b) température °C. Cas où le débit d'entrée de HF est augmenté de 20% par rapport au cas de référence.*
- *Figure 7 : Motifs dessinés par les canons à électrons, cas de référence.*
- *Figure 8 : Motifs dessinés par les canons à électrons, cas d'un incident.*
- *Figure 9 : Carte du puits liquide en surface de la sole froide dans le cas de référence (gauche) et après 10 secondes d'interruption du canon n°2 (droite).*
- *Figure 10 : Profil médian en aluminium le long de la sole froide, en surface.*
- Figure 11 : Schéma du procédé ESR.
- *Figure 12 : Puissance volumique générée dans le laitier par effet Joule (W.m-3) sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière.*
- *Figure 13 : Comparaison de la puissance générée sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière (simulations) et de la puissance mesurée expérimentalement.*
- *Figure 14 : Cartes de température dans le laitier et le puits liquide du lingot sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière. 50% (haut) et 90% (bas) du temps total de refusion, les iso-valeurs 0,01 0,5 et 0,99 de la fraction liquide sont également représentées.*
- *Figure 15 : Temps local de solidification dans le lingot secondaire ESR, sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière.*
- *Figure 16 : Évolution du coefficient de traînée des gouttes en fonction du nombre de Reynolds.*
- *Figure 17 : Norme de vitesse du laitier et vecteurs vitesse dans le laitier (normalisés et moyennés sur le temps) pour des gouttes d'un diamètre de a) 1 mm, b) 5 mm, c) 10 mm.*
- *Figure 18 : Différence de température entre les gouttes et le laitier (moyennée sur le temps) pour des gouttes d'un diamètre de a) 1 mm, b) 5 mm, c) 10 mm.*
- *Figure 19 : Comparaison de l'écoulement du laitier calculé par SOLECS pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en appliquant le modèle d'interactions gouttes-laitier.*
- *Figure 20 : Comparaison de la température du laitier calculée par SOLECS pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en appliquant le modèle d'interactions gouttes-laitier (cas d'une électrode d'acier refondue à 10 kgmin⁻¹)).*
- *Figure 21 : Représentation synthétique du modèle d'interactions gouttes/puits liquide.*
- *Figure 22 : Température dans le laitier et le puits liquide et profil du puits liquide pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en utilisant les modèles d'interactions gouttes-laitier et gouttes-puits.*

- *Figure 23 : Évolution en fonction du nombre de mailles (dans un maillage 1D) de l'écart entre la vitesse obtenue selon différents schémas de discrétisation et la vitesse exacte (solution analytique, 1,2414 mms-1).*
- *Figure 24 : Domaine de calcul pour la simulation 2D.*
- Figure 25 : Cartes de macroségrégation dans la cavité à t = 400 s (maillage 60 x 60). a) discrétisation analytique de la perméabilité ; b) interpolation harmonique de la perméabilité ; c) évaluation de la perméabilité à partir de l'interpolation de la fraction liquide ; d) interpolation linéaire de la perméabilité.
- *Figure 26 : Cartes de macroségrégation dans la cavité à t = 400 s pour 3 maillages différents.*
- *Figure 27 : Formation au cours du temps de gouttelettes au bas de l'électrode lors de la refusion ESR. La couleur correspond à l'intensité de la densité de courant électrique [4].*
- Figure 28 : Expériences sur la dynamique des fluides et la fragmentation d'un mélange métal-silice.
 (a) Croissance avec entraînement turbulent pour un nombre de Reynolds de 2.10³.
 (b) Fragmentation d'un volume de solution aqueuse de sel de NaI (colorée en bleu) libérée dans de l'huile de silicone, pour un nombre de Weber de 3.10³ et un nombre de Reynolds de 2.10⁴.
 (c) Gros plans correspondant aux carrés de (b). Des instabilités de Rayleigh Taylor à petite échelle sont apparentes dans le premier [5].
- *Figure 29 : Évolution de la Vitesse de fusion, du courant, de la résistance et de la puissance dans une fusion ESR pilotée à vitesse de fusion constante.*
- *Figure 30 : Résultats de l'optimisation obtenue pour définir des HEA : la contribution de la solution solide (CSSR) est tracée en fonction de la masse volumique ; en couleur est symbolisé le critère PIF. Les histogrammes présentent la répartition des alliages optimaux selon les trois objectifs, suivant l'axe auquel ils sont adossés (de gauche à droite : CSSR, masse volumique, critère PIF). À chaque barre correspond un nombre d'alliages [17].*

INTRODUCTION

NB : Les références citées ci-dessous sont spécifiques à l'introduction et regroupées à la fin de celle-ci.

A. La grande histoire

On s'accorde à dire que la première véritable simulation numérique réalisée le fut, sans que cela ne doive nous étonner, dans un contexte militaire (et plus précisément dans le domaine de la physique nucléaire). En 1953, dans le cadre du projet Manhattan, J. Von Neumann et S. Ulam, rejoints par E. Fermi et J.R. Pasta, souhaitaient simuler le comportement des neutrons lors des réactions en chaîne dans des armes explosives basées sur la fission. Pour arriver à cela, ils décidèrent d'utiliser une méthode inventée quelques années plus tôt, en 1947, par N. Metropolis, et dont le nom faisait allusion aux jeux de hasard pratiqués dans la Principauté éponyme : la méthode de Monte-Carlo [1].

L'expérience numérique en question, programmée en 1955, a longtemps porté le nom de Fermi-Pasta-Ulam (FPU), rappelant les principaux acteurs impliqués dans le projet : E. Fermi en tant que chercheur, J.R. Pasta comme informaticien et S. Ulam, un mathématicien [2].

Une 4^{ème} personne, la programmeuse M. Tsingou, est remerciée dans l'article mais pas citée comme auteur. Pourtant, son rôle fut essentiel pour programmer la machine utilisée pour les calculs, le MANIAC 1 (pour Mathematical Analyzer, Numerical Integrator, and Computer), ordinateur basique (puissance de 10 000 opérations par seconde) construit sous la direction de N. Metropolis et basé sur l'architecture de Von Neumann (i.e. un modèle où une structure de stockage unique est utilisée pour conserver à la fois les instructions, les données et les résultats du calcul. De fait, cet ordinateur était le premier à utiliser un programme mémorisé). Cette architecture, bien qu'obsolète, est tout de même ce qui permet, par la possibilité de traiter des instructions de la même manière que des données, d'écrire des compilateurs (et de permettre la réplication des virus informatiques, mais ceci est une autre histoire...). Du fait que sans elle, rien n'aurait été possible, M. Tsingou a vu son nom associé à la méthode en 2008 (devenue donc FPUT depuis lors) ¹.

La simulation consistait à reproduire le comportement de 64 masses formant une corde vibrante et reliées entre elles par des ressorts dont l'allongement n'est pas linéairement proportionnel aux forces qui s'exercent sur eux.

Pour cela, la trajectoire d'une masse *i*, déterminée via une méthode de différences finies centrées, est perturbée par une anharmonicité d'ordre 2 ou 3, comme illustré dans les équations (1) et $(2)^2$:

$$\frac{d^2 x_i}{dt^2} = (x_{i+1} + x_{i-1} - 2x_i) + \alpha [(x_{i+1} - x_i)^2 + (x_i - x_{i-1})^2]$$
(1)

$$\frac{d^2 x_i}{dt^2} = (x_{i+1} + x_{i-1} - 2x_i) + \beta [(x_{i+1} - x_i)^3 + (x_i - x_{i-1})^3]$$
(2)

D'après la mécanique statistique, si la corde est excitée dans un de ses modes propres, elle va d'abord se charger en énergie, laquelle va se transmettre dans les autres modes du fait de l'équirépartition de cette grandeur. Mais ce n'est pas ce que les auteurs observèrent. Un beau jour, l'ordinateur fonctionna plus longtemps que prévu et le résultat de la simulation obtenue montra que l'énergie se répartissait dans certains modes propres et revenait dans le mode initial avant de se rediffuser ! Ce paradoxe, et sa résolution, entre autres par Kolmogorov, résultera dans la mise au point de la théorie des solitons et de celle du chaos dynamique. Rien que ça.

¹ Un article intéressant sur M. Tsingou est consultable à l'adresse suivante. On pourra y consulter son algorithme, retrouvé dans sa cave : https://www.refletsdelaphysique.fr/articles/refdp/pdf/2020/04/refdp202067p26.pdf

² Pour les férus d'équations : profitez-bien de celles-ci, il n'y en aura pas d'autres dans le manuscrit... Mais vous en trouverez un bon nombre dans les articles insérés.

Au-delà de son aspect historique, cette histoire contient tous les éléments que l'on retrouve dans la simulation numérique « moderne » :

- Un problème à résoudre lié à une application pratique (à la finalité certes discutable...), trop compliqué pour être traité analytiquement,
- Un développement de code qui est une affaire pluridisciplinaire : physicien, mathématicien, informaticien, développeur, etc.
- Le besoin d'avoir une architecture informatique adaptée,
- La comparaison indispensable à l'expérience,
- Un calcul qui ne s'arrête pas comme prévu et un résultat qui n'est pas celui que l'on attend ! En ce qui concerne le dernier point, évidemment ce n'est pas une généralité... On appréciera toutefois l'attitude des auteurs, qui n'ont pas reieté d'emblée le résultat numérique alors que rien ne leur

permettait de penser qu'il fut valide. À contrario, ils ne sont pas partis du principe que ce qui est issu de la machine est forcément correct, alors que la théorie se trompe. Leur approche, bien au contraire, a consisté à comparer les résultats, à s'interroger sur l'apparent paradoxe obtenu, et à faire progresser les connaissances scientifiques en se nourrissant de ce qu'ils avaient obtenu.

Mon propos n'est pas de raconter l'histoire de la simulation numérique, mais d'illustrer que même si aujourd'hui, un tel outil nous parait évident d'utilisation (du moins il est évident que certains puissent l'utiliser), c'est encore quelque chose de relativement jeune. D'autant que dans les années 50, la simulation informatique n'était pas « utile » : elle prenait trop de temps pour produire des résultats, nécessitait trop de personnel qualifié et coûtait trop cher. Par ailleurs, les résultats étaient souvent ambigus. Tant que les ordinateurs ne gagneraient pas en puissance et en simplicité d'utilisation, elle n'était pas vouée à un large développement. Il fallait déjà pouvoir « dialoguer » avec la machine via un langage de programmation. Les premiers efforts en ce sens étaient ceux de A. Turing, dès 1936 (interrompus en 1954 du fait d'une pomme mal passée). Mais c'est sans doute K. Zuse qui mit au point le premier langage de « haut niveau » avec le Plankalkül en 1943-45 [3], bientôt suivi par A-0 System (langage de l'UNIVAC, 1951) et FORTRAN (J. Backus, 1954) [4].

En 1961, Gorden présenta lors d'une conférence un article sur le premier simulateur de systèmes à usage général (GPSS) [5]. Une des premières applications de cet outil permit à la Fédération de l'aviation américaine de diffuser des informations météorologiques. Matériel et logiciel étaient fournis par la société IBM, qui produisait des machines de calcul depuis 1944. Des grandes entreprises commencèrent à développer les premiers groupes de simulation (Boeing, Martin Marietta, Hughes Aircraft, Exxon etc.), et en 1968, une conférence sur les applications de la simulation se déroula à New York, et s'installa sur une base annuelle. Les premiers travaux en simulation des procédés de J. Szekely datent également de cette date.

À l'aube des années 70, la simulation commença à être enseignée dans les universités, mais la perspective de passer de longues heures devant un terminal à attendre la fin hypothétique d'un programme pour constater des bugs n'enchantait guère les étudiants ! Néanmoins, les utilisations de la simulation allaient croissant. Signe de maturité (?) : une table ronde à la Conférence sur les applications de la simulation de 1978, sur les échecs de la simulation et comment s'en prémunir.

Au début des années 80, la simulation numérique demeurait extrêmement compliquée de l'avis général, réservée aux experts, et le temps de programmation et de débogage la rendait toujours beaucoup plus longue que l'expérience qu'elle voulait simuler ! Pourtant, le début de la démocratisation du PC n'allait plus tarder, et avec elle un foisonnement de matériels et logiciels permettant de la mettre en œuvre avec bien plus de facilité qu'auparavant. L'émergence du PC personnel, à partir de 1982, et de compilateurs grand public (Pascal et Turbo Pascal, C puis C++, Fortran moderne), allaient permettre à plus d'entreprises de se lancer dans la simulation.

Dans le domaine académique également, les travaux se multiplièrent. Zoomons très fortement sur ce qui va nous intéresser dans la suite de ce document. Au Laboratoire de Sciences et Génie des Matériaux et Métallurgie (LSG2M), un des laboratoires dont est issu l'IJL, A. Jardy [6], F. Patisson [7] et J.P. Bellot [8] réalisèrent les premières thèses dans le domaine de la simulation numérique des procédés sous la direction de D. Ablitzer. Au Laboratoire de Matériaux Céramiques et Traitements de Surfaces (LMCTS) à Limoges, A. Vardelle [9] s'intéressait à la simulation numérique des procédés de projection par plasma thermique. Ces travaux datent d'une trentaine d'années, sont inspirés de ceux de J. Szekely, et s'appuient largement sur la bible du numéricien appliquant la méthode des volumes finis : l'ouvrage Numerical Heat Transfer and Fluid Flow de S. Patankar [10]. Les simulations n'étaient pas forcément rapides, les codes fonctionnaient sous un terminal,

sur des stations de travail Unix et systèmes VAX/VMS. Mais des systèmes industriels commencèrent à pouvoir être modélisés, même si cela restait encore sous une forme simple.

Nouveauté de cette décennie : à côté de l'approche consistant à écrire des codes « maison » adaptés à une problématique donnée, une autre approche a vu le jour. On allait utiliser des codes commerciaux pour s'éviter une partie de la complexité du codage/langage. En 1981, le premier logiciel de mécanique des fluides numérique fut mis sur le marché : PHOENICS, pour Parabolic, Hyperbolic Or Elliptic Numerical Integration Code Series, développé par la société CHAM. Ce logiciel sera utilisé au LSG2M par E. Hess pour simuler le comportement du bain dans un four à bombardement électronique [11].

Les années 90 virent la puissance des machines de calcul s'envoler. Le Top 500 des supercalculateurs vit le jour en 1993. Les activités de simulation numérique se multiplièrent, aussi bien dans les laboratoires universitaires que dans les bureaux de recherche des entreprises. Les formations dans le domaine du calcul commencèrent à être mises en place dans certaines universités. Bref, la simulation numérique se démocratisa.

B. Et une plus petite

C'est dans ce contexte que j'ai débuté mes activités dans le domaine, lors de mon DEA en 1994, suivi d'une thèse de doctorat obtenue en 1998. Je travaillais au LMCTS (Laboratoire de Matériaux Céramiques et Traitements de Surfaces, devenu aujourd'hui IRCER, à l'Université de Limoges), dans l'équipe Plasmas, Lasers, Matériaux du Pr. P. Fauchais, sous la direction du Pr. A. Vardelle. La partie de l'équipe dont je faisais partie s'intéressait au procédé de dépôt de céramiques sur des surfaces par plasma à pression atmosphérique, en conjuguant méthodes expérimentales originales (mesure de vitesse de particules via une « feuille laser ») et simulation numérique, essentiellement 2D. Ma thèse a constitué la première approche par une modélisation tri-dimensionnelle, elle fait l'objet de la *partie A dans le chapitre portant sur mes activités de recherche*.

A l'issue de cette thèse, je suis arrivé au LSG2M en 1999, dans l'équipe « procédés d'élaboration » du Pr. D. Ablitzer, pour un stage post-doctoral de 3,5 ans. On m'a confié le développement et l'exploitation d'un code simulant le procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure dans un four à lit coulant. Je développe cette étude dans la *partie B du même chapitre.* A partir de 2000, j'ai en parallèle commencé à travailler avec A. Jardy sur le développement du code de calcul SOLAR (SOlidification d'un Lingot refondu à l'ARc), dans le domaine des procédés pyrométallurgiques.

Mon stage post-doctoral terminé, par le transfert et la formation aux partenaires industriels du code de calcul issu de ces travaux, le Directeur du LSG2M m'a proposé un poste d'ingénieur de recherche en calcul scientifique, poste transversal partagé entre 3 équipes de recherche du laboratoire : l'équipe « procédés d'élaboration » bien sûr, mais également les équipes « solidification » et « microstructures et contraintes ». À cette occasion, j'ai dû acquérir de nouvelles compétences aussi bien scientifiques que numériques, les méthodes et outils étant différents de ceux que j'avais déjà utilisés auparavant.

J'ai été titularisé sur un poste permanent en 2006, suite à la réussite au concours d'ingénieur de recherche en calcul scientifique ouvert cette année-là à l'INPL. J'ai poursuivi mon activité dans le domaine de la simulation depuis lors, en travaillant sur différents procédés. La *partie C dans le chapitre portant sur mes activités de recherche* en illustre quelques exemples. Je me suis plus particulièrement impliqué dans le domaine de la simulation du procédé ESR (Electro-Slag Remeling), puisque j'ai co-dirigé 2 thèses dans ce domaine (et fortement participé à une 3^{ème}). Je suis actuellement porteur d'un projet sur le thème dans le cadre du Plan de Relance, qui pourrait déboucher sur 2 stages post-doctoraux consécutifs de 18 mois chacun dont je serai responsable.

Une tentative de synthèse de ces différentes activités se trouve dans les *parties D et E du chapitre Activités de recherche*.

En parallèle, la fusion de plusieurs laboratoires, dont le LSG2M, se profilant (effective au 1^{er} janvier 2009 pour donner naissance à l'Institut Jean Lamour), j'ai animé le groupe de travail visant à mettre en place un service informatique et calcul assurant le meilleur niveau de service aux utilisateurs du futur laboratoire, et une véritable maîtrise de notre Système d'Information. J'ai pris la responsabilité de cette équipe à la création de l'IJL.

À partir de 2011, j'ai également porté avec 2 collègues de la future Université de Lorraine (née au 1^{er} janvier 2012), G. Monard, Pr. au SRSMC, et I. Charpentier, CR CNRS au LEM3, le projet de mésocentre

de calcul lorrain EXPLOR. Initialement présenté au PIA2 dans la catégorie Equipex, le projet a été classé (un des 3 seuls en Lorraine) quoique non financé. EXPLOR a finalement vu officiellement le jour en 2014 suite à un financement dans le cadre du Plan lorrain, et j'en ai assuré l'administration provisoire en 2020-2021.

Depuis mon arrivée à l'Université je n'ai jamais cessé d'assurer des enseignements, d'abord dans le cadre d'un monitorat, puis de vacations. J'interviens toujours à ce jour, comme chargé de cours, assistant de TD, encadrant de stages de BUT 2 jusqu'à Master 2.

Je suis enfin impliqué dans un certain nombre d'activités collectives, élu au CA de l'Université depuis sa création, représentant des personnels en Commission Paritaire d'Établissement, élu C au Comité National du CNRS en section 15 (Chimie des Matériaux) et commission interdisciplinaire 55 (Science et données), mais aussi sous-directeur du LSG2M entre 2007 et 2009.

Tous ces aspects sont présentés, avec les différentes activités associées, dans le *chapitre Dossier Administratif* qui ouvre ce document.

Enfin, la partie la plus intéressante de ce manuscrit, ou du moins la plus novatrice (je l'espère) réside dans le chapitre *Projet de Recherche* qui esquissera quelques pistes de travail sur lesquelles je souhaiterais m'engager à l'avenir, à court et moyen terme.

C. Références de l'introduction

- [1] N. Metropolis, S. Ulam : The Monte Carlo Method, *Journal of the American Statistical Association*, 44 (247), 335-341 (1949).
- [2] E. Fermi, J.R. Pasta, S. Ulam : Studies of Nonlinear Problems. *Collected Papers of Enrico Fermi, Vol. 2, The University of Chicago Press, 977-988* (1965).
- [3] K. Zuse : Über den allgemeinen Plankalkül als Mittel zur Formulierung schematisch-kombinativer Aufgaben, *Archiv der Mathematik*, **1**, 441-449 (1948).
- [4] J. Backus : Specifications for The IBM Mathematical Formula Translating System FORTRAN, Internal Report IBM (1954). Consultable en ligne à l'adresse : https://archive.computerhistory.org/resources/text/Fortran/102679231.05.01.acc.pdf
- [5] J. Reitman : A Concise History of the Ups and Downs of Simulation, Proceedings of the 20th conference on Winter simulation, 1–6 (1988). https://doi.org/10.1145/318123.318130
- [6] A. Jardy : thèse de doctorat de l'INPL, 1984
- [7] F. Patisson : Modélisation physico-chimique et thermique de l'opération d'agglomération des minerais de fer, thèse de doctorat de l'INPL, 1987.
- [8] J.P. Bellot : Étude et modélisation physico-chimique et thermique de l'opération de grillage agglomérant des minerais sulfurés de zinc, thèse de doctorat de l'INPL, 1989.
- [9] A. Vardelle : Etude numérique des transferts de chaleur, de quantité de mouvement et de masse entre un plasma d'arc à la pression atmosphérique et des particules solides, thèse de doctorat de l'Université de Limoges, 1987.
- [10] S.V. Patankar : Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, *Series in Computational Methods in Mechanics and Thermal Sciences*, CRC Press, 1980.
- [11] J.P. Bellot, E. Hess, S. Hans and D. Ablitzer : A Comprehensive Simulation of the Electron Beam Cold Hearth Refining of titanium Alloys, *Proceedings of the 1997 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, Sante Fe, NM*, 166-178 (1997).

Dossier administratif

« Blondin, tu veux me faire une farce avoue-le ? - Ca c'est pas une farce, c'est une corde... »

Le bon, la brute et le truand, 1966

A. Curriculum Vitae

ETAT CIVIL

Bernard **DUSSOUBS**

Né le 12 octobre 1970 à LIMOGES (87), nationalité française

IGRHC Calcul Scientifique à l'Institut Jean Lamour (site ARTEM, 2 allée André Guinier, BP 50840, 54011 NANCY CEDEX), Université de Lorraine

Téléphone : 03.72.74.26.20

Adresse électronique : bernard.dussoubs@univ-lorraine.fr

DIPLÔMES ET TITRES UNIVERSITAIRES

- Doctorat en "Science des Matériaux Céramiques et Traitements de Surface"
 Mention Très Honorable avec Félicitations du Jury
 Modélisation 3D du procédé de projection plasma : influence des conditions d'injection de la poudre et des paramètres de projection sur le traitement et la répartition des particules dans l'écoulement.
 <u>Soutenue</u> le 26 juin 1998 à LIMOGES
- Diplôme d'Etudes Approfondies en "Matériaux Céramiques et Traitements de Surface", Faculté des Sciences de Limoges, septembre 1994 *Mention Très Bien Classement : 1^{er}*.
 Étude numérique de la solidification et du refroidissement d'une particule projetée par plasma.

LANGUES ÉTRANGÈRES

- Anglais courant
- Russe pratiqué comme 2^{ème} langue au collège et au lycée

EXPÉRIENCE PROFESSIONNELLE

depuis septembre 2002 : Ecole des Mines de NANCY, LSG2M puis IJL (janvier 2009)
 Institut Jean Lamour - NANCY (54).

Ingénieur de recherche, Chef de projet ou expert en calcul scientifique.

Vacataire à l'Ecole des Mines de Nancy.

Chef de projet, responsable du Centre de Compétences ERMIONE (6 personnes)

- Gestion administrative et budgétaire du CC
- ✓ Réalisation des entretiens annuels et de l'évaluation des personnels membres
- ✓ Représentation du CC auprès des instances
- ✓ Coordination de la mise en place du Système d'Information de l'UMR.

Expert en calcul scientifique

 Maîtrise et développement d'outils théoriques pour les travaux de modélisation des procédés d'élaboration, traitement du métal liquide, solidification des alliages

- ✓ Mise en œuvre de techniques numériques, de logiciels de simulation et d'outils de visualisation
- Expertise pour les activités de recherche (conseil sur le choix des méthodes, développement de programmes de calcul scientifique, transfert de technologies informatiques vers les chercheurs)
- ✓ Maîtrise et maintien des logiciels "maison" et commerciaux d'un Département de l'IJL ; développement d'applications spécifiques dans ces derniers, intégration de nouveaux composants
- ✓ Transfert et valorisation des logiciels développés en interne vers les partenaires industriels ainsi qu'assistance auprès de ces partenaires
- ✓ Formation des étudiants et doctorants, soutien aux filières d'enseignement ; diffusion de l'information au sein de l'IJL
- ✓ septembre 2020 à juillet 2021 : **Université de Lorraine**

Administrateur provisoire du mésocentre lorrain EXPLOR 2020-2021)

- ✓ Gestion du budget et des personnels du mésocentre
- ✓ Participation au GT définissant les évolutions du mésocentre
- ✓ Membre du Directoire du mésocentre
- mars 1999 à septembre 2002 : Ecole des Mines de NANCY, LSG2M
 Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie NANCY (54).
 Chercheur post-doctoral.
 Vacataire à l'Ecole des Mines de NANCY.
- octobre 1998 décembre 1998 : ADER LPC
 Association pour le Développement de l'Enseignement et de la Recherche en Limousin Poitou-Charentes -LIMOGES (87).
 Rapport d'enquête sur le devenir des doctorants financés par l'ADER-LPC pendant leur thèse.
- octobre 1997 août 1998 : LMCTS
 Laboratoire de Matériaux Céramiques et Traitements de Surface LIMOGES (87).
 Chercheur en formation dans le cadre du doctorat.
 ATER en Physique à la Faculté des Sciences de LIMOGES.
- octobre 1994 septembre 1997 : LMCTS
 Laboratoire de Matériaux Céramiques et Traitements de Surface LIMOGES (87).
 Chercheur en formation dans le cadre du doctorat.
 Moniteur en Physique à la Faculté des Sciences de LIMOGES.

Activités d'encadrement/Responsabilité d'Equipe

- Co-directions de thèse : 3 thèses soutenues
- Encadrement de DEA/DESS/Master 2 : 10
- Responsable d'une équipe de 6 personnes : 1 T CNRS, 1 ASI UL, 1 IGE UL, 2 IR CNRS, 1 IGR UL

PRODUCTION SCIENTIFIQUE

- Publications dans des journaux/revues avec comité de lecture : 39
- Comptes-rendus de congrès sans comité de lecture : 19
- Communications orales : 21
- Rapport de contrats : 20
- Index h = 15

RESPONSABILITÉS COLLECTIVES

Sous-directeur du LSG2M, en charge du fonctionnement technique (2007-2008)

- Responsable de l'équipe informatique/calcul scientifique de l'IJL (2009-)
- Membre de jurys de concours ITRF et ITA CNRS (2008-). Expert de jury ITRF (2008-)
- Membre du Comité National du CNRS, Section Chimie des Matériaux (15) et Section Interdisciplinaire (52) (2016-)
- Porteur du projet EXPLOR de mésocentre lorrain de calcul scientifique (2013-2016). Administrateur provisoire du mésocentre (2020-2021)
- Membre du Comité de Pilotage du Réseau Calcul Scientifique (2009-)
- Membre du Comité d'organisation du congrès "International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting", Nancy, septembre 2007 et septembre 2011
- Membre élu au Conseil du LSG2M et au Conseil de la Fédération Jean Lamour (2005-2009).
- Membre du Conseil d'Administration de l'INPL puis de l'Université de Lorraine (2007-)
- Membre de la Commission Paritaire d'Etablissement de l'INPL (2008-2011) puis de l'Université de Lorraine (2015-2018)
- Membre du Conseil de l'Ecole Doctorale C2MP (2018-)

B. Enseignement, Formation

- Monitorat + ½ ATER à l'Université de Limoges dans le cadre de la thèse (1994-1998) : 3x64h TD +96H TD en 1^{er} (DEUG A et B) et 2^{ème} cycle (Maîtrise EER) : TD et TP de physique, optique, thermodynamique.
- Vacations (1999-) en tant que chargé de TD à Mines Nancy (50 élèves de L3 et M1 par an) :
 60 h TD en moyenne/an, en :
 - ✓ Statistique : bases de la statistique inférentielle, probabilités et variables aléatoires, loi normale, contrôle et estimation statistique, régression linéaire, introduction à l'analyse des données, au data mining et big-data.
 - ✓ Physique statistique : approche statistique de la physique, ensembles microcanonique, canonique et grand canonique, thermodynamique classique et statistique, gaz parfait classique, théorie cinétique des gaz, phénomènes de transport, statistiques de Fermi-Dirac et Bose-Einstein, rayonnement (corps noir), gaz de photons, gaz parfait de fermions et bosons, propriétés des solides semi-conducteurs.
 - ✓ Simulation Numérique : cet enseignement transversal apporte les bases nécessaires au développement et à l'utilisation de codes de mécanique des fluides numérique, outil aujourd'hui indispensable à l'ingénieur pour comprendre et optimiser des installations industrielles, où les écoulements turbulents couplés à la thermique et aux transferts de matière jouent un rôle essentiel. Le code Fluent a été choisi pour l'ensemble des TD.
- Chargé de cours (2016-) en Master ISAM-IAE (25 élèves de M2) : 25 h TD en moyenne/an, en statistique : base de la statistique inférentielle, probabilités et variables aléatoires, loi normale, contrôle et estimation statistique, régression linéaire, analyse de données.
- Encadrement régulier de groupes d'étudiants de Mines Nancy (stages de recherche de 3 à 6 mois en M1 ou M2) : formations environnement, énergie et procédés, simulation numérique.
- Encadrement de 7 stagiaires de l'IUT informatique Charlemagne (Nancy) sur le développement d'interfaces de logiciels de calcul scientifique (2000-2008, 2017-2020).
- Formation des utilisateurs du laboratoire sur des logiciels de simulation numérique.
- Membre du projet "Statistique pour l'Ingénieur": mise en ligne d'un cours interactif de statistique à destination des élèves admis sur titre en 2^{ème} année de l'Ecole des Mines de Nancy. Chargé de la rédaction et de la mise en ligne d'exercices interactifs en javascript.

C. Administration

 Responsable du Centre de Compétence ERMIONE de l'IJL depuis 2009 (Ensemble de Ressources et de Moyens pour l'Informatique et les Outils NumériquEs), qui regroupe l'ensemble des personnels BAP E de l'Unité. En charge du budget du Centre de Compétences (250 k€/an), encadrement de 5 personnels BIATSS (niveau T à IGR).

- Membre du bureau exécutif du GDR Calcul et du réseau métier Calcul Scientifique du CNRS (2009-2013). Porteur et coorganisateur, pour le réseau Calcul, d'une Ecole Thématique (calcul parallèle dans le domaine des plasmas) en collaboration avec le réseau métier Plasmas Froids, octobre 2011, Autrans. Co-organisateur du CEMRACS 2012 (17^{ème} Centre d'Eté Mathématique de Recherche Avancée en Calcul Scientifique) sur le thème des méthodes numériques et algorithmes pour architectures hautes performances, 16 juillet au 24 août 2012, Marseille (100 participants). Membre du Comité de Pilotage du réseau Calcul (2014-).
- Participant à l'organisation du congrès "International Symposium Liquid Metal Processing and Casting", Nancy, Septembre 2003, et membre du comité d'organisation des éditions 2007 et 2011 (chargé entre autres du budget du congrès – 80 k€ environ, des demandes de subventions aux partenaires industriels et aux collectivités locales, du site web, du programme scientifique, de l'organisation locale et de l'intendance/facilitation au cours de celui-ci, etc.), Nancy, 2003, 2007 et 2011. Le Congrès réunit à chaque fois entre 110 et 140 personnes venant de 15 à 20 pays différents.
- Coordinateur avec un collègue PR de l'UL et une collègue CR CNRS du projet de mésocentre lorrain dans le domaine du calcul scientifique EXPLOR. J'animais un groupe de travail au sein duquel 17 laboratoires lorrains étaient représentés ; j'ai coordonné la rédaction d'un projet EQUIPEX2 (classé 62^{ème}/274). J'ai été co-responsable de la structure de coordination EXPLOR créée en novembre 2016 à l'UL (dotée d'un budget Pacte Lorraine de 2,7 M€), en charge de l'animation scientifique, de la coordination des ingénieurs calcul de l'Université au sein de la Maison de la Simulation. J'ai été également administrateur provisoire de la structure (2020-2021), en charge du budget de fonctionnement (20 k€/an) et de l'encadrement d'un IGR.
- Sous-directeur du laboratoire LSG2M (devenu par fusion avec 4 autres laboratoires l'IJL au 1^{er} janvier 2009), chargé du fonctionnement interne du laboratoire (2007-2008).
- Coordinateur du Club Solar (2002-), regroupant les industriels utilisateurs du logiciel Solar (Titanium Corporation TIMET, Centre de Recherche Composants de Framatome, Aubert et Duval, APERAM) ainsi que les développeurs du code à l'Institut Jean Lamour. Le but du club est de mettre en commun les développements des codes et les expériences d'utilisation des partenaires industriels.

D. Thèses codirigées ou dans lesquelles j'ai été plus particulièrement impliqué

- 1. A. Malik : Simulation Tridimensionnelle des Procédés d'Elaboration et de Solidification, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 28 février 2012. Directeur H. Combeau, PR UL, IJL (*co-direction à 33%*). Durée de la thèse : 4 ans. A. Malik est désormais membre du comité de développement de la formation au sein de la société SAEINDIA (Inde).
- M. Hugo : Modélisation de la Refusion ESR d'Aciers Spéciaux et Superalliages Base Nickel, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 25 juin 2014. Directeur A. Jardy, DR CNRS, IJL (co-direction à 50%). Durée de la thèse : 4 ans. M. Hugo est désormais ingénieur développeur chez Sopra Banking Software (France).
- J. Chaulet, Modélisation du Procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur : Représentation des transferts énergétiques métal-laitier, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 11 mai 2021. Directeur A. Jardy, DR CNRS, IJL *(co-direction à 50%)*. Durée de la thèse : 3 ans. J. Chaulet est désormais ingénieur R&D Upstream Process chez APERAM (France).
- 4. J. Jourde : Modélisation numérique du four à lit coulant réalisant la conversion du trioxyde d'uranium en tétrafluorure, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 2000. Directeur D. Ablitzer, PR INPL, LSG2M.
- N. Houti : Étude de l'influence du mouvement et de la croissance des grains équiaxes sur la macroségrégation en coulée semi-continue d'aluminium, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 2005. Directeur H. Combeau, Pr INPL, LSG2M.
- V. Weber : Simulation numérique du procédé de refusion sous laitier électroconducteur, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 2008. Directeur D. Ablitzer, Pr INPL, LSG2M.

- 7. L. Mangin : Étude et simulation des processus de déformation au chauffage de tubes d'acier : prise en compte des couplages fluide-thermique-métallurgie-mécanique, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 2010. Directeur S. Denis, PR INPL, IJL.
- 8. L. Décultot : Étude et modélisation du procédé de refusion par plasma d'arc en creuset froid (PAMCHR) d'alliages de titane pour des applications aéronautiques, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 2021. Directeur J.P. Bellot, Pr. UL, IJL.

E. Masters dirigés

- 1. B. Rouaiguia : Développement d'un pré-processeur et d'un post-processeur pour l'interface de saisie du logiciel SOLAR, Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré, septembre 2002. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 2. N. Benziane : Mise en place d'une démarche maintenance d'intégration des nouveaux équipements sur le périmètre prestataires chez LEGRAND Limoges (87), Rapport de stage entreprise 3ème année, FITI MGP, Ecole des Mines de Nancy, INPL, septembre 2002. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 3. S. Santos : Améliorations apportées à l'interface d'un logiciel de simulation numérique : SOLAR, Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré, septembre 2003. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 4. K. Mouzouri : Interface graphique du logiciel de simulation numérique SOLAR : de la version 3.3 à la version 4.0, Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré, septembre 2004. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 5. D. Donnot : L'interface graphique de SOLAR version 4.1, Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré, septembre 2005. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 6. D. Diarrassouba : L'interface graphique de SOLAR version 4.5, Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI, septembre 2009. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 7. O. N'Diaye : L'interface graphique de SOLAR version 4.6, Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI, septembre 2010. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 8. T. Amoussa : L'interface graphique de SOLAR version 5.0, Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI, septembre 2011. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 9. B. Benmessaoud : L'interface graphique de SOLAR version 5.1, Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI, septembre 2012. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.
- 10. A. Elsayed : L'interface graphique de SOLAR version 5.2, Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI, septembre 2013. Direction à 100%. Durée du stage : 6 mois.

F. Activités de valorisation et de transfert – Expertise

- Encadrement d'une ingénieure d'études sur le développement de codes de calcul scientifique et de leurs interfaces (2013-2016).
- Formation des utilisateurs industriels du code simulant le procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure d'uranium, à COGEMA Pierrelatte (4 jours) (2002).
- Formation des utilisateurs industriels sur le logiciel Solar et son interface. Assistance téléphonique aux utilisateurs et maintenance du code (2003-).
- Transfert auprès de la société TRANSVALOR d'un module de calcul de l'évolution microstructurale au cours de la trempe d'un acier fer-carbone (2004).

- Comparaison des résultats des versions 2.5 et 3.6.2 du code Solid, simulant la solidification des aciers (2005).
- Comparaison des résultats des versions 3.4 et 3.8 du programme Cône 2D sous différentes systèmes d'exploitation (2006).
- Intervention sur le couplage Fluent-Sysweld dans le cadre de la thèse de L. Mangin sur le cintrage des tubes d'aciers (en collaboration avec Vallourec).
- Intervention sur le développement d'un modèle du procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur dans le cadre de la thèse de V. Weber (en collaboration avec Aubert et Duval).
- Porteur du projet de labellisation qualité du CC ERMIONE en tant qu'Infrastructure de recherche dans le cadre du projet INFRA+ de l'I-SITE LUE.
- Expert BAP E pour les jurys de concours ITRF et ITA CNRS, catégorie calcul scientifique (2008-).

G. Rayonnement scientifique

- Membre du Comité National du CNRS (section 15, Chimie des Matériaux et Commission Interdisciplinaire CID 52) (2016-).
- Auteur de 39 publications de rang A, dont 24 dans des journaux internationaux (h-index : 15).
- Reviewer régulier pour la revue en ligne Metals (membre du Reviewer Board de la revue).

Publications - journaux	3	5	16	24
<i>Comptes-rendus de congrès avec comité de lecture</i>	3	3	9	15
<i>Comptes-rendus de congrès sans comité de lecture</i>	6	1	12	19
Communications orales	7	2	12	21
Posters	2	0	3	5
Ouvrages scientifiques			2	2
Rapports scientifiques		10	10	20
Rapports de stage		3	14	17
Thèses (soutenues et en cours)			3	3
ΤΟΤΑΙ	21	24	81	126

LISTE DES PUBLICATIONS

Les colonnes 2, 3 et 4 correspondent aux 3 périodes couvrant respectivement DEA + thèse (1994-1998), post-doctorat (1999-2002), poste d'IGR calcul scientifique (2002).

PUBLICATIONS

Publications dans des journaux

- P1 A. Vardelle, N.J. Themelis, B. Dussoubs, M. Vardelle, P. Fauchais : Transport and Chemical Rate Phenomena in Plasma Sprays, présenté à la Fourth European Conference on Thermal Plasma Processes (TPP4), 15-18 July 1996, Athens, Greece (Conférence invitée), et publiée dans Journal of High Temperature Material Processes, <u>1</u> (3), 295-314 (1997). 20 pages.
- P2 A. Vardelle, P. Fauchais, B. Dussoubs, N.J. Themelis : Heat Generation and Particle Injection in a Thermal Plasma Torch, presented at the 13th International Symposium on Plasma Chemistry, Beijing, China, August 1997 (Conférence invitée), publié dans Plasma Chemistry and Plasma Processing, <u>18</u> (4), 551-578 (1998). 28 pages.
- P3 M. Leylavergne, A. Vardelle, B. Dussoubs, N. Goubot : Comparison of Plasma Sprayed Coatings Produced in Argon or Nitrogen Atmosphere, *Journal of Thermal Spray Technology* <u>7</u> (4), 527-536 (1998). *10 pages.*
- P4 B. Dussoubs, G. Mariaux, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais : D.C. Plasma Spraying: Effect of Arc Root Fluctuations on Particle Behavior in the Plasma Jet, *Journal of High Temperature Material Processes*, <u>3</u> (2-3), (1999). *12 pages*.
- P5 P. Fauchais, A. Vardelle, M. Vardelle, B. Dussoubs : Quo Vadis Plasma Spraying ?, Journal of Thermal Spray Technology <u>10</u> (1), 44-66 (2001). 23 pages. Egalement publié dans Proceedings of the 16th International Thermal Spray Conference, Conférence inaugurale, Singapour, 28-31 May 2001, (Ed.) C.C. Berndt, (Pub.) ASM International, 1-34 (2001).
- P6 B. Dussoubs, A. Vardelle, G. Mariaux, N.J. Themelis, P. Fauchais : Modeling of Plasma Spraying of Two Powders, *Journal of Thermal Spray Technology* <u>10</u> (1), 105-110 (2001). 6 pages.
- P7 P. Fauchais , A. Vardelle, M. Vardelle, K.-I Li, B. Dussoubs, N.J. Themelis : Controlling Particle Injection in Plasma Spraying *Journal of Thermal Spray Technology* <u>10</u> (2), 267-284 (2001). *18 pages. JTST Best Paper Award 2001.*
- P8 B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Mathematical Modelling of Uranium Dioxide Conversion in a Moving Bed Furnace, *Powder Technology* <u>128</u> (2-3), 168-177 (2002). *10 pages.*
- P9 B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride Part 1: Formulation of the model, *Chemical Engineering Science*. <u>58</u> (12), 2617 2627 (2003). *11 pages*.
- P10 B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride Part 2: Application of the model, Chemical Engineering Science. 58 (12), 2629 2642 (2003). 14 pages.
- P11 H. Combeau, B. Appolaire, B. Dussoubs, N. Houti : Prediction of the Macro and Microstructures of Solidification in DC Casting of Aluminium, *Aluminium* 80 (6), 614-619 (2004). *6 pages*.
- P12 Y.Wang, B. Appolaire, S. Denis, P. Archambault, B. Dussoubs : Study and Modelling of Microstructural Evolutions and Thermomechanical Behaviour during the Tempering of Steel, *Int. J. Microstructure and Materials Properties* 1 (2), 197-207 (2006). *10 pages*.

- P13 V.Weber, A. Jardy, B. Dussoubs, D. Ablitzer, S. Rybéron, V. Schmitt, S. Hans, H. Poisson, : A Comprehensive Model of the Electroslag Remelting Process: Description and Validation, *Metallurgical and Materials Transactions B: Process Metallurgy and Materials Processing Science* 40B (3), 271-280 (2009) *10 pages.*
- P14 A. Kumar, B. Dussoubs, M. Zaloznik, H. Combeau : Effect of Discretization of Permeability Term and Mesh Size on Macro- and Meso-segregation Predictions, *Journal of Physics D : Applied Physics* 42 (10) (2009), article 105503, DOI: 10.1088/0022-3727/42/10/105503. *13 pages*.
- P15 L. Mangin, B. Dussoubs, S. Denis, J-P. Bellot : Modelling and experimental study of the deformation of steel parts during heating, *Journal of Heat Treatment and Materials*, 64 (2), 89-93 (2009). *5 pages.*
- P16 M. Bellet, H. Combeau, Y. Fautrelle, D. Gobin, M. Rady, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, C.A. Gandin, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Zaloznik : Call for contributions to a numerical benchmark problem for 2D columnar solidification of binary alloys, *International Journal of Thermal Sciences* 48 (11), 2013-2016 (2009), DOI: 10.1016/j.ijthermalsci.2009.07.024. *4 pages.*
- P17 B Dussoubs, A Vardelle, P. Fauchais : 3D modeling of the plasma co-spraying of two dissimilar materials, *High Temperature Material Processes: An International Quarterly of High-Technology Plasma Processes*, 15 (1), 39-50 (2011). *11 pages.*
- P18 V. De Felice, I. Daoud, B. Dussoubs, A. Jardy, J.P. Bellot : Numerical modelling of inclusion behaviour in a gasstirred ladle, *ISIJ International*, 52 (7), 1273-1280 (2012). *9 pages*.
- P19 A. Jardy, P. Chapelle, A. Malik, J.P. Bellot, H. Combeau, B. Dussoubs : The arc behaviour and Cathode Melting Process during VAR: an Experimental and Numerical Study, *ISIJ International*, 53 (2), 213-220 (2013). 9 pages.
- P20 J.P. Bellot, V. De Felice, B. Dussoubs, A. Jardy, S. Hans : Coupling of CFD and PBE calculations to simulate the behavior of an inclusion population in a gas-stirring ladle, *Metallurgical and Materials Transactions B: Process Metallurgy and Materials Processing Science*, 45 (1), 13-21 (2014). 9 pages.
- P21 M. Hugo, A. Jardy, B. Dussoubs, J. Escaffre, H. Poisson : Mathematical Modeling of the Mold Current and Its Influence on Slag and Ingot Behavior during ESR, *Journal for Manufacturing Science and Production*, 15 (1), 79–88 (2015). *10 pages.*
- P22 M. Hugo, A. Jardy, B. Dussoubs, J. Escaffre, H. Poisson : Influence of the Mold Current on the Electroslag Remelting Process, *Metallurgical and Materials Transactions B: Process Metallurgy and Materials Processing Science*, 47 (4), 2607-2622 (2016). *16 pages*.
- P23 J. Chaulet, A. Kharicha, S. Charmond, B. Dussoubs, S. Hans, M. Wu, A. Ludwig, A. Jardy : A 2D Multiphase Model of Drop Behavior during Electroslag Remelting, *Metals*, 10, 490 ; https://doi.org/10.3390/met10040490 (2020). 16 pages.
- P24 J. Haag, J. Martens, B. Dussoubs, A. Jardy, J.P. Bellot : Analysis of the Thermal Transfers in a VASM Crucible: Electron Beam Melting Experiment and Numerical Simulation, *Metals*, 10, 1152 ; https://doi:10.3390/met10091152 (2020) *20 pages*.

Publications dans des comptes-rendus de congrès avec comité de lecture

- P25 B.Dussoubs, A. Vardelle, D. Gobin, P. Fauchais : Solidification et refroidissement d'une gouttelette projetée par plasma : détermination de la vitesse de trempe, Actes du Congrès 1995 de la Société Française de Thermique, Poitiers, 361-366 (1995). 6 pages.
- P26 B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais : Modelling of a Plasma Spray System, *Proceedings of the Fourth International Thermal Plasma Processes Conference*, Athens Greece, 15-18 July 1996, (ed.) P. Fauchais, (Pub) Begell House, 861-869 (1997). 9 pages.
- P27 B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais : 3-D Modelling of plasma spray processing : Effect of Spray Parameters on Particle Spray Pattern and Offset Position, *Proceedings of the Fifth International Thermal Plasma Processes Conference*, St Petersburg, Russia, 13-17 July 1998, (eds.) P. Fauchais and J. Amouroux, (Pub) Begell House, 461-469 (1999). 8 pages.
- P28 M. Vardelle, B. Dussoubs, A. Vardelle, P. Fauchais, T.J. Roemer, R.A. Neiser, M.F. Smith : Influence of Injector Geometry on Particle Trajectories : Analysis of Particle Dynamics in the Injector and Plasma Jet, *Proceedings of the* 15th International Thermal Spray Conference, 25-29 Mai 1998, Nice, 887-894 (1998). 8 pages.
- P29 B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modélisation mathématique de la conversion de l'oxyde d'uranium dans un four à lit coulant, *Actes du Colloque Science et Technologie des Poudres*, 3-5 avril 2001, Nancy. Coordinateur Hervé Muhr, Récents Progrès en Génie de Procédés : Science et Technologie des Poudres (Pub.) Lavoisier Technique et Documentation, <u>15-2001</u> (77), 551-556 (2001). *6 pages.*
- P30 B. Dussoubs, F. Patisson, J. Jourde, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Simulation d'un four à lit coulant pour la production de tétrafluorure d'uranium, *Actes du 8^{ème} Congrès Francophone de Génie des Procédés*, 17-19 octobre 2001, Nancy. Coordinateurs A. Latifi, J. Boudrant et D. Tondeur, Récents Progrès en Génie de Procédés : information, modélisation, simulation et optimisation (Pub.) Lavoisier Technique et Documentation, <u>15-2001</u> (82), 211-219 (2001). *8 pages.*
- P31 B. Dussoubs, J.P. Bellot, G. Reiter, J. Flinspach : Numerical Simulation of the EBCHR Operation for Working Towards Optimization and Process Control, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Santa Fe, Etats Unis, 19-21 September 2005, (eds.) P. D. Lee et al., (Pub) ASM International, 233-242 (2005). *10 pages.*

- P32 F. Patisson, B. Dussoubs, D. Ablitzer : Using Sohn's Law Of Additive Reaction Times For Modeling A Multiparticle Reactor: The Case Of The Moving Bed Furnace Converting Uranium Trioxide Into Tetrafluoride, *Proceedings of the Sohn International Symposium on Advanced Processing of Metals and Materials,* San Diego, Etats Unis, 27-31 August 2006, (Pub) TMS (2006). CD-Rom. 13 pages.
- P33 B. Dussoubs, J.P. Bellot, U. Biebricher, M. Mede : Modeling and Empirical Results of Aluminum Evaporation in an EBCHR Melt of Ti-6-4, *Proceedings of the International Conference on High-Power Electron Beam Technology*, Reno, Etats-Unis, October 2006, (Ed.) M. Neumann, (Pub.) Von Ardenne Anlagentechnik GmbH. CD-Rom. *10 pages*.
- P34 J.P. Bellot, I. Daoud, B. Dussoubs, A. Jardy : Simulation de la flottation dans les poches de traitement d'acier liquide, Actes du Congrès 2009 de la Société Française de Thermique, Nice, (2009). 6 pages.
- P35 M. Bellet, H. Combeau, Y. Fautrelle, D. Gobin, M. Rady, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, C.A. Gandin, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Zaloznik : Benchmark sur la simulation des macroségrégations lors de la solidification d'un alliage : première synthèse, *Actes du Congrès 2010 de la Société Française de Thermique*, Le Touquet, 493-498 (2010). 6 pages.
- P36 A. Kumar, B. Dussoubs, M. Zaloznik, H. Combeau : Influence of Discretization of Permeability Term and Mesh Size on the Prediction of Channel Segregations, *3rd International Conference on Advances in Solidification Processes, Aachen, Allemagne*, 7-10 June 2011. 6 pages.
- P37 A. Malik, B. Dussoubs, P. Chapelle, J.P. Bellot, H. Combeau, A. Jardy : Numerical Simulation of the Melting of the Consumable VAR Electrode 2D and 3D Effects, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Nancy, France, 25-28 Septembre 2011. *8 pages*
- P38 S. Denis, J.P. Bellot, J.F. Douce, L. Mangin, B. Dussoubs, E. Gautier : Numerical Modelling of Heat Treatment: Fluid Flow-Thermal-Metallurgical-Mechanical Couplings, *Proceedings of the Quenching and Control of Distortion Conference*, September 10-13, 2012, Chicago, IL, Etats-Unis.
- P39 J. Chaulet, A. Kharicha, B. Dussoubs, S. Charmond, A. Jardy, S. Hans : DNS and Engineering Modeling of the Electroslag Remelting Process, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Birmingham, Grande-Bretagne, 08-11 Septembre 2019. *10 pages*

Publications dans des comptes-rendus de congrès sans comité de lecture

- P39 A.C. Leger, M. Vardelle, A. Vardelle, B. Dussoubs, P. Fauchais : Splat Formation : Ceramic Particles on Ceramic Substrate, Proceedings of the 8th National Thermal Spray Conference, 11-15 September 1995, Houston, TX, USA, 169-174 (1995). 6 pages.
- P40 B. Dussoubs, A. Vardelle, K-I Li, M. Vardelle, P. Fauchais : Injection and Trajectories of Particles in D.C. Plasma Spray Processes, *Proceedings of the 12th International Symposium on Plasma Chemistry*, 21-25 August 1995, Minneapolis, MN, USA, 1343-1348 (1995). 6 pages.
- P41 B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais, N.J. Themelis : Computational and Experimental Analysis of Particle Injection and Trajectories in a Plasma Spray Process, *Proceedings of the 13th International Symposium on Plasma Chemistry*, 18-22 August 1997, Beijing, China, 2056-2061 (1997). 6 pages.
- P42 B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais : Computational Analysis of a Three-Dimensional Plasma Spray Jet, *Proceedings of the International Conference on Phenomena in Ionized Gases XXIII*, 17-22 July 1997, Toulouse, France. 2 pages.
- P43 B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais, N.J. Themelis : Computational Analysis of a Three-Dimensional Plasma Spray Jet, *Proceedings of the 1st Unified Thermal Spray Conference*, 15-18 September 1997, Indianapolis, IN, USA, 557-565 (1997). 9 pages
- P44 M. Leylavergne, A. Vardelle, B. Dussoubs, N. Goubot : Comparison of Plasma Sprayed Coatings Produced in Argon or Nitrogen Atmosphere, *Proceedings of the 1st Unified Thermal Spray Conference*, 15-18 September 1997, Indianapolis, IN, USA, 459-465 (1997). 7 pages.
- P45 B. Dussoubs, F. Patisson, D. Ablitzer, J. Jourde, J.L. Houzelot : Steady-state Numerical Simulation of a Moving Bed Furnace, *Poster Proceedings of the J.K. Brimacombe Conference*, 1-4 October 2000, Vancouver, BC, Canada, 193-205 (2000). *12 pages.*
- P46 Y.Wang, B. Dussoubs, B. Appolaire, S. Denis, P. Archambault, G. Cailletaud : Modélisation du traitement thermique de revenu d'aciers, Comptes-rendus du 33^{ème} Congrès du traitement thermique et de l'ingénierie des surfaces, A3TS, Reims, 17-19 juin 2005.
- P47 Y.Wang, B. Appolaire, S. Denis, P. Archambault, B. Dussoubs : Study and Modelling of Microstructural Evolutions and Thermomechanical Behaviour during the Tempering of Steel, *Proceedings of the 1st International Conference on Distortion Engineering*, Bremen, Germany, 14-16 September 2005.
- P48 J.P. Bellot , B. Dussoubs, G. Reiter, J. Flinspach : A Comprehensive Numerical Modelling of the Electron Beam Cold Hearth Refining and Ingot Consolidation of Ti Alloys, *Proceedings of the XITC'05 2005', Xi'an International Titanium Conference,* Xi'an, China, 16-19 October 2005. 6 pages.
- P49 L. Mangin, B. Dussoubs, S.Denis, J-P. Bellot : Modelling and experimental study of the deformation of steel parts during heating, *Proceedings of the 2nd International Conference on Distortion Engineering*, Bremen, 17-19 September 2008. *8 pages.*

- P50 A. Kumar, B. Dussoubs, M. Zaloznik, H. Combeau : Effect of Discretization of Permeability Term and Mesh Size on Macro- and Meso-segregation Predictions, *Proceedings du 19^{ème} Congrès Français de Mécanique*, Marseille, 24-28 août 2009. 6 pages.
- P51 H. Combeau, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, M. Rady, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, C.A. Gandin, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Zaloznik : Formation de macroségrégations pendant la solidification d'un alliage Sn-Pb : Synthèse des premiers résultats d'un benchmark, Actes du Congrès Matériaux 2010, Nantes, octobre 2010. 6 pages.
- P52 J.P. Bellot, I. Daoud, B. Dussoubs, A. Jardy : Projet CIREM : simulation du comportement des inclusions dans les poches de traitement d'acier liquide, *Actes du Congrès Matériaux 2010, Nantes*, 2010. 6 pages.
- P53 H. Combeau, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, S. Mosbah, T. Quatravaux, M. Rady, C.-A. Gandin, B. Goyeau, M. Zaloznik : A Numerical Benchmark on the Prediction of Macrosegregation in Binary Alloys, *TMS 2011*, 140th Annual Meeting and Exhibition, Las Vegas, Etats-Unis, 27 February 3 March 2011. 8 pages.
- P54 H. Combeau, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Rady, C. A. Gandin, M. Zaloznik : First analysis of a numerical benchmark for 2D columnar solidification, *Conférence STEELSIM*, Düsseldorf (Allemagne), June 2011. *4 pages.*
- P55 H. Combeau, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, S. Mosbah, T. Quatravaux, M. Rady, C.-A. Gandin, B. Goyeau, M. Zaloznik : Analysis of a numerical benchmark for columnar solidification of binary alloys, TMS 2011, 140th. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 2012. 33:012086. *8 pages.*
- P56 M. Hugo, B. Dussoubs, A. Jardy, J. Escaffre, H. Poisson : Impact of the solidified slag skin on the current distribution during electroslag remelting, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Austin, TX, Etats-Unis, 22-25 September 2013. *9 pages*.
- P57 J. Chaulet, A. Kharicha, B. Dussoubs, S. Charmond, A. Jardy, S. Hans : DNS and Engineering Modeling of the Electroslag Remelting Process, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Birmingham, Grande Bretagne, 08-11 September 2019. *10 pages.*

COMMUNICATIONS ORALES ET POSTERS

Présentations orales

- C1 B. Dussoubs, <u>A. Vardelle</u>, K-I Li, M. Vardelle, P. Fauchais : Comparison Between Single and Double Flow Injectors In Plasma Spraying Process, 8th National Thermal Spray Conference, 11-15 September 1995, Houston, TX, USA, (1995).
- C2 <u>B. Dussoubs</u>, A. Vardelle, P. Fauchais : Projection par plasma d'arc, conférence présentée à la journée scientifique *Les outils informatiques et la simulation numérique dans le domaine des matériaux*, dans le cadre du groupe de travail "Génie des Procédés d'Elaboration des Matériaux - GPElMat", organisé par le GFGP et la SF2M, jeudi 23 Mai 1996, ENSCP Paris.
- C3 <u>A. Vardelle</u>, B. Dussoubs, M. Vardelle, P. Fauchais, N.J. Themelis : Transport and Chemical Rate Phenomena in Plasma Spray, *Gordon Conference on Plasma Chemistry*, Tilton, NH, USA, August 1996 (Conférence invitée).
- C4 <u>A. Vardelle</u>, M. Vardelle, P. Fauchais, C. Robert, B. Dussoubs : Impact and Solidification of Plasma-Sprayed Particles, *MRS Conference*, Boston, NJ, USA, December 1997 (Conférence invitée).
- C5 M. Vardelle, B. Dussoubs, A. Vardelle, <u>P. Fauchais</u>: Projection plasma : influence des fluctuations du pied d'arc sur l'injection et le traitement d'un matériau pulvérulent, *3èmes journées d'études sur la fluctuation des arcs dans les plasmatrons*, Bourges, 27-28 avril 1998.
- C6 <u>P. Fauchais</u>, A. Vardelle, M. Vardelle, B. Dussoubs : Quo Vadis Plasma Spraying ?, conférence invitée inaugurale du 15th International Thermal Spray Conference, Nice, 25-29 May 1998 (publié dans le Journal of Thermal Spray Technology).
- C7 <u>B. Dussoubs</u>, A. Vardelle, G. Mariaux : Modélisation tridimensionnelle d'un système de projection plasma à l'aide du logiciel ESTET 3.2. Club EDF les Renardières, 26 novembre (1998).
- C8 <u>B. Dussoubs</u> : Quelques aspects de la simulation numérique des fours à lits coulants utilisés dans la conversion des oxydes d'uranium. Réunion du club simulation numérique, ENSIC Nancy, 18 décembre 2000.
- C9 <u>B. Dussoubs</u>, F. Patisson : Modèle du four à lit coulant LC06 COMURHEX Malvési. Avancement des travaux de mars 1999 à juin 2002. Séminaire de formation sur le logiciel four LC, COMURHEX Pierrelatte, 01-05 juillet 2002.
- C10 <u>B. Dussoubs</u>, J.P. Bellot : Simulation of the EBCHR Remelting of Ti6-4 using CHAOS Code, Réunion LSDG2M-ALD, Hanau (Allemagne), 4 mars 2004.
- C11 <u>S. Denis</u>, B. Dussoubs, Y. Wang : Utilisation de Zebulon pour la simulation de la trempe et du revenu des aciers austénitiques, réunion du club Zebulon, 7 décembre 2004, Paris.

- C12 <u>Y. Wang</u>, S. Denis, P. Archambault, B. Dussoubs : Etude et modélisation de l'effet du revenu sur les évolutions des microstructures, du comportement thermomécanique et des contraintes résiduelles de trempe, Réunions de travail du Simulforge, Paris, 16 mars 2004, 16 septembre 2004, 08 mars 2005.
- C13 <u>J.P. Bellot</u>, B. Dussoubs, G. Reiter, J. Flinspach : Simulation numérique du procédé de refusion par bombardement électronique, Séminaire du LSG2M, 12 janvier 2006.
- C14 <u>B. Dussoubs</u>, <u>J.P. Bellot</u> : Comparison between Numerical Results with Data of Melting Trials Performed by ALD, reunion ALD LSG2M, 22 février 2006, Hanau (Allemagne).
- C15 <u>B. Dussoubs</u> : La simulation numérique au LSG2M, Séminaire du LSG2M, 8 juin 2006.
- C16 <u>L. Mangin</u>, B. Dussoubs, J.P. Bellot, S. Denis : Etude expérimentale et modélisation des processus de déformation de produits en acier au cours du chauffage, Journées MECAMAT 2008, 2 avril 2008, Paris.
- C17 <u>H. Combeau</u>, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Rady, C. A. Gandin, M. Založnik : First analysis of a numerical benchmark for 2D columnar solidification, Conférence STEELSIM, Düsseldorf (Allemagne), June 2011.
- C18 J.P. Bellot, S. Denis, B. Dussoubs, J.F. Douce, L. Mangin : Coupling of Numerical Simulations of Fluid Flow and Steel Bodies during Heat Treatments, CFD Days ArcelorMittal, Maizières-les-Metz, 31 janvier 2012.
- C19 <u>B. Dussoubs</u> : EXPLOR: Equipment for Scientific Computing in Lorraine, A mid-scale computing centre, CFD Days ArcelorMittal, Maizières-les-Metz, 02 février 2012.
- C20 <u>B. Dussoubs</u> : Le mésocentre lorrain EXPLOR, Montage du projet et GreenIT, Journées scientifiques mésocentres et France grilles, Paris, 2 octobre 2012.
- C21 <u>B. Dussoubs</u> : Les bibliothèques de calcul scientifique, application au domaine des plasmas, Journées du Réseau Plasmas Froids, La Rochelle, 23 octobre 2014

Posters

- C22 <u>B. Dussoubs</u>, C. Robert, A.C. Leger : Solidification d'une lamelle projetée par plasma, poster pour les *1ères Journées des Jeunes Chercheurs Céramistes*, 9-11 Février 1995, l'Arbresles.
- C23 <u>M. Vardelle</u>, B. Dussoubs, P. Fauchais : Dispositif de contrôle en ligne d'une installation de projection thermique industrielle, *Réunion du Club EDF "Chimie des Hautes Températures*", jeudi 4 décembre 1997, Chatou.
- C24 <u>V. Weber</u>, A. Jardy, B. Dussoubs, D. Ablitzer, S. Hans, S. Ryberon : Simulation numérique du procédé de refusion sous laitier électroconducteur, *Réunion de l'Ecole Doctorale EMMA*, 11 mai 2006, Nancy.
- C25 <u>A. Malik</u>, H. Combeau, A. Jardy, B. Dussoubs, F. Kosior : STRIPES : un logiciel de simulation tridimensionnelle des procédés d'élaboration et de la solidification, *Réunion de l'Institut Carnot ICEEL*, 19 mai 2010, Nancy.
- C26 <u>A. Malik</u>, H. Combeau, A. Jardy, B. Dussoubs, F. Kosior : Simulation tridimensionnelle des procédés d'élaboration et de la solidification, *Réunion de l'Ecole Doctorale EMMA*, 10 juin 2010, Nancy.

OUVRAGES SCIENTIFIQUES

- 01 S. Descombes, B. Dussoubs, S. Faure, L. Gouarin, V. Louvet, M. Massot, V. Miele (Eds.), *Proceedings of CEMRACS* 2012, Marseille, 16 juillet 24 août 2012, ESAIM, 43, 2013.
- O2 B. Dussoubs : Science des Matériaux Numérique, *Magazine de l'Académie Lorraine des Sciences n*°6 : *les matériaux de demain*, septembre 2017. *1 page.*

RAPPORTS SCIENTIFIQUES

- R1 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modélisation numérique du four à lit coulant LC06 pour la production d'UF₄ : Raccordement entre les différentes zones et description de la zone intermédiaire, *Rapport d'avancement COMURHEX LSGC LSG2M*, décembre 1999. *44 pages*.
- R2 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modélisation numérique du four à lit coulant LC06 pour la production d'UF4 : Influence du dépolymériseur et utilisation de fluorure d'hydrogène dilué, *Rapport d'avancement COMURHEX LSGC LSG2M*, juin 2000. *28 pages*.
- R3 B. Dussoubs, A. Génin, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer Simulation du four à lit coulant pour la production d'UF4 : Injection d'HF aqueux en bas de la zone d'hydrofluoration verticale, *Rapport d'avancement COMURHEX - LSGC - LSG2M*, septembre 2000. *27 pages*.
- R4 A. Jardy, B. Dussoubs, D. Ablitzer : Use of the Enhanced Solar Code to Simulate a Ti-6-4 Melt, *Rapport d'avancement TIMET LSG2M*, décembre 2000. *33 pages*.
- R5 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Progression Optimale de Température dans les fours à lit coulant LC06, *Rapport d'avancement COMURHEX LSGC LSG2M*, mai 2001. *43 pages*.
- R6 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Simulation du four à lit coulant LC06 : Injection de réactif gazeux en ZFV2, *Rapport d'avancement COMURHEX LSGC LSG2M*, septembre 2001. *48 pages*.

- R7 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Simulation du four à lit coulant LC06 : Remplacement de l'ammoniac injecté en zone de réduction par un mélange hydrogène azote, Rapport d'avancement COMURHEX - LSGC - LSG2M, juin 2002. 26 pages.
- R8 B. Rouaiguia, B. Dussoubs, A. Jardy : Améliorations de l'interface de saisie du logiciel SOLAR, *Rapport d'avancement LSG2M*, juin 2002. *8 pages*.
- R9 B. Rouaiguia, B. Dussoubs, A. Jardy : Recent Improvement of the SOLAR Interface, *Rapport d'avancement TIMET LSG2M*, juillet 2002. *7 pages*.
- R10 B. Dussoubs, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Prise en compte de nouvelles réactions chimiques dans la zone de réduction du modèle de four à lit coulant LC06, *Rapport d'avancement COMURHEX LSGC LSG2M*, novembre 2002. *54 pages*.
- R11 B. Dussoubs, R. Larue, JP. Bellot : Simulation of the EBCHR Remelting of Ti64 using CHAOS Code, *Rapport d'avancement ALD LSG2M*, novembre 2004. *95 pages*.
- R12 B. Dussoubs, H. Combeau : Benchmark du code SOLID Comparaison des versions 2.5 et 3.6.2, *Rapport présenté* à la réunion du Club des utilisateurs de SOLID, novembre 2005. *55 pages*.
- R13 B. Dussoubs (sous la coordination de) : Projet de création d'un Centre de Compétences Sciences Numériques, Institut Jean Lamour, *Rapport fourni dans le dossier "Institut Jean Lamour" porté par Jean Marie Dubois et fourni à nos tutelles*, décembre 2005. *85 pages*.
- R14 B. Dussoubs, S. Denis : Trempe d'un cylindre d'austénite Comparaison des résultats de Sysweld et Zebulon, , Rapport pour le Centre des Matériaux, Ecole des Mines de Paris, mars 2006. 10 pages.
- R15 B. Dussoubs, H. Combeau : Programme Cone 2D Comparaison des versions, *Rapport pour la société SCC*, avril 2006. *24 pages*.
- R16 B. Dussoubs, S. Denis : Trempe d'un cylindre de 900°C à 20°C avec transformation martensitique, *Rapport adressé au Pr. Martha Guerrero, Universitad de Nuevo Leon, Laboratorio de Ingeniería de Materiales, Mexique*, avril 2006. 15 pages.
- R17 B. Dussoubs, S. Denis : Trempe d'un cylindre d'austénite Comparaison des résultats de Sysweld et Zebulon, partie 2, *Rapport pour le Centre des Matériaux, Ecole des Mines de Paris*, mai 2006. *16 pages*.
- R18 B. Dussoubs, S. Denis : Utilisation du logiciel ZeBuLoN au LSG2M, 2002 2008, *Rapport pour le Centre des Matériaux*, *Ecole des Mines de Paris*, juillet 2008. *11 pages*.
- R19 B. Dussoubs, A. Kumar, H. Combeau : Analyse statistique des cartographies de composition dans le cadre du benchmark du projet SMACS : quelques pistes, Rapport pour le groupe de projet SMACS, janvier 2009. *21 pages*.
- R20 B. Dussoubs, F. Patisson : Effet des caractéristiques physiques des boulets entrant dans le four LC06 sur la conversion en dioxyde d'uranium, *Rapport AREVA-IJL*, février 2011. *55 pages*.

RAPPORTS DE STAGE

- R21 O. Perrin : Modification d'un programme de visualisation des résultats issus d'un modèle de four à lit coulant, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université Nancy 2,* juin 2000.
- R22 B. Rouaiguia : Développement d'un pré-processeur et d'un post-processeur pour l'interface de saisie du logiciel SOLAR, Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré, septembre 2002.
- R23 N. Benziane : Mise en place d'une démarche maintenance d'intégration des nouveaux équipements sur le périmètre prestataires chez LEGRAND Limoges (87), Rapport de stage entreprise 3^{ème} année, FITI MGP, Ecole des Mines de Nancy, INPL, septembre 2002.
- R24 S. Santos : Améliorations apportées à l'interface d'un logiciel de simulation numérique : SOLAR, *Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré,* septembre 2003.
- R25 J. Truchot : Création d'une interface graphique de visualisation de structures de solidification, *Rapport DUT* Informatique, IUT Charlemagne, Université Nancy 2, juin 2004.
- R26 K. Mouzouri : Interface graphique du logiciel de simulation numérique SOLAR : de la version 3.3 à la version 4.0, *Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré,* septembre 2004.
- R27 D. Donnot : L'interface graphique de SOLAR version 4.1, *Rapport DESS Compétence Complémentaire Informatique, ISIAL, Université Henri Poincaré,* septembre 2005.
- R28 F. Martorello : L'interface graphique de SOLAR version 4.3, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université Nancy* 2, juin 2007.
- R29 D. Diarrassouba : L'interface graphique de SOLAR version 4.5, *Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI,* septembre 2009.
- R30 O. N'Diaye : L'interface graphique de SOLAR version 4.6, *Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI,* septembre 2010.
- R31 T. Amoussa : L'interface graphique de SOLAR version 5.0, *Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI,* septembre 2011.

- R32 B. Benmessaoud : L'interface graphique de SOLAR version 5.1, *Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI,* septembre 2012.
- R33 A. Elsayed : L'interface graphique de SOLAR version 5.2, *Rapport Master Compétence Complémentaire Informatique, Faculté des Sciences Orsay, Université Paris XI,* septembre 2013.
- R34 D. Claude : L'interface graphique de SOLAR version 5.5, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université de Lorraine,* juin 2017.
- R35 G. Toussaint : L'interface graphique de SOLAR version 5.6, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université de Lorraine,* juin 2018.
- R36 F. Spatz : L'interface graphique de SOLAR version 5.7, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université de Lorraine,* juin 2019.
- R37 B. Bardet : L'interface graphique de SOLAR version 5.8, *Rapport DUT Informatique, IUT Charlemagne, Université de Lorraine,* septembre 2020.

Thèses codirigées

- T1 A. Malik : Simulation Tridimensionnelle des Procédés d'Elaboration et de Solidification, *Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine*, 28 février 2012.
- T2 M. Hugo : Modélisation de la Refusion ESR d'Aciers Spéciaux et Superalliages Base Nickel, *Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine*, 25 juin 2014.
- T3 J. Chaulet : Modélisation du Procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur : Représentation des transferts énergétiques métal-laitier, *Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine*, 11 mai 2021.

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

Activités de recherche

Je me disais que j'allais écouter vos théories, les rejeter, puis ne garder que la mienne. Comme d'habitude Dr. G. House, 2009

Mes activités de recherche s'inscrivent dans le cadre de la simulation numérique des procédés d'élaboration au sens large, à haute température (traitements de surface, synthèse des matériaux, procédés pyrométallurgiques et solidification des alliages métalliques), pour des matériaux aussi bien céramiques que métalliques.

NB : dans la mesure où chaque étude présentée ci-dessous est accompagnée d'une publication au moins, je n'en résume que les grandes lignes et je renvoie le lecteur à l'article pour plus de détails et pour les références associées.

A. Simulation tridimensionnelle du procédé de projection par plasma thermique (P1-7, P17, P25-28, P40-44, C1-7 ; P6 incluse ci-après)

Dans un premier temps, j'ai travaillé au cours de ma thèse (1994-1998) sur la modélisation tridimensionnelle du procédé de projection par plasma thermique à l'aide d'un logiciel commercial, ESTET (pour Ensemble de Simulation Tridimensionnelle des Ecoulements Turbulents). Ce code fortran était développé par la société Simulog en relation avec le Centre de Recherche d'EDF Renardières, et nous disposions des sources afin de pouvoir adapter celui-ci à notre problématique de recherche.

C'est dans les années 80 que les transferts de chaleur et de quantité de mouvement entre un écoulement à haute température et une particule unique ont commencé à être étudiés numériquement. Rapidement, les chercheurs ont conclu qu'il fallait prendre en compte un certain nombre de phénomènes dans un plasma thermique : des effets de couche limite, l'effet Knudsen, les modifications de coefficients de trainée ou la vaporisation par exemple. L'injection ponctuelle des particules, en général en 1 ou 2 points orthogonalement à l'écoulement de plasma, ainsi que la turbulence de l'écoulement et ses interactions avec le(s) jet(s) porteur(s) de particules, nécessitent une simulation tridimensionnelle pour se rapprocher des conditions expérimentales.

Ma thèse était la première tentative de simulation en 3D du procédé au sein de l'équipe plasmas du LMCTS, avec le choix d'utiliser un code commercial tridimensionnel (devant la difficulté de développer un code « maison » pour représenter l'ensemble des phénomènes) mais adaptable par l'utilisateur au procédé qu'il souhaite décrire. Mes interventions ont principalement concerné :

- Le calcul des propriétés thermodynamiques et de transport dans des gammes de températures pouvant aller de la température ambiante jusqu'à 15 000 K pour les gaz de projection (Ar, Ar-He, Ar-H₂, Ar-H₂-He et N₂-H₂). Ceci nécessitait d'une part de tenir compte des phénomènes de dissociation des molécules et d'ionisation des atomes, d'autre part d'adapter des lois de mélange pour les différentes espèces,
- Le calcul des trajectoires de particules au sein de l'écoulement,
- La simulation des interactions entre un jet à haute température, donc de densité très faible, avec un autre jet, ou avec l'air ambiant, nettement plus froid et plus dense.

Les principaux points de la thèse ont porté sur :

- L'interaction du jet de plasma avec le gaz ambiant, le gaz porteur de poudre et la cible,
- L'influence des conditions de projection sur le traitement de la poudre pour des conditions industrielles de projection,

- L'étude de l'injection, qui a montré les limitations des modèles bidimensionnels pour prédire correctement la position et la taille de la tâche d'impact des particules sur le substrat,
- L'effet, sur le traitement des particules, des fluctuations du jet induites par le mouvement du pied d'arc dans la tuyère (à l'aide d'un modèle bidimensionnel transitoire additionnel).

Lors de chaque étape du développement de la simulation, une comparaison des résultats numériques aux mesures effectuées sur des jets de plasma au laboratoire a permis de valider le code dans le cadre de la projection par plasma thermique.

À titre d'exemple, il a été possible de comparer l'effet de la position du lieu d'injection sur la répartition des particules au niveau du substrat lorsqu'on injecte deux matériaux différents. La figure 1 présente le domaine de calcul utilisé : l'entrée des gaz du plasma est à gauche, le substrat à droite, positionné à 100 mm. L'injection des poudres peut se faire soit par un seul injecteur perpendiculaire au jet de plasma, soit par 2 injecteurs en regard (le domaine est tridimensionnel, mais seul le plan contenant les injecteurs est présenté ici).



Figure 1 : Domaine de calcul utilisé.

Les figures 2 a) et b) présentent la distribution des particules dans le plan correspondant à la figure 1, respectivement selon que les 2 poudres (alumine et fer) sont injectées par le même injecteur (situé en haut), ou que chacune est injectée par un des deux injecteurs.

Dans le cas a), les particules sont mélangées au départ, mais du fait de la densité plus grande de celles de fer, leur pénétration dans le plasma au point d'injection est plus importante, d'où un décalage entre les distributions au niveau du substrat.

Dans le cas b), le débit de gaz porteur des particules peut être adapté pour chaque type de matériau. En conséquence, il est possible de faire se superposer les deux distributions au niveau du substrat.



Figure 2 : Distribution des particules d'alumine et de fer au niveau du substrat, lorsque les deux poudres sont injectées a) par le même injecteur ; b) chacune par un injecteur.

On notera dans cette activité quelques constantes qui se maintiendront dans mes activités de modélisation postérieures : la nécessité de pouvoir adapter, lorsqu'on l'utilise, un code généraliste. Ce dernier permet certes de s'affranchir de la complexité de développement, pour par exemple traiter les problèmes tridimensionnels, mais n'est utilisable pour simuler les procédés complexes que si on peut « entrer » au sein de celui-ci ses propres lois et codes de traitement ; également la nécessité de simuler des procédés à différentes échelles en utilisant des lois de passage entre ces différentes échelles.

Ci-après est inséré l'article suivant :

B. Dussoubs, A. Vardelle, G. Mariaux, N.J. Themelis, P. Fauchais : Modeling of Plasma Spraying of Two Powders, *Journal of Thermal Spray Technology* <u>10</u> (1), 105-110 (2001). *6 pages.*

Modeling of Plasma Spraying of Two Powders

B. Dussoubs, A. Vardelle, G. Mariaux, N.J. Themelis, and P. Fauchais

(Submitted 27 July 1999; in revised form 19 October 2000)

The behavior of metal and ceramic powders co-sprayed through a plasma jet was simulated using a commercial fluid dynamics model in which the particles are considered as discrete Langrangian entities. Computations were carried out for the plasma jet and the injected particles using (a) a steady-state three-dimensional (3-D) jet and (b) a simplified two-dimensional (2-D) model. An analytical method was used to estimate the appropriate injection velocities for the metal and ceramic particles, injected through opposing nozzles perpendicular to the plasma flow, so that their "mean" trajectories would impinge on the same area on the target surface. Comparison of the model projections with experimental measurements showed that this method of computation can be used to predict and control the behavior of particles of widely different properties.

Keywords	functionally graded materials, particle injection, parti-		
	cle modeling, plasma co-spraying		

1. Introduction

The simultaneous spraying of metal and ceramic powders can be used to produce what is called functionally graded materials (FGM) that exhibit continuous or stepwise variations in composition and/or microstructure.^[1] One of the key applications is to reduce the interface effects between coating and substrate, since co-spraying allows a gradual variation of properties. For example, this technique has proven useful in avoiding thermal expansion coefficient mismatch in thermal barrier coatings, thus limiting high stress regions and improving coating lifetime.

In plasma co-spraying, it is essential that the "splats" from the two types of particles overlap on the substrate. When using a single plasma torch system, two methods of powder injection can be used in the production of FGM.

- The two powders are mixed and fed through a single injection port; in this case, the higher density particles must be of smaller size than the lighter ones.
- The two types of particles are injected through two separate injectors. In this case, the carrier gas flow, injector-to-sub-strate distance, and angle between injector and plasma jet axis can be varied separately so as to obtain overlapping of splats on the substrate.

In the production of FGM by plasma co-spraying, the dispersion of particles in the jet flow and the deposition efficiency must be carefully controlled in order to produce coatings with a consistent composition. Deviations from the planned gradient occur when the different powders fed into the plasma do not impinge on the substrate at the same location, leading to inhomogeneities. Therefore, for given plasma operating conditions, it is important to understand the relationship between particle injection parameters and the resulting trajectories and temperatures. Mathematical simulation can be of great help in this matter, as will be discussed in the following sections of this paper. For the purposes of this work, the powder system iron-aluminum oxide was selected because of the range of properties offered by these two materials.

2. Mathematical Model

Computations were carried out for the plasma jet and the injected particles using (a) a steady-state three-dimensional (3-D) jet and (b) a simplified two-dimensional (2-D) model.

2.1 Modeling of 3-D Plasma Jet

The model of the plasma jet issuing in air and impinging normally on a flat substrate is based on the following assumptions:^[2]

- steady-state plasma jet flow (*i.e.*, neglecting the effect of the arc movement within the nozzle);
- turbulent flow except in the potential core and close to the walls (*i.e.*, front surface of the gun, injectors, and target surface);
- plasma in local thermodynamic equilibrium and optically thin;



Fig. 1 Calculation domain

B. Dussoubs, LSG2M-ENSMN, Parc de Saurupt, 54042 Nancy, Cedex, France; **A. Vardelle, G. Mariaux**, and **P. Fauchais**, SPCTS, University of Limoges, 87060 Limoges, France; and **N.J. Themelis**, Earth and Environmental Engineering, Columbia University, New York, NY 10027. armelle@ensil.unilim.fr.

- no chemical reaction in the gas phase;
- multicomponent flow consisting of the plasma-forming gas, powder carrier gas, and ambient gas; and
- target surface kept at a constant temperature.

The governing equations of the gas flow (continuity equation for each component of the mixture, Navier-Stokes equations, and energy conservation equation for multicomponent gas system) are solved using the commercial code, ESTET 3.2.^[3] This code is a 3-D computational fluid dynamics package simulating transient or steady, compressible, turbulent, and multicomponent reactive flow. Turbulence is modeled by the the *k*- ε model with the correction of Launder and Sharma, for low Reynolds numbers.^[4] The thermodynamic and transport properties of the gas mixture are calculated using the laws of mixtures and the data of pure gases.^[5] Figure 1 shows the computation domain, the boundary conditions, and the computational mesh.

The profiles of gas velocity and temperature at the nozzle exit are imposed $as^{[6]}$

$$v = v_{\max} * \left(1 - \left(\frac{r}{R}\right)^2 \right)$$
 (Eq 1)

$$T = \left(T_{\max} - T_{m,Cu}\right) * \left(1 - \left(\frac{r}{R}\right)^{4.5}\right) + T_{m,Cu}$$
(Eq 2)

where v_{max} and T_{max} are the velocity and temperature of the

plasma jet on the torch axis, T_m , Cu the melting point of copper, and R the nozzle radius; v_{max} and T_{max} are determined from the plasma-forming gas mass flow rate and the net power input to the gun.

The conservation equations for the mean values of turbulent flow, turbulent energy, and its rate of dissipation are expressed by Eq 3. Table 1 shows the transport coefficients and the source terms for all variables involved in these calculations.

$$\operatorname{div}\left(\rho\varphi\mathbf{v}\right) = \operatorname{div}\left(\Gamma_{\varphi} \operatorname{\mathbf{grad}} \varphi\right) = S_{\varphi} \tag{Eq 3}$$

2.2 Modeling of 2-D Plasma Jet

The 2-D steady-state model is based on the same assumptions as the 3-D model. In addition, the jet flow is assumed to have azimuthal symmetry and the governing equations are written in cylindrical-polar coordinates. The effect of the carrier gas flow on the plasma jet cannot be taken into account in the 2-D model. However, earlier experiments and mathematical simulations have shown that this effect is negligible for the spray parameters of this study, where the powder is injected externally to the gun and the carrier gas flow rate is less than 10% of the plasma-forming gas flow rate.^[7]

2.3 Modeling of Particle Dynamics and Heating

The acceleration and heating of particles are calculated with a Lagrangian scheme under the following assumptions:^[8–10]

Table 1	Transport coefficients and source terms to	or the equations of the now
φ	Γ_{arphi}	Σ_{arphi}
1	0	$\operatorname{div}(ho \mathbf{v})$
u	$\mu_{ m eff}=\mu+\mu_{ m r}$	$-\frac{\partial p}{\partial x} + \rho f_{x} + \operatorname{div}\left(\mu_{eff} \frac{\partial v}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial x}\left(-\frac{2}{3}\mu_{eff} \operatorname{div} \mathbf{v}\right) - \frac{2}{3}\frac{\partial}{\partial x}(\rho k)$
v	$\mu_{\scriptscriptstyle eff}$	$-\frac{\partial p}{\partial y} + \rho f_y + \operatorname{div}\left(\mu_{eff} \frac{\partial y}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(-\frac{2}{3} \mu_{eff} \operatorname{div} \mathbf{v}\right) - \frac{2}{3} \frac{\partial}{\partial y} (\rho k)$
W	$\mu_{e\!f\!f}$	$-\frac{\partial p}{\partial z} + \rho f_z + \operatorname{div}\left(\mu_{eff}\frac{\partial y}{\partial z}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(-\frac{2}{3}\mu_{eff}\operatorname{div}\mathbf{v}\right) - \frac{2}{3}\frac{\partial}{\partial z}(\rho k)$
Η	$\rho(\kappa \land C_P \cdot \rho) + \mu_t \land \Pr_t$	$S_H + \mathbf{v} \cdot \operatorname{grad} p$
X_i	$\boldsymbol{ ho}\cdot D_i + \boldsymbol{\mu}_t \ / \ \mathrm{Sc}_t$	0
k	$\mu + \mu_t / \sigma_k$	$-\frac{2}{3}\rho k \operatorname{div} \mathbf{v} - \frac{2}{3}\mu_t \left(\operatorname{div} \mathbf{v}\right)^2 + G + \rho(G_k - \varepsilon)$
ε	$\mu + \mu_t / \sigma_{\varepsilon}$	$-\frac{2}{3}C_{\varepsilon_{1}}\rho\varepsilon \operatorname{div} \mathbf{v} - \frac{2}{3}\mu_{\iota}C_{\varepsilon_{1}}\frac{\varepsilon}{k}\left(\operatorname{div} \mathbf{v}\right)^{2} + \rho\frac{\varepsilon}{k}\left(C_{\varepsilon_{1}}G_{k} - C_{\varepsilon_{2}}\varepsilon\right) + \frac{\varepsilon}{k}C_{\varepsilon_{1}}C_{\varepsilon_{3}}G$

 Table 1
 Transport coefficients and source terms for the equations of the flow

$$G_{k} = \frac{\mu_{t}}{\rho} \left[2 \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)^{2} + 2 \left(\frac{\partial v}{\partial y} \right)^{2} + 2 \left(\frac{\partial w}{\partial z} \right)^{2} + \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)^{2} + \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right)^{2} + \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right)^{2} \right]$$

$$G = \frac{1}{\rho} \frac{\mu_{t}}{\sigma_{k}} \frac{\partial \rho}{\partial x_{i}} \rho f_{i}$$

and

$$\mu_{t} = \rho C_{\mu} \frac{k^{2}}{\varepsilon}$$

- spherical particles,
- no interactions between particles,
- possible interactions with the walls present in the domain,
- turbulent dispersion of particles,
- lumped capacitance method for particle heating, and
- modification of plasma-particle transfer coefficients to account for the variation of gas properties in the boundary layer and particle evaporation.

The particle size distributions were in the commercially used range and 8 to 12 classes of particle sizes were used in the computation. About 2500 particle trajectories were calculated for

Table of Symbols			
Ca	drag coefficient		
C_D	specific heat. J/kg K		
d	diameter. m		
\tilde{F}_{D}	drag force, kg m/s ²		
f	body force, kg m/s^2		
g	gravity vector. m/s^2		
ĥ	heat-transfer coefficient, W/m ² K		
H	specific enthalpy, J/kg		
k	kinetic turbulent energy, m^2/s^2		
т	mass, kg		
Ν	mass flux, kg/m ² s		
OM	position vector, m		
р	pressure, Pa		
Q_n, Q_n	rate of heat transfer, W		
r	radius, m		
R	radius of the powder injector, m		
S	source term for the equations of conservation		
Т	temperature, K		
V	velocity vector, m/s, of components u, v, and w in		
	the Cartesian frame (x, y, z)		
X	mass fraction		
	Greek Symbols		
£	rate of dissipation of turbulent energy m^{2}/s^{3}		
En En	total emissivity		
0 0	variable		
ΔH	heat of reaction, J/kg		
Γ	transport coefficient, kg/m s		
κ	thermal conductivity, W/m K		
μ	dynamic viscosity, kg/m s		
ρ	density, kg/m ³		
σ	Stefan-Boltzmann's constant, W/m ² K ⁴		
Subscripts			
	ambiant tamparatura		
u B	boiling		
off	offective		
a	gas		
8 max	maximum		
m Cu	melting of copper		
n,cu n	narticle		
van	vaporization		
·r			

each run. The distributions of particle velocity and position at the injector exit were obtained from an earlier calculation of gasparticle interactions inside a part of the piping system and the injector. Since the trajectories of particles in the jet flow are, to a great extent, conditioned by the injection conditions of the powder, the model must represent the latter in a realistic way. The energy balance on a particle of mass m_p yields

$$m_P \frac{dv_P}{dt} = -C_D \pi \frac{d_P^2}{4} \rho_{\infty} \frac{|\mathbf{v}_P - \mathbf{v}_{\infty}| (\mathbf{v}_P - \mathbf{v}_{\infty})}{2} + m_P \mathbf{g}$$
(Eq 4)

Integrating Eq 4 twice provides the position vector of the particle as a function of time. The correlation of Lee *et al.*^[11] was chosen to correct the value of the drag coefficient C_D for thermal gradients in the boundary layer around the particle. In computing the dispersion of particles due to turbulence, it is necessary to "re-create" their instantaneous velocities from the mean values of the flow field. This is done by using the Csanady equations.^[12–14]

As the particles are heated, they are subjected to the following sequence:

• Heating of solid particle

$$Q_n = h\pi d_P^2 (T_{\infty} - T_P) - \varepsilon_R \sigma \pi d_P^2 (T_P^4 - T_a^4) = m_P C_{P_P} \frac{dT_P}{dt}$$
(Eq 5)

• Melting at constant temperature

The net amount of heat received by the particle from the plasma is converted to latent heat of fusion:

$$Q_n = \frac{dX_P}{dt} \frac{\pi d_P^3 \Delta H_M \rho_P}{6}$$
(Eq 6)

where X_p is the molten mass fraction of the particle.

Heating of liquid particle and evaporation

$$Q_n = h\pi d_P^2 (T_{\infty} - T_P) - \varepsilon_R \sigma \pi d_P^2 (T_P^4 - T_a^4)$$

= $m_P C_{P_P} \frac{dT_P}{dt} + \pi d_P^2 N_{vap} \Delta H_{vap}$ (Eq 7)

In this stage, the particle diameter decreases proportionally with the last term of the above equation. The heat-transfer coefficient in the above equations is calculated from the Nusselt number, Nu, using the correction of Lee *et al.*^[11] The value of N_{vap} , the mass flux of vapor escaping from the particle surface, is determined from the equation proposed by Yoshida.^[15]

4. Results and Discussion

4.1 Plasma Spraying Conditions

The spraying parameters used as input data for the model are shown in Table 2 and the characteristics of the feedstock mate-

Table 2 Plasma spray parameters

Gun nozzle exit	7 mm
Plasma-forming gas	45 slm Ar + 15 slm H ₂
Gas mass flow rate	1.25 10 ⁻³ kg s ⁻¹
Arc current	600 A
Effective power	21.5 kW
Stand-off distance	100 mm



Fig. 2 Radial particle distribution at the exit of the injector: (a) alumina powder and (b) iron powder

Table 3 Po	owder	characte	eristics
------------	-------	----------	----------

Material	Alumina	Iron
Melting point	2326 K	1810 K
Boiling point	3800 K	3023 K
Mass density	3900 kg m ⁻³	7800 kg m ⁻³
Specific heat (300 K)	1363 J kg ⁻¹ K ⁻¹	600 J kg ⁻¹ K ⁻¹
Thermal conductivity (300 K)	5 W m ⁻¹ K ⁻¹	35 W m ⁻¹ K ⁻¹
Particle size	10–55 µm	22–45 µm
Powder feed rate	15 g min ⁻¹	15 g min ⁻¹

rials in Table 3. The plasma jet issued in air at atmospheric pressure. The two powders were injected through 1.8 mm diameter ports located at 4 mm downstream of the nozzle exit and 9 mm off the jet centerline.

The simulation of the pneumatic transport of powder in the injector showed that the velocity and location of the iron particles at the injector exit depend very little on the particle size of the iron particles. The same effect was predicted for the alumina particles, except for the lightest ones of diameter less than 20 μ m. The latter were more subjected to turbulent dispersion and collisions with the tube wall; about 25% of these finer particles were close to the wall and exhibited a low velocity,^[16] as shown in Fig. 2. This figure shows the radial distribution of the particles at the injector exit whose radius is 0.9 mm. Position zero corresponds to the injector centerline and position 0.9 to the injector wall. Three particle size groups have been considered for alumina and iron powders: <20 μ m, 20 to 50 μ m, and >50 μ m, the total powder percentage for each of the three particle groups being equal to 100%.

The profiles of particle and gas velocity at the injector exit were practically identical, the velocity of the iron particles being lower than that of alumina particles, as expected.

4.2 Comparison with Measurements

For alumina particles that attained temperatures above 1800 K, the model predictions for the radial distribution of particle number density, at 100 mm from the nozzle exit, were found to

Normalized number of particles



Fig. 3 Comparison of calculated and measured particle jet spreads at a location of 100 mm downstream of the nozzle exit

be in good agreement with experimental measurements,^[17,18] as shown in Fig. 3. This temperature corresponded to the low limit of detection of the experimental device used to measure particle number densities from their thermal radiation.

4.3 Co-Spraying of Alumina and Iron Powders

Using a Single Injector. In this case, the alumina and iron powders were assumed to be mixed in the powder feed line and injected in the plasma jet through a single injector normal to the jet axis (Fig. 1). The carrier gas flow rate of argon was equal to 4 slm. As shown in Fig. 4, this ensured that the distribution of the alumina particles was nearly symmetrical about the jet centerline at the substrate location. However, the alumina and iron spray spots on the substrate did not overlap completely, as the heavier iron particles penetrated deeper the plasma jet due to their higher momentum at the injection point.




Fig. 4 Distribution of particle number vs vertical distance when alumina and iron powders injected through one injector

As noted earlier, when using a single common injector, the only way to provide for better overlapping of the ceramic and metal particle impingement spots on the substrate is by using a finer iron powder. However, this may result in overheating of the metal powder and a corresponding increase in particle evaporation or oxidation.

Powder Injection Using Two Diametrically Opposed Injectors. In this case, it was assumed that the alumina and iron powders were injected through two injectors normal to the jet centerline and diametrically opposed. Thus, the mixing of powders occurred within the plasma jet.

To reduce the number of numerical experiments, a 2-D analytical model was used to determine the injection velocity that would provide for iron and alumina particles of specific sizes to "land" on the substrate surface at the jet centerline.^[7] The controlling kinetic energy balance is obtained by equating the rate of change of momentum of the particles to the drag force F_d in their direction of motion, *i.e.*, in the direction *y*, which is perpendicular to the jet flow (direction *x*):

$$\frac{d(m_p v_p)}{dt} = F_d \tag{Eq 8}$$

where m_p is the mass of a particle, v_p its velocity, and F_d the drag force acting on the particle. For the Stokes region and a quasi-spherical particle,

$$F_d = 3\pi d_p v_p \mu \tag{Eq 9}$$

By substituting in the energy balance equation (Eq 8) and integrating from time t = 0 (entry to jet cone) to t, under the assumption that gas viscosity is constant, the following equation is obtained:

$$\frac{v_t}{v_0} = e^{-\frac{18\mu u}{\rho_p d_p^2}}$$
(Eq 10)

This equation shows that the velocity of the injected particles across the jet cone (direction y) decreases exponentially with time of travel. The power exponent is the dimensionless time of travel; the grouping



Fig. 5 Particle injection velocity and carrier gas flow rate as a function of particle size for alumina and iron powders under the spray parameters of the study

$$\frac{\rho_p d_p^2}{18\mu} \tag{Eq 11}$$

is a reference time characteristic of the particles/plasma system.

The total time of flight of the particle in the horizontal direction is determined by the distribution of jet velocity within the cone envelope and by the above "reference time" group. The distance traveled by the particles in the direction y is related to time t by integrating Eq 10:

$$y = v_0 \frac{\rho_p d_p^2}{18\mu_g} \left(1 - e^{-\frac{18\mu}{\rho_p d_p^2}} \right)$$
(Eq 12)

By arbitrarily setting the radial distance *y* to be traveled by all particles at 10 mm and using Eq 12 and the computed residence time, the required injection velocity, v_0 , can be calculated for each material and average particle size, so that all particles "land" on the same area on the substrate (Fig. 5). The corresponding carrier gas volume flow rate is then calculated as the product of this injection velocity and the cross-sectional area of the injector. This simplified calculation resulted in a computed carrier gas flow rate of 2.5 slm for the 35 μ m iron particle, *i.e.*, the average size of particle distribution, in comparison to the 4 slm flow rate used for the alumina powder. Figure 6 shows the predicted distribution of particle number density at the substrate location.

As would be expected, the computations also showed that the finest particles did not travel as far in the radial direction as the larger ones. This effect was less marked for the heavier iron particles. It is interesting to note that for the plasma co-spraying of zirconia and NiCrAlY, Smith *et al.*⁽¹⁾ injected the ceramic powder, through an injector 90° to the plasma jet and located below the horizontal torch axis, while the metal powder injector was located above the torch axis and at an angle of 105°. Numerical simulation using the same injector configuration for the plasma powder system of this study resulted in good overlapping of both particle spray spots on the substrate, when carrier gas flows of 4 slm for alumina and 1.5 slm for iron were used. In this case, the



Fig. 6 Distribution of particle number vs vertical distance when alumina and iron powders are injected through two diametrically opposed injectors



Fig. 7 Comparison of 2-D and 3-D predictions of the radial distribution of gas temperature

stronger interaction between particles and plasma jet helps to disperse the iron particles so that there is no segregation by particle size.

4.4 Comparison between 2-D and 3-D Computations

There is a reasonable agreement between the 2-D and 3-D profiles, even if the lateral spread of heat is a little faster with the 2-D model (Fig. 7).

5. Conclusions

The 2-D and 3-D computational fluid dynamics techniques have been applied to analyze the jet flow and particle behavior for the plasma co-spraying of a metal and a ceramic powder.

The 3-D modeling of the steady-state plasma process predicts reasonable particle history in the jet and distribution of both powders on the substrate. It makes it possible to take into account the effect of the carrier gas flow rate and the lateral injection of powders. Such a model can help to determine the particle size distribution and the conditions of powder injection so that the particle spray jets of the metal and ceramic powders coincide on the same spot on the target surface.

References

- W. Smith, T.J. Jewett, S. Sampath, C C. Berndt, H. Herman, J. Fincke, and R.N. Wright: *Thermal Spray: Practical Solutions for Engineering Problems*. C. C. Berndt, ed., ASM International, Materials Park, OH, 1996, pp. 317-24.
- M. Leylavergne, A. Vardelle, B. Dussoubs, and N. Goubot: J. Thermal Spray Technol., 1998, vol. 7 (4), pp. 527-36.
- 3. J.D. Mattei and O. Simonin: *Logiciel ESTET, Manuel Théorique de la Version 3.1*, EDF Report HE 44/92.38B, 1992 (in French).
- B.E. Launder and B.I. Sharma: Lett. Heat Mass Transfer, 1974, vol. 1, pp. 131-38.
- M.I. Boulos, P. Fauchais, and E. Pfender: *Thermal Plasmas, Fundamental and Applications*, Plenum Press, New York, NY, 1995, vol. 1.
- C.H. Chang and J.D. Ramshaw: Plasma Chem. Plasma Processing, 1993, vol. 13 (2), pp. 189-209.
- B. Dussoubs: Ph.D. Thesis, University of Limoges, Limoges, France, 1998, 23-1998.
- J. Pozorski and J.P. Minier: Lagrangian Modeling of Turbulent Flows, EDF Report HE 44/94.106, 1994.
- M. Vardelle, A. Vardelle, P. Fauchais, and M.I. Boulos: *AIChE J.*, 1983, vol. 29 (2), 1983, pp. 236-43.
- E. Pfender and Y.C. Lee: *Plasma Chem. Plasma Processing*, 1985, vol. 5 (3), pp. 211-37.
- 11. Y.C. Lee, Y.P. Chyou, and E. Pfender: *Plasma Chem. Plasma Processing*, 1985, vol. 5 (4), pp. 391-409.
- 12. G.T. Csanady: J. Atm. Sci., 1963, vol. 20, pp. 201-08.
- 13. A. Papoulis: Probability, Random Variables and Stochastic Processes, McGraw-Hill, New York, NY, 1965.
- 14. S.B. Pope: Progr. Energy Combust. Sci., 1985, vol. 11, pp. 119-92.
- 15. T. Yoshida: Ph.D. Thesis, University of Tokyo, Tokyo, 1976.
- M. Vardelle, A. Vardelle, P. Fauchais, B. Dussoubs, T.J. Roemer, R.A. Neiser, and M.F. Smith: *Thermal Spray: Meeting the Challenges of the 21st Century*, C. Coddet, ed., ASM International, Materials Park, OH, 1998, pp. 887-94.
- B. Dussoubs, A. Vardelle, M. Vardelle, P. Fauchais, and N. J. Themelis: *Proc. 13th Int. Symp. on Plasma Chemistry, Beijing, Aug. 18-22, 1997*, C. K. Wu, ed., Beijing University Press, Beijing, 1997, pp. 2056-61.

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

B. Simulation du procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure (P8-10, P29-30, P32, P45, C8-9 ; P9-10 incluses ci-après)

Par la suite, j'ai été recruté au LSG2M, à l'Ecole des Mines de Nancy, au sein de l'équipe « procédés d'élaboration » afin de développer (1999-2002) un code simulant le procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure dans un four à lit coulant, étape postérieure à la purification du minerai et préalable à son enrichissement, dans la filière française d'élaboration du combustible nucléaire civil. Cette action, débutée en 1995, a d'abord consisté à modéliser dans sa globalité et sa complexité un réacteur de génie des procédés utilisé à une échelle industrielle. Entre autres difficultés de cette modélisation, on peut citer la taille (9 m de long avec une partie verticale et une autre horizontale, pour 0,25 à 0,5 m de diamètre pour l'ensemble du réacteur) et surtout les différentes échelles impliquées (le réacteur est partiellement rempli de boulets d'une taille moyenne de 2 cm, chacun siège de réactions gaz-solide), la complexité de l'écoulement (le solide descend par gravité dans le réacteur, et rencontre à contre-courant du fluorure d'hydrogène gazeux), les différentes réactions mises en jeu (réduction d'une part, hydrofluoration d'autre part qui est par ailleurs fortement exothermique), l'hostilité du milieu (températures élevées, radioactivité, présence de fluorure d'hydrogène gazeux) qui empêche des mesures in-situ, etc.

La figure 3 présente le four LC. Dans la première zone (zone de réduction), du trioxyde d'uranium est introduit sous forme de boulets qui rencontrent à contre-courant un flux d'ammoniac craqué. A la fois par calcination et par réduction à l'hydrogène issu du craquage de l'ammoniac, UO₃ se transforme en U_3O_8 . Une seconde réduction conduit au dioxyde d'uranium UO₂.

Dans la deuxième partie du four (zone d'hydrofluoration verticale puis zone d'hydrofluoration horizontale), les boulets de dioxyde d'uranium rencontrent cette fois du fluorure d'hydrogène à contre-courant. Une réaction d'hydrofluoration conduit à former le tétrafluorure d'uranium UF₄ en sortie de four. Ce dernier sera transformé ultérieurement en hexafluorure UF₆ à l'usine de Pierrelatte, étape ultime avant l'enrichissement de l'uranium. Des moufles sont disposés dans différentes zones du four afin de réchauffer localement les produits. Dans la zone d'hydrofluoration verticale, un échangeur de chaleur évite une trop grande élévation de température du fait de l'exothermicité de la réaction d'hydrofluoration.

L'opération des fours sur le site industriel de la société partenaire Comurhex, filiale de Framatome, était déjà optimisée, mais fortement basée sur la compétence des opérateurs qui se transmettaient des règles génération après génération (par exemple, en cas de montée en température trop forte dans une zone d'hydrofuoration, les boulets peuvent se ramollir et boucher la descente des suivants, d'où un accroissement du phénomène par la stagnation des boulets réagissant. Les opérateurs savaient alors qu'il fallait taper avec un maillet sur les parois du four afin de forcer la descente des boulets). Par ailleurs, les boulets sortant du four pouvaient afficher un taux de conversion de 95% et plus, mais un gain de 1% de conversion dans les 5% les plus difficiles à atteindre, pouvait se traduire par un gain financier non négligeable. Un modèle du procédé, capable de prédire le comportement des fours de façon globale, et pouvant par la suite être utilisé pour l'optimisation du procédé (à fins de gains de taux de conversion) ou pour une étude des effets de telle ou telle modification des conditions d'utilisation (limitation des émissions d'ammoniac liées à la réaction de réduction en entrée du four) pouvait s'avérer extrêmement utile.

Le modèle développé fait intervenir plusieurs échelles : la simulation du réacteur global est réalisée grâce à une méthode aux volumes finis en 2 dimensions dans sa partie verticale. La partie horizontale, traversée par une vis sans fin pour l'extraction du solide, est, elle, modélisée via une approche de type systémique (succession de réacteurs parfaitement agités). Pour ne pas avoir à modéliser chaque boulet indépendamment de ses voisins à l'intérieur du réacteur, une loi de temps caractéristiques additifs permet de modéliser les réactions à cette échelle.



Horizontal hydrofluorination zone

Figure 3 : Représentation schématique du four LC

La figure 4 présente un résultat typique issu des simulations, à savoir la carte de température dans les différentes zones du four. La zone de température élevée en haut de la zone de réduction est le lieu de la première réduction ($UO_3 \rightarrow U_3O_8$). En bas de cette zone, la température décroit nettement, du fait qu'une partie de la vapeur d'eau produite par la réaction d'hydrofluoration dans la zone inférieure est injectée dans la zone de réduction.

Dans la zone d'hydrofluoration, la réaction correspondante est très exothermique, mais le pic de température est situé plutôt en bas de la zone verticale. En effet, du fait du contre-courant, les boulets d'UO₂ peu ou pas converti en haut rencontrent peu de fluorure d'hydrogène car ce dernier, injecté en sortie du four, a déjà été consommé en amont. À contrario, le gaz « frais » entrant dans le four rencontre des boulets proches de leur sortie et déjà fortement convertis. Dans les deux cas, la réaction se produit faiblement. C'est donc dans une zone intermédiaire qu'elle est la plus forte, quand des boulets encore peu convertis rencontrent suffisamment de gaz n'ayant pas encore réagi.





Figure 4 : Carte de température dans le four LC

Les résultats obtenus par le modèle ont été comparés aux rares mesures expérimentales disponibles : profils axiaux de température en conditions nominales de fonctionnement, taux de conversion moyen des boulets en sortie de four, etc. Par la suite, des cartographies globales de température et de taux de conversion, entre autres, ont permis de mettre en lumière certaines caractéristiques : dans la zone verticale, la conversion n'est pas constante radialement, elle est plus importante près des parois, dans les zones les plus froides. Par ailleurs, une optimisation de la conversion passe par la rencontre des boulets peu transformés avec du gaz « frais » disponible. Or la construction même du four fait que le gaz frais rencontre des boulets très convertis (en sortie de four) et qu'à contrario, en entrée, les boulets peu convertis rencontrent le gaz résiduel qui a traversé tout le lit. Notre modélisation a ainsi pu proposer des pistes d'optimisation du procédé, via des injections transversales de gaz réactif : son injection dans les zones plus chaudes permet d'abaisser localement la température, ce qui favorise la conversion. Un four moins long peut alors produire un tétrafluorure en plus grande quantité. Ceci a été corroboré par des essais menés sur un des fours de l'usine de Malvési, et les injections transversales ont d'ailleurs été adoptées industriellement.

Je présente ci-dessous un exemple d'utilisation du modèle : l'étude des effets de la variation de certains paramètres opératoires, ici le débit de HF entrant dans le four.

La figure 5 montre les isovaleurs de fraction massique de tétrafluorure d'uranium et de température dans un cas de référence, alors que sur la figure 6, on observe les mêmes résultats si le débit d'entrée de fluorure d'hydrogène est augmenté de 20%.



*Figure 5 : Isovaleurs dans la zone d'hydrofluoration verticale a) fraction massique d'UF*₄*, b) température* °C*. Cas de référence.*



Figure 6 : Isovaleurs dans la zone d'hydrofluoration verticale a) fraction massique d'UF₄, b) température °C. Cas où le débit d'entrée de HF est augmenté de 20% par rapport au cas de référence.

Dans les conditions de fonctionnement de référence, le débit de fluorure d'hydrogène entrant dans la zone d'hydrofluoration verticale ne dépasse que légèrement la quantité stœchiométrique requise pour une conversion complète du dioxyde d'uranium. Comme on peut le voir sur la figure 6, un excès de HF favorise la conversion dans la zone d'hydrofluoration verticale. En bas de cette zone, la fraction massique moyenne d'UF₄ est plus élevée de 12% par rapport à celle dans le cas de référence. De la même façon, le long de la paroi extérieure du four, plus froide et où la conversion est plus importante, du HF reste disponible jusqu'à une hauteur plus élevée, entraînant ainsi un plus grand écart à l'équilibre, et donc un taux d'hydrofluoration plus élevé.

On pourrait donc considérer cette augmentation d'apport en gaz comme bénéfique à la conversion (à relativiser toutefois du fait de la présence plus importante de HF dans les gaz rejetés en regard de sa nocivité). Mais étonnamment, on constate que la fraction massique d'UF₄ à la sortie du four est inférieure à celle du cas de référence ! Ce résultat surprenant s'explique par le comportement des réactifs dans la zone de réduction.

En effet, si on augmente le débit de gaz en entrée, toutes choses égales par ailleurs, le débit de gaz provenant de la zone d'hydrofluoration et entrant par le bas de la zone de réduction augmente aussi, ce qui réduit la température dans cette zone, et défavorise la réduction. Les boulets entrant en zone d'hydrofluoration sont donc moins convertis en UO₂. Ceci révèle la forte interdépendance entre les zones. Si une augmentation du débit d'entrée de HF est une solution envisageable pour

favoriser la production d'UF₄, il faut donc faire attention à réduire le débit gazeux entrant dans la zone de réduction depuis la zone d'hydrofluoration.

Nous avons également mené une étude sur la faisabilité du remplacement de l'ammoniac partiellement craqué en zone de réduction par un mélange hydrogène-azote nettement moins nocif. Les calculs ont montré que ce remplacement est possible, mais à condition d'introduire suffisamment d'hydrogène pour assurer la réduction complète du trioxyde d'uranium, et de réduire la température, qui n'est plus diminuée du fait de l'absence de craquage endothermique.

Nous avons eu l'occasion, lors de cette étude, de développer un code de calcul d'une part très intéressant sur un plan de recherche, à la fois pour les problématiques numériques que nous avons dû résoudre et pour les connaissances scientifiques que nous avons acquises, et d'autre part directement appliqué à des problématiques industrielles et utilisable dans le secteur aval. Le code a d'ailleurs été transféré aux utilisateurs industriels lors d'une semaine de formation sur site que j'ai menée. Il a par la suite été utilisé comme outil prédictif par les ingénieurs de l'usine.

Dans cette étude, on retrouve l'aspect multi-échelle et l'utilisation de lois de passage entre ces échelles, mais cette fois nous avons entièrement développé un code « maison » dédié, qui fait intervenir des approches à la fois mécanistique et systémique. Enfin, le modèle simule un réacteur à l'échelle industrielle, pour lequel les possibilités de mesure sont rares et le développement d'une maquette à l'échelle du laboratoire extrêmement compliqué.

Ci-après sont insérés les articles suivants :

B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride Part 1: Formulation of the model, *Chemical Engineering Science*. <u>58</u> (12), 2617 – 2627 (2003). *11 pages*.

B. Dussoubs, J. Jourde, F. Patisson, J.L. Houzelot, D. Ablitzer : Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride Part 2: Application of the model, Chemical Engineering Science. 58 (12), 2629 – 2642 (2003). *14 pages.*



Chemical Engineering Science 58 (2003) 2617-2627

Chemical Engineering Science

www.elsevier.com/locate/ces

Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride Part 1: formulation of the model

B. Dussoubs^{a,*}, J. Jourde^b, F. Patisson^a, J.-L. Houzelot^c, D. Ablitzer^a

^aLaboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie, Ecole des Mines, Parc de Saurupt, 54042 Nancy Cedex, France ^bComurhex, Usine de Malvési, B.P. 222, 11102 Narbonne Cedex, France

^cLaboratoire des Sciences du Génie Chimique, ENSIC, 47, rue Henri Déglin, 54001 Nancy Cedex, France

Received 16 April 2002; received in revised form 21 February 2003; accepted 24 February 2003

Abstract

Reduction, followed by hydrofluorination of uranium trioxide UO_3 to produce uranium tetrafluoride UF_4 is one of the stages of the French nuclear fuel making route. This dual operation is carried out in a specific reactor known as a moving bed furnace, consisting of a series of steel cylinders that form an L. In this first part of a two-part paper, the mathematical modelling of the furnace is presented in detail. The model describes solid and gas flow, heat transfer by convection, conduction and radiation in the moving bed and in the walls of the furnace, and chemical reactions. In the vertical part of the reactor, mass, momentum and energy balances are solved using the finite volume method. The horizontal part is modelled by a cascade of stirred gas and solid reactors. The assumptions and equations of the model, as well as the boundary conditions and numerical solution techniques are detailed. An example of calculated results is presented and found to agree satisfactorily with available measurements. Application of the model is discussed in Part 2. © 2003 Elsevier Science Ltd. All rights reserved.

Keywords: Heat and mass transfer; Gas-solid reactions; Kinetics; Moving bed; Mathematical modelling; Numerical simulation; Production of uranium tetrafluoride

1. Introduction

The enrichment of uranium for its use in nuclear power plants is undertaken from uranium hexafluoride UF₆. Different stages are necessary to obtain UF₆ from the uranium-bearing ores. In the French process, uranium trioxide UO₃ is successively reduced into UO₂ by ammonia NH₃, then hydrofluorinated into UF₄ by gaseous hydrogen fluoride HF. The originality of the process lies in the fact that those two steps occur successively in a single reactor known as a moving bed furnace, which is dealt with here. UF₄ is further transformed into UF₆ in a flame reactor.

The moving bed furnace consists of a series of steel cylinders that form an L (Fig. 1). It can be divided into several zones:

• a reduction zone, at the top of the furnace, in which UO₃ pellets, fed at the top, descend by gravity and are exposed to a counter-flow of partially cracked ammonia NH₃. The

* Corresponding author. Tel.: +33-383-584-262;

fax: +33-383-584-056.

reduction reaction, which is in fact a series of two consecutive reactions, is highly exothermic, so the temperature control of this part is particularly important. Local overheating may cause solid softening of the pellets that hinders the solid flow and conversion. A part of the reduction zone is surrounded with heating muffles.

- a buffer zone, which allows the transition between the reduction zone and the hydrofluorination zone.
- a vertical hydrofluorination zone, where descending UO₂ pellets encounter a counter-flow of gaseous hydrogen fluoride HF, to produce UF₄. This reaction is also highly exothermic, and temperature must be controlled carefully both to avoid instabilities in the furnace operation and to ensure a high conversion degree into UF₄. The heat of reaction is removed on the one hand by air cooling of the outer walls of the furnace, and on the other hand by an inner, co-axial heat exchanger.
- a horizontal hydrofluorination zone, where an Archimedes screw extracts the solid UF₄, whereas hydrofluorination is completed by the counter-flow of gaseous HF introduced at the other end of the tube. Heating muffles partly surround this zone.

E-mail address: dussoubs@mines.inpl-nancy.fr (B. Dussoubs).

 $^{0009\}text{-}2509/03/\$$ - see front matter @ 2003 Elsevier Science Ltd. All rights reserved. doi:10.1016/S0009-2509(03)00117-9



Fig. 1. The moving bed furnace.

The UO₃ pellets fed at the top inlet are formed from small grains (2 μ m in diameter) in a compaction machine upstream in the process. The average pellet size is 25 mm with little dispersion. At the exit, the average size of UF₄ pellets is approximately 6 mm. The change in size of the pellets is attributed to partial disaggregation in the reduction zone.

The moving bed furnace is several meters high and its diameter is about 0.5 m in the widest part. The residence time of the solid in the furnace is about 6 h. Temperature control is one of the difficulties for operating the process. A series of thermocouples diving in the moving bed allow the operators to continuously check the temperature at different locations in the furnace. Another difficulty is to produce a constant, highly converted UF₄. Periodic sampling and analyses of the product are made, but any action on the operating parameters is only noticeable on UF₄ quality hours later due to the long residence time of solid.

Numerical simulation appears thus to be an adequate and powerful tool for controlling and optimising the process. With this respect, we developed the mathematical model presented here. To our knowledge, due to the very specific nature of the reactor, no similar model has been published in the literature. An original feature of this work is to couple two complementary approaches for modelling. A mechanistic approach was chosen in order to finely describe the vertical part of the furnace and the local gradients of the different variables. A systemic approach was retained to deal with the horizontal zone, because of the geometric complexity induced by the Archimedes screw, using a cascade of ideal reactors. Another noticeable point is the multi-scale description. The various transport phenomena are considered both at the level of the reactor, divided into elementary volumes, and at the level of the single solid pellets, where heterogeneous gas–solid reactions take place.

Though applied to a very particular reactor, these concepts can be transposed for simulating other gas–solid processes, with moving or fixed reactive beds.

In this first part of a two-part paper, the steady-state model of the whole furnace is presented. It describes the different physicochemical phenomena involved, as well as the assumptions and the equations of the model for the heterogeneous chemical reactions in the different zones, the solid and gas flow, and the convective, conductive and radiative heat transfer in the moving bed and the solid walls. Then, the boundary conditions are given and the numerical technique to solve the mass, momentum and energy balances is described. Lastly, a single example of calculated results, namely the temperature map of the whole furnace, is presented here and compared to available measurements.

In the second part (Dussoubs, Jourde, Patisson, Houzelot, & Ablitzer, 2003) of this two-part article, it is shown how the calculated results help to enlighten the detailed behaviour of the furnace. The effect of varying operating parameters is studied and an optimum temperature progression is derived and discussed.

2. Mathematical modelling

The different zones of the furnace model correspond to the ones presented in the introduction. Nevertheless, some practical adaptations have been introduced. Consequently, the zones considered throughout this paper are: the reduction zone in which the buffer zone is included, the vertical hydrofluorination zone, divided into an upper part (containing the heat exchanger) and a lower one (filled only with the moving bed) and the horizontal hydrofluorination zone, which is characterised by the presence of the Archimedes screw.

2.1. Kinetics of chemical reactions

According to a detailed study of the operating conditions of the furnace (Sabatier, 1994), no less than six principal chemical reactions have to be considered. These are presented, as well as the expression of their reaction rate, in Table 1.

	Reaction		Heat of reaction, J mol ⁻¹ (at 298 K)	Rate expression (mol $m^{-3} s^{-1}$)	
keduction zone	Cracking $2NH_3 \rightarrow N_2 + 3H_2$	(1a)	161100	$r_{\rm cr} = k_{\rm cr} \exp\left(-\frac{E_{\rm cr}}{RT}\right) c_{\rm NH_3}$ (1b) $k_{\rm cr} = 8.4 \times 10^8$ (Sabatier, 1994) $E_{\rm cr} = 1.611 \times 10^5$ (Sabatier, 1994)	
	Calcination $3UO_3 \rightarrow U_3O_8 + \frac{1}{2}O_2$	(2a)	83680	$r_{ m cal} = k_{ m cal} \exp\left(-rac{E_{ m cal}}{RT} ight) ho_{ m UO_3}^* (2b) k_{ m cal} = 4 imes 10^3$ $E_{ m cal} = 4.4 imes 10^4$	
	Reduction 1 $3UO_3 + H_2 \rightarrow U_3O_8 + H_2O$	(3a)	-156330	$r_{\text{redl}} = \frac{\rho_{\text{tod},\text{red}}^*}{3} \left[\tau_{\text{ch,redl}} + 2\tau_{\text{diff,redl}} ((1 - X_{\text{UO}_3})^{-1/3} - 1) + \tau_{\text{ext,redl}} \right]^{-1} $ (3)	3b)
	Reduction 2 $U_3O_8 + 2H_2 \rightarrow 3UO_2 + 2H_2O$	(4a)	-163440	$r_{\text{red2}} = \rho_{\text{U}_3 O_8,e}^* \left[\frac{\tau_{\text{ch},\text{red2}}(1-Z)}{3(1-Z)^{1/3}} (1-(1-Z)X_{\text{U}_3 O_8})^{-2/3} + 2\tau_{\text{tire}} \frac{\tau_{\text{ch}}(1-X_{1,O_8})^{-1/3}}{2(1-X_{1,O_8})^{-1/3} - 1) + \tau_{\text{corrend}}} \right]^{-1} $ (4)	4b)
	Secondary hydrofluorination $UO_3 + 2HF$ $\rightarrow UO_2F_2 + H_2O$	(5a)	-113640	$r_{hf_{s}} = k_{hf_{s}} \exp\left(-\frac{E_{hf_{s}}}{RT}\right) \rho_{\rm UO_{3}}^{*} c_{\rm HF} (5b) k_{hf_{s}} = 6.4 \times 10^{-3}$ $F_{t,c} = 4.56 \times 10^{3} (K_{\rm ullman} + 1948)$	Ì
Hydrofluorination zone	Hydrofluorination $UO_2 + 4HF = UF_4 + 2H_2O$	(6a)	-164000	$r_f = \rho_{\text{UO}_2,e}^* \left[\frac{\tau_{\text{ch},f}}{3} \left(1 - X_{\text{UO}_2} \right)^{-2/3} + 2\tau_{\text{dift},f} ((1 - X_{\text{UO}_2})^{-1/3} - 1) + \tau_{\text{ext},f} \right]^{-1} $ (6)	(q9)

In the reduction zone, five reactions are taken into account:

- the cracking of ammonia (1a), endothermic,
- the calcination of UO₃ (2a), endothermic,
- the reduction of UO₃ into U₃O₈, called first reduction (3a) and very exothermic,
- the reduction of U₃O₈ into UO₂, called second reduction (4a) and also very exothermic. According to the literature (Le Page & Fane, 1974; Aublet, 1995), the second reduction only begins when UO₃ is entirely converted into U₃O₈.
- a reaction induced by the presence of a small amount of HF coming up from the hydrofluorination zone, and called secondary hydrofluorination (5a). This reaction is parasite since it leads to inert UO₂F₂ that remains unchanged in the whole furnace and thus decreases the amount of UO₂ available for hydrofluorination.

In the vertical and horizontal hydrofluorination zone, only the hydrofluorination reaction (6a) needs to be considered.

The two reduction (3a) and (4a) and the hydrofluorination (6a) reactions are the principal reactions of the process and their kinetics were studied in details (Aublet, 1995; Brun, 1997; Nicole, Patisson, Ablitzer, & Houzelot, 1996). The rate expressions (3b), (4b) and (6b) were derived by Jourde (2000) using the law of additive characteristic times exemplified below in the case of the hydrofluorination reaction. The reactions (1a), (2a) and (5a) are considered as secondary reactions in the process and their kinetics were more roughly estimated from scarce literature data.

The hydrofluorination reaction is highly exothermic, since its enthalpy of reaction, at 873 K, is $\Delta H_r =$ -169 000 J mol⁻¹. This is the reason why the temperature must be carefully controlled in the vertical hydrofluorination zone, to avoid the apparition of hot points. The standard free enthalpy of the reaction ΔG_r^0 can be calculated with the following expression, valid between 273 and 1273 K (from THERMODATA database):

$$\Delta G_r^0 = -RT \ln(K_p) = -224988 + 239.709T.$$
⁽⁷⁾

This expression equals 0 at 938.6 K. The reaction is reversible, and at high temperature, UF_4 may be hydrolysed.

To determine the hydrofluorination reaction rate r_f , the Grain Model (Szekely, Evans, & Sohn, 1976) was used by Nicole et al. (1996). In this model, a solid pellet is considered to be composed of a cluster of grains with an initial diameter d_g , each grain reacting individually according to a shrinking core process. Three resistances to the transfer of HF must be considered: the external transfer of HF to the pellet, the intergranular diffusion in the pellet, and the chemical reaction at the interface UO₂/UF₄ in the grains. Diffusion in the grains was not found rate-limiting.

The grain model must be solved numerically and requires integration over the pellet radius. This is a drawback for an overall reactor model as it considerably increases the computation time. We have therefore selected an alternative approach, based on the law of additive characteristic times (Sohn, 1978). Since the mass transfer processes occur in series, the time $t_{X_{UO_2}}$ necessary to achieve a given conversion degree of UO₂ can be considered as the sum of the characteristic times corresponding to the three resistances considered:

$$t_{X_{UO_2}} = \underbrace{\tau_{ch,f}(1 - (1 - X_{UO_2})^{1/3})}_{\text{chemical reaction}} + \underbrace{\tau_{diff,f}(1 - 3(1 - X_{UO_2})^{2/3} + 2(1 - X_{UO_2}))}_{\text{intergranular diffusional transport}} + \underbrace{\tau_{ext,f}X_{UO_2}}_{\text{external transfer}}.$$
(8)

This is only an approximate expression, but analytical, and it allows by differentiation a direct calculation of the reaction rate, unlike the complete Grain Model. It will be shown in Part 2 (Dussoubs et al., 2003) that the approximation is very good. τ_{ch} , τ_{diff} and τ_{ext} represent the characteristic times for chemical reaction, intergranular diffusion and external transfer, respectively. These are determined as the times necessary to reach a complete conversion ($t_{X_{UO_2}=1}$) assuming a pure chemical reaction control, an intergranular diffusion control, or an external transfer control. Jourde (2000) has derived:

$$\tau_{ch,f} = \frac{2d_g \rho_{UO_2,p}^*}{(1 - \varepsilon_p)k_f (c_{HF} - (\sqrt{c_{H_2O}}/K_{eq}))},$$
(9)

$$\tau_{\text{diff},f} = \frac{d_p^2 \rho_{\text{UO}_{2,p}}^*}{6D_{\text{eff}}(c_{\text{HF}} - c_{\text{HF}_{\text{eq}}})} \frac{((x_{\text{HF}} - x_{\text{HF}_{\text{eq}}})/2)}{\ln((2 - x_{\text{HF}_{\text{eq}}})/2 - x_{\text{HF}})}, \quad (10)$$

$$\tau_{\text{ext},f} = \frac{2d_p \rho_{\text{UO}_2,p}^*}{3k_g} \frac{1 - (x_{\text{HFeq}}/2)}{(c_{\text{HF}} - c_{\text{HFeq}})}.$$
(11)

Those expressions take into account the non-equimolarity and reversibility of the reaction. The rate constant k_f and the reaction orders 1 and $\frac{1}{2}$ with respect to HF and H₂O are those determined experimentally by Nicole et al. (1996). The effective diffusivity D_{eff} of the binary mixture HF–H₂O in the pellets is calculated from the diffusivity in the gas (molecular and Knudsen component) and the porosity-to-tortuosity ratio. The external transfer coefficient k_g is obtained from the Ranz–Marshall correlation (Ranz & Marshall, 1952). Calculation shows that external transfer is not rate-limiting.

Thermodynamics of the hydrofluorination reaction are taken into account by the terms K_{eq} in Eq. (9) and $x_{HF_{eq}}$ in Eqs. (10) and (11). These are calculated from the thermodynamic equilibrium constant K_p given by Eq. (7) as

$$K_{\rm eq} = \frac{\sqrt{c_{\rm H_2O_{\rm eq}}}}{c_{\rm HF_{\rm eq}}} = K_p^{1/4} \left(\frac{RT}{P_0}\right)^{1/2}$$
(12)

and

$$x_{\rm HF_{eq}} = \frac{P_0}{2P\sqrt{K_p}} \left(\sqrt{1 + 4\frac{P}{P_0}\sqrt{K_p}(1 - x_{N_2})} - 1 \right), \quad (13)$$

where P_0 is the reference pressure equal to 10^5 Pa. Finally, the reaction rate r_f is calculated from

$$r_f = \rho_{\mathrm{UO}_2,e}^* \frac{\mathrm{d}X_{\mathrm{UO}_2}}{\mathrm{d}t_{X_{\mathrm{UO}_2}}} = \rho_{\mathrm{UO}_2,e}^* \left(\frac{\mathrm{d}t_{X_{\mathrm{UO}_2}}}{\mathrm{d}X_{\mathrm{UO}_2}}\right)^{-1},\tag{14}$$

where the last term can be determined by deriving Eq. (8). This leads to expression (6b) in Table 1.

A similar approach was retained for calculating the reduction reaction rates (3b) and (4b). Details of the derivation of these equations and the expression of the characteristic times can be found in Jourde (2000). For the first reduction, the chemical resistance is independent of $X_{\rm UO_3}$ since the reaction surface location remains the initial outer surface of the grains (Le Page & Fane, 1974; Aublet, 1995). For the second one, the slight molar volume contraction between U₃O₈ and UO₂ (Z = 0.7358) is considered for calculating the reaction surface area (Brun, 1997) and thus appears in the chemical resistance term.

2.2. Modelling of the moving bed in the vertical zone

The model is two-dimensional and describes the steady-state regime of the furnace. The coordinate system is cylindrical, r is the radius and z is the height, from bottom to top. Since the solid descends in the furnace, its velocity u_s is taken negative, whereas the gas velocity u_g is positive because of the counter-flow. Solid velocity (about 5×10^{-3} m s⁻¹) is very low compared to gas velocity (about 0.6 m s⁻¹), so that as far as gas is concerned the moving bed can be viewed as a fixed one. Solid flow is considered as of piston type. This hypothesis has been confirmed by observation in a cold transparent 1/10 scale model (Sabatier, 1994). Gas flow is assumed as of piston type, but with axial and radial dispersion.

The pressure drop through the moving bed is calculated with a differential form of Ergun's law which is a simplified expression of the momentum balance. The moving bed is thus considered as a stack of spherical pellets of mean diameter d_p that forms a porous medium of mean porosity ε_b . Local variations in the pellet diameter or in the mean porosity can be taken into account.

The heat transfer is conductive, convective and radiative in the moving bed. It is modelled through the use of an effective axial and radial thermal conductivity, which combines the contributions of radiation, solid and gaseous conduction, and the influence of gaseous convection. Since the mean value of the heat transfer coefficient between gas and solid is high enough, around 200–400 W m⁻² K⁻¹ as determined by Sabatier (1994) and the surface area of the pellet bed is high, gas–solid heat transfer does not limit heat transfer into the moving bed. Thus, we assume that the moving bed is a pseudo-homogeneous medium (Froment & Bischoff, 1990): everywhere, gas and solid temperatures are equal. The validity of this assumption will be further checked in Part 2 (Dussoubs et al., 2003).

In the reduction zone, the solid species considered are UO_3 , U_3O_8 , UO_2 and UO_2F_2 . In the hydrofluorination zone, UO_2 , UF_4 and UO_2F_2 are taken into account. UO_2 is the reactant of the hydrofluorination reaction, whereas UF_4 is the product and UO_2F_2 , inert, does not react. We assume that no U_3O_8 remains at the top of the vertical hydrofluorination zone, which is validated by the results of the calculation in the reduction zone.

Gaseous species considered in the reduction zone are NH_3 , N_2 , H_2 , O_2 , H_2O , HF. O_2 is produced by the calcination reaction. H_2O comes both from different reactions in the reduction zone and from the gas rising up from the vertical hydrofluorination zone (as well as HF). In the hydrofluorination zone, HF, H_2O and N_2 are considered. A few percent of inert N_2 are introduced in the horizontal hydrofluorination zone with HF, whereas H_2O is produced by the hydrofluorination reaction.

The matter balance for each solid species i, in the different zones, can be written:

$$\frac{\partial}{\partial z}\left(u_{s}\rho_{s}w_{i}\right) = M_{i}r_{i} \tag{15}$$

where M_i is the molecular weight of the species *i* and r_i the local reaction rate (depending on the zone). Table 2 sums up for the different species the corresponding source term.

A total matter balance is written for the solid phase in each zone:

• in the reduction zone:

$$\frac{\partial}{\partial z} (u_s \rho_s)
= (M_{U_3O_8} - 3M_{UO_3})r_{red1} + (3M_{UO_2} - M_{U_3O_8})r_{red2}
+ (M_{U_3O_8} - 3M_{UO_3})r_{cal} + (M_{UO_2F_2} - M_{UO_3})r_{hf_s}$$
(16)

• in the vertical hydrofluorination zone:

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(u_s \rho_s \right) = \left(M_{\text{UF}_4} - M_{\text{UO}_2} \right) r_f. \tag{17}$$

Table 2

Solid species and corresponding mass source term in the reduction and the vertical hydrofluorination zones

Zone	Species i	M _i r _i
Reduction zone	$UO_3 \\ UO_2 \\ U_3O_8 \\ UO_2F_2$	$\frac{-M_{\rm UO_3}(3r_{\rm red1}+3r_{\rm cal}+r_{hf_s})}{3M_{\rm UO_2}r_{\rm red2}}$ $\frac{M_{\rm U_3O_8}(r_{\rm red1}-r_{\rm red2}+r_{\rm cal})}{M_{\rm UO_2F_2}r_{hf_s}}$
Hydrofluorination zone	$\begin{array}{c} UO_2 \\ UF_4 \\ UO_2F_2 \end{array}$	$-M_{\rm UO_2}r_f$ $M_{\rm UF_4}r_f$ 0

Table 3

Gaseous	species	and	corresponding	reaction	rate r	_i in	the	reduction	and
the vertion	cal hydr	ofluc	rination zones						

Zone	Species i	ri
Reduction zone	NH ₃	$-2r_{\rm cr}$
	N ₂	r _{cr}
	H ₂	$3r_{\rm cr} - r_{\rm red1} - 2r_{\rm red2}$
	H_2O	$r_{\rm red1} + 2r_{\rm red2} + r_{hf_s}$
	HF	$-2r_{hf_s}$
	O ₂	$\frac{1}{2}r_{\rm cal}$
Hydrofluorination zone	HF	$-4r_f$
	N_2	0
	H ₂ O	$2r_f$

The matter balance for a given gaseous species i gives

$$\frac{\partial}{\partial z} (u_g c_t x_i) = r_i + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D_r c_t \frac{\partial x_i}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_a c_t \frac{\partial x_i}{\partial z} \right)$$
(18)

where D_r and D_a are the radial and axial dispersion coefficients, respectively. Table 3 sums up the species and the corresponding rate r_i .

As for the solid phase, a total matter balance can be written for the gaseous phase in each zone:

• in the reduction zone:

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(u_g c_t \right) = 2r_{\rm cr} - r_{\rm HFs} + \frac{1}{2} r_{\rm cal} \tag{19}$$

• in the vertical hydrofluorination zone:

$$\frac{\partial}{\partial z}\left(u_{g}c_{t}\right) = -2r_{f} \tag{20}$$

In order to obtain the simple expressions (19) and (20) for the total gas matter balance, the axial and radial dispersion coefficients D_a and D_r have been assumed identical for all gaseous species in a given zone. Those coefficients are calculated, given a typical average gas composition, from the axial and radial Peclet numbers Pe_a and Pe_r . Numerous correlations are available to calculate these Peclet numbers. For Pe_a , we use the results of Wen and Fan (1975, pp. 158–167) that give the axial Peclet numbers. In the radial direction, the flow velocity is quite slow, thus molecular diffusion is preponderant for mass transfer. We use DeWash and Froment's relation (Froment & Bischoff, 1990, pp. 454–457) to express Pe_r as a function of the mean pellet diameter d_p and an equivalent tube diameter.

A differential form of Ergun's law (Ergun, 1952) is used to link the pressure drop and the local velocity of the gas:

$$-\frac{\partial P}{\partial z} = 150 \frac{(1-\varepsilon_b)^2}{\varepsilon_b^3 d_p^2} \mu u_g + 1.75 \frac{(1-\varepsilon_b)}{\varepsilon_b^3 d_p} \rho u_g^2$$
(21)

Any approximation involved by using this equation is of minor importance due to the relatively low pressure drop through the bed.

Considering that gas and solid temperatures are equal, the heat balance is written with a unique expression:

$$(u_{s}\rho_{s}c_{ps} + u_{g}c_{t}c_{pg})\frac{\partial T}{\partial z}$$

$$= -\sum_{\text{reactions}} \Delta H_{r}r_{i} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\lambda_{\text{eff},r}\frac{\partial T}{\partial r}\right)$$

$$+ \frac{\partial}{\partial z}\left(\lambda_{\text{eff},a}\frac{\partial T}{\partial z}\right), \qquad (22)$$

where the source term differs in the reduction zone and in the hydrofluorination zone according to the reactions. $\lambda_{\text{eff},a}$ and $\lambda_{\text{eff},r}$ are the axial and radial effective thermal conductivities. Those are calculated from the Zehner and Schlünder (1970, 1972) correlation, as the sum of two contributions: a static one and a dynamic one.

2.3. Modelling of the heat exchanger

In the heat exchanger, the flow of the cooling fluid is considered as of piston type without dispersion. The mass flow rate is known, as well as the pressure, considered as uniform. A single heat balance is solved to calculate the temperature of the fluid.

$$q_{cf}c_{pcf}\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\lambda_{cf,r}\frac{\partial T}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\lambda_{cf,a}\frac{\partial T}{\partial z}\right).$$
 (23)

2.4. Heat flux balance in the walls

In each wall, Fourier's law is applied:

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\lambda_{w}\frac{\partial T}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\lambda_{w}\frac{\partial T}{\partial z}\right) = 0.$$
(24)

2.5. Modelling of the horizontal zone

As mentioned in the introduction, the presence of the rotating Archimedes screw placed in the horizontal zone for extracting the solid makes considerably more difficult to model this zone with the same fine geometric description used for the other zones. Instead, a systemic approach was preferred here. The horizontal zone is described as a cascade of perfectly stirred reactors. Each stage corresponds to the space between the blades of the screw. The bottom is filled by the bed (solid + gas) and is modelled by a solid+gas stirred reactor, the top (freeboard) is gas and modelled by a gaseous stirred reactor (see Fig. 2). At each stage, the gas stream is divided between a fraction $1 - \beta$ which does not cross the solid and a fraction β which flows through the bed.



Fig. 2. Systemic model used for the horizontal hydrofluorination zone.

This fraction is calculated by equalising the pressure drops through the gas and the solid + gas reactors. The filling ratio and the pressure drop at each stage are known from cold model experiments (Sabatier, 1994). The volumes and areas of the gas/solid, gas/screw and screw/solid interfaces are calculated geometrically.

The equations solved are the solid matter balances of UO_2 , UF_4 and UO_2F_2 in each solid+gas reactor, the gas matter balances of HF, H₂O and N₂ in every solid+gas and gas reactor, as well as three thermal balances for calculating the solid, gas and screw temperatures. The hydrofluorination reaction rate is again calculated from the law of additive reaction times, but with the refinement explained hereunder.

The assumption of perfectly stirred reactors implies uniform composition and can only lead to average values of the mass fractions and of the conversion degree X_{UO_2} . Nevertheless, important radial gradients of conversion can exist at the bottom of the vertical zone. Since the hydrofluorination rate depends in a complex way on the conversion degree (Equation 6b), using only a mean value of $X_{\rm UO}$, in the horizontal zone may poorly average the hydrofluorination rate. That is, information is lost between the exit of the vertical zone and the entrance of the horizontal one. To take into account more precisely the different conversion degrees at the exit of the vertical zone, and their influence on the reaction rate downstream, we have split up the pellet population into different classes corresponding to different conversion degrees: from 0 to 10%, from 10 to 20%, etc. This leads to 10 classes k:

$$k - 1 < 10X_{UO_2} \le k$$
 for $k \in [2; 10]$ and
 $k - 1 \le 10X_{UO_2} \le k$ for $k = 1$.

The different classes are defined at the bottom of the vertical zone, and each one is considered as a distinct species within the stirred reactors, that is, with its own reaction rate, mass fraction of UO_2 and conversion degree.

2622

The reaction rate for a class k, $r_f(k)$, is the number of moles of UO₂ in the k class transformed into UF₄ per second and m³ of bed. Thus

$$r_f(k) = \rho_{\text{UO}_{2,e}}^*(k) f(\tau_{\text{ch},f}, \tau_{\text{diff},f}, X_{\text{UO}_2}(k)),$$
(25)

where $\rho_{\text{UO}_{2},e}^{*}(k)$ is the contribution of class k to $\rho_{\text{UO}_{2},e}^{*}$. The total reaction rate \bar{r}_{f} is

$$\bar{r}_f = \sum_k r_f(k). \tag{26}$$

With the use of \bar{r}_f instead of r_f , solid and gaseous mass balances, as well as heat balances, remain unchanged. But it is now necessary to solve a solid mass balance for each class k to determine $X_{UO_2}(k)$, which is necessary to obtain $r_f(k)$.

2.6. Boundary conditions

For solid species, axial boundary conditions are the known inlet flow rate and composition of the charge entering the top of the furnace. No radial boundary condition is needed.

For gaseous species, axial boundary conditions are the known flow rates, compositions and pressures at the various inlets of the furnace. Moreover, the axial profile of the different variables is assumed conservative at the end of each zone (i.e. $\partial^2 x_i/\partial z^2 = 0$). The radial flux is equal to zero on the symmetry axis and at the walls ($\partial x_i/\partial r = 0$). The gas leaving the vertical hydrofluorination zone splits up between the hydrofluorination outlet and a fraction which enters the buffer zone. This fraction is a data of the model.

Concerning thermal boundary conditions, the input temperatures of solid and gaseous species are known. On the symmetry axis, the radial heat flux is zero. At each wall surface, heat is either supplied by muffles with a known flux density Φ_{muffle} :

$$\lambda_w \left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)_w = \Phi_{\text{muffle}}$$
(27)

or exchanged by convection and radiation:

$$\lambda_w \left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)_w = h(T - T_w) + \sigma E(T^4 - T_w^4)$$
(28)

where λ_w is the thermal conductivity of the solid wall, *h* is the suitable convective heat transfer coefficient, and *E* is, according to the wall considered, either the emissivity of the wall, or a function of the emissivities of the wall and solid (assuming a grey body). Due to the complex geometry of the furnace, different convective heat transfer coefficients must be considered, e.g. at the external surface or between the moving bed and the walls. A complete description of the correlations adapted can be found in Jourde (2000). The different emissivities are given by Sabatier (1994).

3. Numerical solution technique

3.1. Finite-volume method in the reduction and the vertical hydrofluorination zone

The different equations presented in Section 2 are discretised using a finite-volume approach (Patankar, 1980) in two dimensions, r and z. In order to take into account accurately the different boundary conditions and the local gradients, the moving bed zones present a variable size of mesh. The mesh is made finer near the walls and at the top and bottom of each zone. The usual total number of nodes is 2040 for the reduction zone and 6100 for the vertical hydrofluorination zone. This is a compromise between accuracy and computing time. We checked that very little influence of meshing is noted with these values.

The general form of the discrete equation for the conservation of a dependent variable ϕ in a control volume around a point P is

$$a_P \phi_P = \sum_{nb} a_{nb} \phi_{nb} + S_{\phi}, \qquad (29)$$

where *nb* stands for the neighbour points of P. S_{ϕ} is the source term at the corresponding point for the variable ϕ . It must be carefully linearised, especially for non-linear terms as chemical reaction and radiation source terms, to ensure the convergence of the model.

A proper linearisation of the source term, $S_{\phi} = S_c + S_p \phi_p$, requires for stability that S_p is negative. The way to ensure such a condition may not be obvious in the general case. We have developed a scheme that ensures $S_p \leq 0$ for a dependent variable lying in the range [0;1], e.g. the molar and mass fractions of the different species, and allows to use the same expression whether S_{ϕ} is positive or not. This is useful especially for the hydrofluorination reaction source term, that may change sign depending on the temperature and gas composition within the moving bed. We write thus

$$S_c = \frac{\max(0, S_{\phi}^*)}{1 - \phi^*},\tag{30}$$

$$S_p = \frac{S_{\phi}^* - S_c}{\phi^*},\tag{31}$$

where the superscript * stands for the value of the variable at the previous iteration.

The thermal source terms are linearised in another way. The goal of this linearisation is not only to provide a single expression whichever the sign of the source term may be, but also to take into account the exponential part of the Arrhenius law by balancing the importance of S_c and S_p in order to stabilise the convergence. This involves a parameter $\theta \ge 1$, as follows:

$$S_c = \theta \max(0, S_T^*), \tag{32}$$

$$S_p = (1 - \theta \max(0, \operatorname{sgn}(S_T^*))) \frac{S_T^*}{T^*},$$
 (33)

where $sgn(S^*)$ equals 1 if S^* is superior than or equal to 0, and -1 if S^* is lower than 0. In the model, the value of θ is set to 2.

3.2. Stirred gas and solid reactors in the horizontal zone

In the horizontal zone, no mesh definition is necessary. The mass, momentum and heat flux balances are solved from one stirred reactor to another. The results at the exit of one stirred reactor are directly used as input data for the following. To model the counter current of the flow, solid mass balance is solved from the entrance of the zone to the exit of the furnace, whereas gas mass balance and heat flux balance are solved from the exit to the bottom of the vertical zone.

3.3. Iterative solution

An iterative procedure is necessary to solve the equations of the model, particularly due to their coupling via the chemical reactions. The Gauss–Seidel method is employed. Since the reduction reactions occur partly at the very top of the furnace, they are responsible for high source terms and rapid variations of the molar or mass fractions of the different species, that may cause oscillations in the whole furnace. To avoid such instabilities, relaxation factors have been introduced in most of the equations. Although relaxation is somehow time consuming, it is necessary to avoid divergence in the first steps of the calculation. The iterative procedure used in the model is presented in Fig. 3. Initialisation data are read in input data files. The program ends when the convergence has been attained, i.e. when the following inequality holds, for each variable ϕ :

$$\frac{\sum_{P} |\phi_{P} - \phi_{P}^{*}|}{\sum_{P} |\phi_{P}^{*}|} \leq \eta.$$
(34)

The sums concern all nodes *P* and η is a given convergence parameter.

3.4. Computational resources required

The code is written in Fortran. All the numerical simulations were run on Hewlett-Packard 9000/735 or 9000/785 workstations. The convergence (with a convergence criterion η set to 10^{-6}) is reached in 50 000 to 80 000 iterations, which requires a CPU time of 8–12 h, for 8140 nodes and 10 stirred reactors. This implies that the initial fields of the different variables, especially temperature, are correctly set.

4. Results

Once convergence has been reached, the model gives at each node of the mesh in the reduction and vertical hydrofluorination zones, as well as in each stirred reactor in the horizontal zone, the values of the principal calculated variables,



Fig. 3. Iterative solution diagram.

e.g.: temperature, mass fraction of the solid species, molar fraction of the gaseous species, conversion degree, pressure, reaction rates, deviation from equilibrium, etc.

As an illustrative example, the map of the isovalues of temperature in the whole furnace is presented in Fig. 4. The computation was carried out for a reference set of operating parameters of the furnace. Temperature in the furnace varies from about 200°C in the buffer zone and at the exit of the horizontal zone (where the reactive gas enters) to about 1000°C between the heating muffles in the reduction zone, where the reduction reactions take place. In the vertical hydrofluorination zone, where most of the hydrofluorination



Fig. 4. Calculated temperature isovalues in the furnace, °C.

occurs, temperature increases from 200°C to 750°C. Colder parts are observed near the walls and the heat exchanger.

Scarce data exist to validate the model. Accurate temperature measurements cannot be carried out in the industrial furnace. The on-line temperature records are obtained from sheathed thermocouples placed in glove-fingers diving obliquely in the bed. The location of a given thermocouple is not know exactly. Neither is the temperature difference between the temperature indicated by the thermocouple and that of the moving bed which flows around the glove-finger. Besides, actual operation of the furnace is not quite steady and measured temperatures vary between minimum and maximum values. Nevertheless, an attempt to compare measured and calculated temperatures is presented in Fig. 5.

Three calculated values are plotted for each thermocouple vertical level (numbered 1–10): the temperature at the esti-

mated position of the thermocouple, the maximum value in the same horizontal plane, the value next to the outer wall (usually the lowest value in the plane). Measured and calculated axial profiles compare well. Particularly, the maximum temperatures match rather closely, except for thermocouple number 2 in the reduction zone. To conclude, although calculated temperatures may appear a bit higher, we consider the agreement satisfactory, due to the uncertainties discussed above.

Another criterion for validating the model is the comparison between the calculated and measured mass fractions of UF_4 in the product, at the exit of the furnace. These values are in perfect agreement, with less than 0.5 percent difference.

The above results are the only one discussed in the present paper, the main objective of which being to detail the model formulation. Full results from the model, as well as its



Fig. 5. Comparison between measured and calculated temperatures.

application for studying the process, are presented in Part 2 (Dussoubs et al., 2003).

5. Conclusions

The mathematical formulation and numerical methods used for the modelling of a moving bed furnace used in the French nuclear fuel making route have been presented. This furnace achieves in a single reactor the reduction of UO_3 ore pellets into UO_2 under the action of a counter-flow of cracked ammonia, followed by the hydrofluorination of UO_2 into UF_4 under a counter-flow of hydrogen fluoride HF.

The model that we have developed is two-dimensional, axisymmetric, and describes the steady-state regime of the furnace. Gaseous and solid mass, momentum and heat balances are solved both with a mechanistic approach (using a finite-volume technique in the vertical part of the furnace), and a systemic one (the horizontal part is described as a cascade of stirred gas-solid reactors). Six chemical reactions are considered. The reaction rates of the principal ones, reduction and hydrofluorination, are determined using the law of additive characteristic times, which takes into account the different mass transfer resistances to the reaction. The iterative calculation procedure used in the model is discussed, along with the different boundary conditions and mesh definition.

An example of results obtained with the model, namely the temperature map, for a set of reference operating parameters of the furnace, is provided and satisfactorily compared to available measurements. Other results, obtained under different operating conditions, as well as the use of the model for process optimisation are given in a companion paper.

Notation

a_p	coefficient of the discrete equation
C_{pcf}	specific heat of the cooling fluid, J kg ^{-1} K ^{-1}
C _{ps}	specific heat of the solid, $J \text{ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
C na	molar specific heat of the gas. J mol ^{-1} K ^{-1}
c pg	molar concentration mol m^{-3}
C.	total gaseous molar concentration mol m^{-3}
d_{π}	mean initial grain diameter of UO ₂ m
d_{g}	mean diameter of solid pellets m
	axial and radial gaseous dispersion coeffi-
D_a, D_r	cients $m^2 s^{-1}$
$D_{\rm eff}$	effective diffusivity of HF in the pellets,
	$m^2 s^{-1}$
Ε	emissivity factor
Ε	activation energy, J mol $^{-1}$
h	convective heat transfer coefficient,
	$W m^{-2} K^{-1}$
k	a class of pellets defined by its conversion
k	rate constant of chemical reaction, s^{-1} or $m^3 s^{-1} mol^{-1}$
k_{g}	external mass transfer coefficient, m s ⁻¹
K _{eq}	thermodynamic equilibrium constant, $m^{3/2} mol^{-1/2}$
K_p	thermodynamic equilibrium constant
M	molecular weight, kg mol^{-1}
Р	total gas pressure, Pa
P_0	reference pressure, Pa
q_{cf}	mass flux density of the cooling fluid,
- 5	$kg m^{-2} s^{-1}$
r	radial coordinate, m
r	reaction rate, mol $s^{-1} m^{-3}$ of bed
R	characteristic radius, m

R	ideal gas constant, J K^{-1} mol ⁻¹
S_{ϕ}	source term for the variable ϕ , $(=S_c + S_p \phi_p)$
t_{XUO_2}	reaction time to obtain a given conversion
	$X_{\rm UO_2}$, s
Т	local temperature, K
u_q	superficial gas velocity, m s^{-1}
<i>u</i> _s	solid flow velocity, m s^{-1}
W	mass fraction
x	molar fraction
$X_{\rm UO_2}$	conversion degree of UO ₂
Ζ	axial coordinate, m
Ζ	volumetric expansion coefficient (second re-
	duction)

Dimensionless group

Pe Peclet number

Greek letters

β	fraction of the gas crossing the solid in a
	stirred reactor
ΔG_r^0	standard free enthalpy of reaction, $J \text{ mol}^{-1}$
ΔH_r	enthalpy of reaction, $J \text{ mol}^{-1}$
ε_b	local porosity of the bed
ε _p	internal porosity of the solid pellets
ϕ	dependent variable in the discrete
	finite-volume formulation
Φ	heat flux density provided by the muffles,
	$W m^{-2}$
η	convergence criterion
λ	thermal conductivity, $W m^{-1} K^{-1}$
$\lambda_{ m eff}$	effective thermal conductivity, W m ^{-1} K ^{-1}
μ	molecular viscosity, kg m ^{-1} s ^{-1}
θ	parameter in the linearisation of the thermal
	source term
$ ho_s$	apparent weight concentration of the solid,
	kg m ^{-3} of bed
$ ho_i^*$	molar concentration of <i>i</i> , mol m^{-3} of bed
$\rho^*_{\mathrm{UO}_2,p}$	initial molar concentration of UO ₂ in the
271	pellets entering the hydrofluorination zone,
	mol m^{-3} of pellet
σ	Stefan–Boltzmann constant, W m ⁻² K ⁻⁴
$ au_{ m ch}$	characteristic time for chemical reaction, s
$ au_{ m diff}$	characteristic time for intergranular diffusion,
	S
$ au_{\mathrm{ext}}$	characteristic time for external transfer, s

Subscripts

a	axial
cal	calcination
cf	cooling fluid
cr	cracking

е	entrance
eq	at thermodynamic equilibrium
f	hydrofluorination
g	gas
hf _s	secondary hydrofluorination
i	a species
nb	neighbours
р	pellet
Р	at node P
r	radial
red1	first reduction
red2	second reduction
5	solid
w	wall

References

Aublet, S. (1995).	Etude de la	réactivité des	oxydes	d'uranium	lors de
la calcination/re	éduction. DE	A Dissertation,	, INPL,	Nancy, Fra	nce.

- Brun, C. (1997). Modélisation de la cinétique de réduction d'oxydes d'uranium par l'hydrogène. Réactivités de germination et de croissance. Doctorate thesis, INPG, Saint-Etienne, France.
- Dussoubs, B., Jourde, J., Patisson, F., Houzelot, J. L., & Ablitzer, D. (2003). Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride. Part 2: Application of the model. *Chemical Engineering Science*, in press.
- Ergun, S. (1952). Fluid flow through packed columns. *Chemical Engineering Progress*, 48(2), 89–94.
- Froment, G. F., & Bischoff, K. B. (1990). *Chemical reactor analysis and design* (2nd ed). New York: Wiley.
- Jourde, J. (2000). Modélisation numérique du four à lit coulant réalisant la conversion du trioxyde d'uranium en tétrafluorure. Doctorate thesis, INPL, Nancy, France.
- Kulhman, C. W. (1948). Fluorination of uranium trioxide: Rate and apparent equilibrium studies. U.S.A.E.C. MCW 144.
- Le Page, A. H., & Fane, A. G. (1974). The kinetics of hydrogen reduction of UO₃ and U₃O₈ derived from ammonium diuranate. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 36, 87–92.
- Nicole, C., Patisson, F., Ablitzer, D., & Houzelot, J. L. (1996). A thermogravimetric study of the kinetics of hydrofluorination of uranium dioxide. *Chemical Engineering Science*, 51(23), 5213–5222.
- Patankar, S. V. (1980). Numerical heat transfer and fluid flow. New York: Hemisphere Corporation.
- Ranz, W. E., & Marshall, W. R. (1952). Evaporation from drops, Part 1. Chemical Engineering Progress, 48(3), 141–146. Evaporation from drops, part 2. Chemical Engineering Progress, 48(4), 173–180.
- Sabatier, L. (1994). Le four à lit coulant réalisant la transformation du trioxyde d'uranium en tétrafluorure d'uranium. Étude et modélisation cinétique. Doctorate thesis, INPL, Nancy, France.
- Sohn, H. Y. (1978). The law of additive reaction times in fluid-solid reactions. *Metallurgical Transactions*, 9B, 89–96.
- Szekely, J., Evans, J. W., & Sohn, H. Y. (1976). Gas-solid reactions (pp. 125–160). New York: Academic Press.
- Wen, C. Y., & Fan, L. T. (1975). Model for flow systems and chemical reactors. New York: Marcel Dekker.
- Zehner, P., & Schlünder, E. U. (1970). Wärmeleitfähigkeit von Schüttungen bei maßigen Temperaturen. *Chemie—Ing. Techn*, 42, 933–941.
- Zehner, P., & Schlünder, E. U. (1972). Einfluß der Wärmestrahlung und des Druckes auf den Wärmetransport in nicht durchtrömten Schüttungen. *Chemie—Ing. Techn, 44*, 1303–1308.



Chemical Engineering Science 58 (2003) 2629-2642

Chemical Engineering Science

www.elsevier.com/locate/ces

Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride. Part 2: Application of the model

B. Dussoubs^{a,*}, J. Jourde^b, F. Patisson^a, J.-L. Houzelot^c, D. Ablitzer^a

^aLaboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie, Ecole des Mines, Parc de Saurupt, UMR CNRS 7584,

54042 Nancy Cedex, France

^bComurhex, Usine de Malvési, B.P. 222, 11102 Narbonne Cedex, France

^cLaboratoire des Sciences du Génie Chimique, ENSIC, 47, rue Henri Déglin, 54001 Nancy Cedex, France

Received 16 April 2002; received in revised form 21 February 2003; accepted 24 February 2003

Abstract

The French nuclear fuel making route uses, prior to enrichment, uranium tetrafluoride UF₄ obtained from the reduction, followed by hydrofluorination of uranium trioxide UO₃. These two steps are carried out in a specific reactor known as a moving bed furnace. We developed a steady-state numerical model of the moving bed furnace, described in Part 1. In the Part 2, calculation results for a reference set of operating parameters of the furnace are presented in term of temperature, reaction rates, solid and gas compositions. Results analysis enlightens the detail of the furnace behaviour in its different zones. Unknown features have been revealed, such as thermodynamic limitation of the hydrofluorination reaction in the hot core of the moving bed. A sensibility study of various operating parameters shows how some can influence the UF₄ quality and underlines the strong coupling between the different zones of the furnace. Finally, the model is applied to define an optimal temperature progression in the furnace and suggests geometrical modifications. Besides, the validity of using the law of additive reaction times for calculating the reaction rates in such a reactor model has been checked for the first time against a numerical grain model.

© 2003 Elsevier Science Ltd. All rights reserved.

Keywords: Heat and mass transfer; Gas-solid reactions; Kinetics; Moving bed; Mathematical modelling; Numerical simulation; Production of uranium tetrafluoride

1. Introduction

In the French process of nuclear fuel production, uranium hexafluoride UF₆, used for isotopic enrichment, is obtained from the uranium-bearing ores through different stages, one of them being the reduction of uranium trioxide UO₃ into UO₂ by ammonia NH₃, followed by hydrofluorination of UO₂ into UF₄ by gaseous hydrogen fluoride HF. These reactions are achieved successively in a single reactor known as a moving bed furnace.

The description of the different parts that compose the moving bed furnace has been done in a companion paper (Dussoubs, Jourde, Patisson, Houzelot, & Ablitzer, 2003). Only a brief summary is presented here. The different parts

fax: +33-383-584-056.

of the furnace (Fig. 1) are:

- the reduction zone, at the top of the furnace, in which UO₃ pellets, fed at the top, descend by gravity and are exposed to a counter-flow of partially cracked ammonia NH₃. Reduction takes place in two consecutive steps, namely the first reduction UO₃ → U₃O₈ and the second one U₃O₈ → UO₂. At the bottom of this zone, the solid is usually almost composed of only UO₂,
- the buffer zone, which allows the transition between the reduction zone and the hydrofluorination zone and the cooling of the solid charge,
- the vertical hydrofluorination zone, where UO₂ pellets descend and encounter a counter-flow of gaseous hydrogen fluoride HF, to produce UF₄. This zone can be further divided into two distinctive parts. The upper one presents in its central part a heat exchanger, which helps to cool the bed. The second one, below the heat exchanger, is only filled with the moving bed,

^{*} Corresponding author. Tel.: +33-383-584-262;

E-mail address: dussoubs@mines.u-nancy.fr (B. Dussoubs).

 $^{0009\}text{-}2509/03/\$$ - see front matter © 2003 Elsevier Science Ltd. All rights reserved. doi:10.1016/S0009-2509(03)00121-0



Fig. 1. The moving bed furnace and the chemical reactions taken into account in the model.

• the horizontal hydrofluorination zone, where an Archimedes screw allows to extract the solid UF₄ whereas hydrofluorination is completed by the counter-flow of gaseous HF introduced at the other end of the zone.

Part 1 (Dussoubs et al., 2003) of this two-part paper has featured the mathematical model that we developed for simulating the process, as well as the numerical technique used. The model is two-dimensional and steady-state. It describes the solid and gas flow, the convective, conductive and radiative heat transfer, and the various chemical reactions occurring in the different zones. A calculated temperature map of the furnace in standard operating conditions has been presented and shown to be in satisfactory agreement with available on-line measurements.

In this second part, detailed results of this simulation (e.g. the profiles, in the different parts of the furnace, of temperature, chemical reaction rates, molar fraction of gases and

 Table 1

 Parameters used in the reference computation

mass fractions of solid species) are given and discussed. These results are very instructive to show in details the way the reactions take place in the furnace and to reveal the phenomena that control the process.

To further understand the behaviour of the furnace, the influence of various operating parameters was also studied with the model. The more significant results are presented and commented thereafter.

Then, we have checked the validity of the law of additive characteristic times that we employed to determine the reaction rate of the principal chemical reactions occurring in the moving bed furnace. The conversion degree of a pellet obtained with this analytical law is found to be in very good agreement with the conversion degree obtained from a more complex numerical grain model.

Finally, we tried to determine an optimal temperature progression in the vertical hydrofluorination zone of the furnace, i.e. the temperature profile that maximises in each point the hydrofluorination rate. Though those results remain theoretical, we show that significant decrease in furnace dimensions could be reached if the temperature was optimised.

2. Reference case simulation

2.1. Parameters of the reference case

This part presents the calculated results obtained for a standard set of industrial operating parameters of the moving bed furnace. Those parameters are presented in Table 1. Note that some of them are not expressed quantitatively for confidentiality reasons.

2.2. Conversion of UO_3 in the reduction zone

Fig. 2 presents the principal results concerning the reduction zone: reaction rates for cracking of ammonia (a), first reduction (b) and second reduction (c), temperature (d), mass fraction of UO₃ (e) and UO₂ (f), respectively. Radial and axial coordinates are normalised by the radius and height of the reduction zone R_r and H_r (including the buffer zone). R = 0 corresponds to the symmetry axis. The

Mass flow rate of HF fed into the horizontal hydrofluorination zone	$Q_{\rm HF}$
Temperature of the HF fed into the horizontal hydrofluorination zone	200°C
Cracked amount of ammonia introduced in the reduction zone	60%
Mass flow rate of uranium fed into the furnace	$Q_{ m U}$
Apparent density of the inlet uranium oxide bed	1570 kg m^{-3}
Porosity of the moving bed in the reduction zone	0.5
Porosity of the moving bed in the vertical hydrofluorination zone	0.5
Porosity of the moving bed in the horizontal hydrofluorination zone	0.4
Mean pellet diameter in the reduction zone	25 mm
Mean pellet diameter in the vertical hydrofluorination zone	6 mm
Fraction of hydrofluorination gases entering the reduction zone	50%



Fig. 2. Isovalues in the reduction zone: reaction rate, mol $m^{-3} s^{-1}$ for (a) cracking, (b) first reduction, (c) second reduction, (d) temperature, °C, (e) mass fraction of UO₃, (f) mass fraction of UO₂. Reference case.

locations of the gas inlet and muffles are marked close to the outer wall, on the right of the figure.

The ammonia introduced in the reduction zone is cracked in the bed when the temperature is over 600° C, which occurs at the level of the heating muffles (Fig. 2a). The hydrogen produced encounters the solid descending the furnace and enables the reduction reactions. The first reduction $3UO_3 + H_2 \rightarrow U_3O_8 + H_2O$ is quick and takes place at the



Fig. 3. Isovalues in the vertical hydrofluorination zone (a) temperature, $^{\circ}$ C, (b) hydrofluorination rate, mol m⁻³ s⁻¹. Reference case.

very top of the furnace (Fig. 2b), as soon as UO₃ is fed. The second reduction $U_3O_8 + 2H_2 \rightarrow 3UO_2 + 2H_2O$ is initiated only when first one has finished, and attains its maximum rate in the same zone as the cracking of ammonia (Fig. 2c). The second reduction is slower than the first one, but at the bottom of the zone, the mass fraction of UO₂ is superior to 0.99. Calculation of the Thiele modulus (not plotted), that is the ratio of the characteristic time of intergranular diffusion to the characteristic time of chemical reaction (see e.g. Eqs. (9) and (10) in Dussoubs et al., 2003) shows that the two reductions are under diffusion control.

The maximum temperature is located in the area where the first reduction ends and the second begins. Heating mostly

results from the exothermicity of the reduction reactions, the effect of the muffles being lesser, and is moderated by the endothermicity of the cracking reaction down to the hottest zone. In the buffer zone, temperature goes on decreasing by external cooling down to 100°C at the bottom.

2.3. Hydrofluorination of UO_2 in the vertical hydrofluorination zone

Figs. 3 and 4 illustrate results in the vertical hydrofluorination zone: temperature (Fig. 3a), hydrofluorination rate (Fig. 3b), deviation from equilibrium (Fig. 4a) and mass fraction of UF₄ (Fig. 4b). The upper parts of these figures



Fig. 4. Isovalues in the vertical hydrofluorination zone (a) deviation from equilibrium, (b) mass fraction of UF₄. Reference case.

correspond to the moving bed flowing around the heat exchanger (not shown) and the lower parts below this exchanger. The radial scale is normalised by the outer radius R_f of the zone, whereas, for sake of legibility, heights are normalised differently in the two parts, actual H_{f1} being five times greater than H_{f2} .

Temperature in the moving bed (Fig. 3a) increases regularly from the top to the bottom of the upper part and reaches 830° C in the lower part. High temperature gradients are noticeable near all walls: the outer wall of the furnace and the vertical and bottom walls of the heat exchanger. The walls have an important cooling effect, since temperature may decrease by more than 500° C in the vicinity of them.

Although the reaction does represent the heat source and the reaction rate is kinetically activated by temperature, the hottest zones do not coincide with the maximum reaction rate (Fig. 3b). This surprising result, which was not expected by operators before this study, is due to a thermodynamic limitation of the reaction rate. The driving force for the reaction is the deviation from equilibrium, $x_{HF} - x_{HFeq}$ (from Eq. (10) in Part 1, Dussoubs et al., 2003). The fraction of HF at equilibrium increases rapidly with temperature over 400°C (Jourde, 2000), then the deviation from equilibrium as well as the reaction rate decreases with temperature above 400°C. This thermodynamic control of the reaction at high temperature is clearly evidenced when comparing the upper parts of Figs. 3a, b and 4a. The maximum reaction rates are therefore observed near the walls at intermediate temperatures. The conversion to UF₄ is excellent in these zones (Fig. 4b).

At the bottom of the upper part, the mean mass fraction of UF₄ is about 0.70, but with strong radial gradients between a complete conversion next to the walls and a rather poor conversion in the central part of the moving bed, with a minimum value of 0.52 for the mass fraction of UF₄. In the lower part, the behaviour is not the same. A strong deviation from equilibrium exists next to the walls of the furnace, but the reaction rate is weak. This is because the solid has already been converted above and because the reaction rate tends to zero when the degree of conversion tends to one. The presence of the highly converted region in the centre (around the axis) observed in Fig. 4b is due to the fact that pellets in this zone are those coming from the well converted zone alongside the heat exchanger wall in the upper part. The existence of a thermodynamic limitation and of radial temperature and solid gradients are major findings from the model. These are of great significance for explaining the performance of the furnace and suggesting possible improvements (see Section 5).

2.4. Profiles in the horizontal hydrofluorination zone

The horizontal hydrofluorination zone is modelled as a cascade of gas and solid+gas stirred reactors (Dussoubs et al., 2003). Calculated results are therefore presented as profiles along the reactor numbers (Fig. 5).

The gas, introduced at a temperature of 200°C at the end of the zone, is gradually heated by the solid, up to the solid temperature in the first reactor, which is completely filled by the bed. Solid temperature is almost constant in the first seven reactors, around 750°C, before decreasing to 600°C by the exit. The muffles are heating the central part, but seem to have a rather poor effect, since the temperature measured on the outside walls while heating the furnace is inferior than the inside one. Fig. 5 also shows the mass fraction of UF₄, relative to its value at the exit, in the horizontal hydrofluorination zone. This relative mass fraction increases by 24% from the entrance to the exit of the zone. This results shows that, besides its extracting function, the horizontal hydrofluorination zone effectively contributes to the conversion. The mass fraction increase in the first reactor is strong, due to the large solid volume in this reactor. In the horizontal hydrofluorination zone, hydrofluorination is not limited by thermodynamics, despite the high temperature, because of the low H₂O content of the gas. The rate decreases along the zone as the conversion is high and tends to one.

3. Effect of variating parameters

3.1. Mean pellet diameter d_p

The UO₃ pellets fed at the top of the furnace are formed into 25 mm spheres in an upstream pelletising machine. At the furnace outlet UF₄ pellets exhibit an average size of 6 mm. It is believed that initial pellets break up during



Fig. 5. Profiles of (a) temperature, and (b) relative mass fraction of UF₄, and hydrofluorination rate in the horizontal hydrofluorination zone. Reference case.

their reduction. This is modelled by making the pellet size decrease in the reduction zone from 25 to 6 mm as a linear function of the mass fraction of UO_2 formed. In the following simulation, the breakage is ignored so that pellets diameter remains 25 mm throughout the furnace. Figs. 6 and 7 illustrate the results in the reduction and vertical hydrofluorination zone, respectively.

In the reduction zone, the main result is to slow down the second reduction (compare Figs. 2c and 6b). Indeed, the rate of this reaction is controlled by diffusion, as indicated by a Thiele modulus greater than 10 (Fig. 6d), and is thus inversely proportional to the square of the pellet diameter. Consequently, the second reduction is very incomplete: almost 28% of U_3O_8 remain at the bottom of the zone, as shown in Fig. 6c. The slowing down of the reduction reactions, which are exothermic, also causes a decrease in temperature of about 300°C compared to the reference case, with disappearance of the hottest zone between the muffles (Fig. 6a).

In the vertical hydrofluorination zone (Fig. 7), the rate of hydrofluorination and temperature are lower than in the



Fig. 6. Isovalues in the reduction zone: (a) temperature, °C, (b) reaction rate of the second reduction, mol m⁻³ s⁻¹, (c) mass fraction of U₃O₈, (d) Thiele modulus of the second reduction. Case $d_p = 25$ mm.

reference case, both because the diffusion resistance increases and above all because less UO_2 is available for hydrofluorination. All entered UO_2 is nevertheless converted (w_{UF_4} reaches a final value of 0.71). Most of this conversion is achieved in the vertical hydrofluorination zone.

That simulation reveals the strong influence of the variation of the pellet size. It would be of course desirable to check it locally from measurements. These results also indirectly underline the importance of the pelletising process, which determines the pellet size and strength.

3.2. Fraction of gas flowing from the vertical hydrofluorination zone to the reduction zone

In this simulation, 70% of the gas at the top of the vertical hydrofluorination zone is assumed to enter the bottom of the reduction zone, vs. 50% in the reference case. The main effect is a better cooling of the reduction zone by increased convection. The temperature only reaches a maximum value of 860° C (Fig. 8a), and the hot zone with temperatures over 1000° C is no more observed. This temperature decrease entails slower reduction rates. Especially, the second reduction fails to be completed within the active zone, i.e. above the reducing gas injection. There is a central part in the maps of mass fraction where about 10% of U_3O_8 remain (Fig. 8d).

In the hydrofluorination zone, the behaviour is similar to that of the previous case: the whole available UO_2 is converted, but, as some UO_2F_2 coming from the non-converted U_3O_8 remains, the mass fraction of UF_4 is lower than in the reference case.

This simulation illustrates the sensibility of the reactor, also observed in the industrial practice, to the fraction of hydrofluorination gases that passes into the reduction zone. A good control of the valve placed at the hydrofluorination outlet, which determines this fraction, is therefore crucial.

3.3. Input gas flow rate in the horizontal hydrofluorination zone

Under reference operating conditions, the mass flow rate of HF entering the end of the horizontal hydrofluorination zone only slightly exceeds the stoichiometric amount



Fig. 7. Profiles in the vertical hydrofluorination zone (a) mass fraction of UF₄, (b) temperature, °C. Case $d_p = 25$ mm.

required for a complete conversion of UO_2 . We investigated the effect of increasing HF flow rate by 20% from its reference value.

As shown in Fig. 9a, the excess HF favours the conversion in the vertical hydrofluorination zone. At the bottom of the zone, the mean mass fraction of UF₄ is 12% higher than in the reference case. Along the outer wall of the furnace, where the conversion is important, HF is still present higher in the zone, which causes a larger deviation from equilibrium, thus a higher hydrofluorination rate is observed.

However, despite this improved hydrofluorination, the mass fraction of UF_4 at the exit of the furnace is lower than in the reference case. This surprising result is explained by considering the behaviour of the reduction zone. As the fraction of hydrofluorination gases entering the reduction zone

was kept 50%, more gas flows through the bed, which results in a temperature decrease and a less complete reduction: the mass fraction of UO_2 at the bottom of the zone decreases to 0.94.

This simulation again reveals the strong interdependence between the zones. It also shows that if a higher UF_4 quality is looked for by feeding more HF, attention must be paid to prevent any increase in the flow rate of hydrofluorination gases to the reduction zone.

3.4. Input cracked fraction of NH₃

In industrial operation of the furnace, 60% of the ammonia is cracked in N₂ and H₂ before entering the reduction zone. Cracking goes on in the reduction zone under the



Fig. 8. Isovalues in the reduction zone: (a) temperature, $^{\circ}C$, (b) reaction rate of second reduction, mol m⁻³ s⁻¹, (c) mass fraction of UO₂, (d) mass fraction of U₃O₈. Case where 70% of the hydrofluorination gases enter the reduction zone.

effect of heat provided both by the muffles and the reduction reactions. In this simulation, the ammonia introduced in the reduction zone is only 40% cracked.

The cracking reaction (Fig. 10a) has the same profile than in the reference case, but the regions of important cracking are more extended. The amount of ammonia cracked inside the furnace is 35% superior than in the reference case, which causes the temperature to be lower (Fig. 10d) than in the reference case due to the endothermic effect of the cracking reaction. The decrease in maximum temperature (from around 1000°C to 800°C) slightly slows down the reduction reactions (Fig. 10b and c). But since the temperature at the bottom of the muffles is almost equal to that calculated in the reference case, the second reduction reaction may occur anyway, even if lower in the zone. At the bottom of the reduction zone, all UO₃ has been converted into UO₂ (Fig. 10d). Consequently, the hydrofluorination is not affected and the hydrofluorination zones behave as in the reference case.

This simulation enlightens the effect of cracked ammonia input in the furnace. The less cracked inlet gas leads to more cracking into the reduction zone and seems favourable, according to this simulation, for controlling the maximum temperature attained. However, below the value of 40% cracked inlet ammonia, the temperature of the reduction zone is not high enough to initiate the cracking inside the furnace, leading to an incomplete reduction and hydrofluorination.

4. Comparison with a grain model

In our model of the moving bed furnace, the rates of the principal reactions (first and second reduction, hydrofluorination) are calculated using the law of additive characteristic times (Sohn, 1978). This approach leads to an approximate analytical expression of the reaction rates and prevents us from calculating the conversion degree of each pellet using a numerical grain model, thus decreasing the calculation time (see Part 1, Dussoubs et al., 2003).

To ensure the validity of using the law of additive characteristic times, we have compared the conversion degree and the temperature of a reacting UO_2 pellet first when they are calculated with the model of the moving bed



Fig. 9. Profiles in the vertical hydrofluorination zone (a) mass fraction of UF₄, (b) temperature, $^{\circ}$ C. Case where the input hydrofluorination gas flow rate is increased by 20%.

furnace, second when they are calculated in the same conditions (temperature, gas composition) with a grain model. In the latter case, we used as a reference the model developed by Patisson, Galant François, and Ablitzer (1998), more general than the classical Grain Model (Szekely, Evans, & Sohn, 1976). This model simulates the kinetic and thermal behaviour of a particle undergoing a gas–solid reaction as $aA_{(g)} + bB_{(s)} = pP_{(g)} + qQ_{(s)}$ (*a*, *b*, *p*, *q* are the stoichiometric coefficients). It applies to a chemical reaction reversible or not, exo- or endothermic, equimolar or not. Unsteady state is taken into account, as well as the presence of inert species (solid or gas).

Calculations were made on a pellet descending the upper part of the vertical hydrofluorination zone, with the parameters (thermodynamic and transport properties, diffusion coefficients, etc.) used in the model of the moving bed furnace. A temperature and gas composition profile, issued from the moving bed results, was used as boundary conditions to the grain model. Two cases are considered here: either the pellet descends in the centre of the moving bed (leading to the worst conversion into UF_4 at the bottom of the vertical zone), or next to the outer wall (thus leading to the best conversion).

Figs. 11 and 12 present the mean conversion degree and the temperature of the centre of the pellet in these two cases. Fig. 11 shows that the conversion of the pellet is very well represented with the law of additive characteristic times in the model of the moving bed. Fig. 12 shows that, in spite of the exothermicity of the hydrofluorination, the gas temperature and the temperature at the centre of the pellet are



Fig. 10. Isovalues in the reduction zone: (a) cracking rate, mol $m^{-3} s^{-1}$, (b) reaction rate for first reduction, mol $m^{-3} s^{-1}$, (c) reaction rate for second reduction, mol $m^{-3} s^{-1}$, (d) temperature, °C, (e) molar fraction of NH₃, (f) mass fraction of UO₂.



Fig. 11. Conversion degree X_{UO_2} of a pellet descending the upper part of the vertical hydrofluorination zone, in the centre of the bed or next to the external wall. Continuous line, grain model of Patisson et al. (1998). Dotted line, model of the moving bed furnace with the law of additive characteristic times.

in perfect agreement, thus confirming the hypotheses of a uniform temperature in the pellet and of equal gas and solid temperatures.



Fig. 12. Temperature of the centre of a pellet descending the upper part of the vertical hydrofluorination zone, in the centre of the bed or next to the external wall, computed with the grain model of Patisson et al. (1998) (continuous line). Dotted line: temperature of the gas from the results of the moving bed furnace model.

Those results illustrate properly the validity of the hypotheses made in the complete model of the moving bed. They also represent, to our knowledge, the first numerical



Fig. 13. Hydrofluorination rate vs. temperature and conversion degree. In figure (b), the dotted line represents the optimal temperature.



Fig. 14. Profiles of conversion degree, hydrofluorination rate and temperature in the centre of the moving bed, calculated from the complete model of the furnace (dotted lines) and from the theoretical optimal temperature progression (solid lines).

validation of using the law of additive characteristic times in a multiparticle reactor model.

5. Optimal temperature progression

The hydrofluorination reaction rate is a function of temperature, conversion degree and molar fraction of hydrogen fluoride (see Eqs. (6b) and (9)-(11), Part 1, Dussoubs et al., 2003). For such an exothermic, reversible reaction, it is theoretically possible to maximise the reaction rate by setting the temperature to a correct value in each point of the reactor. This allows to determine the optimal temperature progression (Villermaux, 1993). The temperature-conversion degree curves for different reaction rates exhibit a maximum, and the optimal temperature progression corresponds to the location of maxima. This maximum is due to:

- a kinetic limitation at low temperatures. Conversion is poor due to the Arrhenius law,
- a thermodynamic limitation at high temperatures. Conversion at equilibrium decreases as temperature increases.

As a first step, we have developed a one-dimension piston-type model to study the behaviour of the reaction rate as a function of temperature and conversion degree of uranium dioxide taking into account the counter-flow. In these conditions, the molar fraction of hydrogen fluoride is linked to the conversion degree and is no more a variable. Results are illustrated in Fig. 13a and b that represents the hydrofluorination rate as a function of temperature and conversion degree. It must be noted that for a given conversion degree, the reaction rate presents a maximum vs. temperature, which is characteristic of the optimal temperature progression, but it presents also a maximum vs. conversion degree when temperature is set to a given value, which is a feature of the counter-flow (the mass fraction of UF₄ and the molar fraction of HF vary the same way in the furnace). The temperature corresponding to the maximum reaction rate varies from 350°C to 475°C when the conversion degree increases (Fig. 13b). Large parts of the furnace present a greater temperature in the hydrofluorination zone (see Fig. 3a in the reference case).

We have then introduced the optimal temperature progression in a variant of the model of the moving bed furnace. In that version, temperature is evaluated in each point in order to maximise the reaction rate and thermal balance is no more solved in the bed. The furnace simulated this way is ideal, since there is no limitation for the thermal transfer.

Results for the conversion degree, the temperature and the hydrofluorination rate in the centre of the moving bed for the upper part of the vertical hydrofluorination zone are shown in Fig. 14. These curves clearly illustrate the potential interest of an optimal temperature progression in the furnace, since a complete conversion could ideally be achieved in only a short portion of the vertical hydrofluorination zone. Nevertheless, one must keep in mind that the heat released by the reaction must be evacuated. Since the reaction takes place in a smaller zone of the furnace, the heat flux to be evacuated is far more higher in the theoretical temperature progression.

Finally, we have considered which modifications could be introduced in an industrial furnace to approach the optimal temperature progression. The objective is to cool the centre of the moving bed, the temperature of which is too high to match the optimal temperature progression range. We have thus considered various geometrical modifications of the furnace, like changing the radii of the moving bed while keeping the height and the total volume constant, in order to decrease its width. Fig. 15 presents the mass fraction of UF₄ at the bottom of the upper part of the vertical hydrofluorination zone as a function of the width of the



Fig. 15. Mean value of the mass fraction of UF_4 at the bottom of the upper part of the vertical hydrofluorination zone vs. the width of the moving bed, relatively to their values in the reference case, indicated by 1.

moving bed, relatively to the values in the reference case. Calculations were carried out with the complete model, including the heat balance.

As expected, the lower the width of the moving bed furnace, the higher the mean conversion degree. This is mostly due to the fact that cooling becomes more efficient in the core of the moving bed, thus leading to more homogeneous profiles of the solid composition.

6. Conclusions

A moving bed furnace, used in the French nuclear fuel making route, achieves in a single reactor the reduction of UO_3 ore pellets into UO_2 under the action of a counter-flow of cracked ammonia, followed by the hydrofluorination of UO_2 into UF_4 under a counter-flow of hydrogen fluoride HF. We have used numerical simulation as a tool for better understanding and optimising the moving bed furnace process. The specific model we developed has been described in Part 1 (Dussoubs et al., 2003). The various simulations presented and discussed in present Part 2 have indeed enlightened in detail the way the furnace operates. Important features have been revealed from the calculation results.

In the reduction zone, the location of the different reactions has been precised: the first reduction, $UO_3 \rightarrow U_3O_8$, quickly occurs at the very top of the furnace, whereas the second, $U_3O_8 \rightarrow UO_2$, is slower, takes place in a wider region and, in some instances, may not be fully completed. But the most significant findings concern the hydrofluorination zone. Calculation shows that conversion of UF₄ is very slow in large zones at the core of the bed. This can be attributed to a thermodynamic limitation at high temperature and to strong radial temperature gradients.

Different parameters have been varied and their effect has been presented and discussed. The results obtained show the sensibility of the furnace to some of them, as observed industrially, and highlight the interdependence of the various zones of the furnace. It is particularly important to ensure a complete conversion of UO_3 into UO_2 in the reduction zone, in order to later produce a well converted UF_4 in the hydrofluorination zone.

Two assumptions of the model, namely the hypotheses of equal gas and solid temperatures and of using the law of additive characteristic times (for calculating the reaction rates) have been ascertained by comparison with a grain model under the same operating conditions. The latter is the first reported verification of the validity of the law of additive characteristic times for multiparticle systems. This approach appears to us generally applicable to other gas– solid reactors.

Finally, the model has been applied to the determination of an optimal temperature progression in the furnace, in order to optimise the conversion as a function of the height of the reactor. The reduction of the moving bed width, by decreasing the radial temperature and solid composition gradients in the bed, has proven efficient.

Notation

- d_p mean diameter of solid pellets, m
- *H* height, m
- Q mass flow rate, kg s⁻¹
- r reaction rate, mol s⁻¹ m⁻³ of bed
- R radius, m
- *T* local temperature, K

- wmass fractionxmolar fraction
- $X_{\rm UO_2}$ conversion degree of UO₂

Subscripts

eq	at thermodynamic equilibrium
f	hydrofluorination/hydrofluorination zone
f1	upper part of the hydrofluorination zone

f 1 upper part of the hydrofluorination zone *f* 2 lower part of the hydrofluorination zone

r reduction

References

- Dussoubs, B., Jourde, J., Patisson, F., Houzelot, J. L., & Ablitzer, D. (2003). Modelling of a moving bed furnace for the production of uranium tetrafluoride. Part 1: Formulation of the model. *Chemical Engineering Science*, in press.
- Jourde, J. (2000). *Modélisation numérique du four à lit coulant réalisant la conversion du trioxyde d'uranium en tétrafluorure*. Doctorate thesis, INPL, Nancy, France.
- Patisson, F., Galant François, M., & Ablitzer, D. (1998). A non-isothermal, non-equimolar transient kinetic model for gas–solid reactions. *Chemical Engineering Science*, 53(4), 697–708.
- Sohn, H. Y. (1978). The law of additive reaction times in fluid-solid reactions. *Metallurgical Transactions*, 9B, 89-96.
- Szekely, J., Evans, J. W., & Sohn, H. Y. (1976). Gas-solid reactions (pp. 125–160). New York: Academic Press.
- Villermaux, J. (1993). Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs (2nd ed.). Paris: Lavoisier Tec& Doc.

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

C. Simulation des procédés d'élaboration des alliages

Mes activités actuelles portent principalement sur la modélisation des procédés pyrométallurgiques (élaboration par bombardement électronique, refusion à l'arc sous vide et sous laitier électroconducteur). Là aussi, des codes de calcul du procédé permettent à la fois de faire progresser les activités de recherche tout en étant partagés avec nos partenaires industriels au sein d'un club d'utilisateurs.

C.1 Modélisation du bombardement électronique dans un four BE (P31, P33, P48, C10 ; P31 incluse ci-après)

La demande de produits métallurgiques toujours plus performants nécessite un très bon contrôle du traitement des alliages afin de :

- Réduire la présence des éléments résiduels tels que l'oxygène et l'azote,
- Maitriser la quantité de défauts (porosité, inclusions, etc.),
- Mieux contrôler la composition de l'alliage avec une macroségrégation minimisée dans le lingot solidifié.

Ces objectifs peuvent certes être atteints en améliorant les procédés standards de traitement et de refusion des métaux liquides, mais également en développant de nouvelles techniques de traitement. Dans ce cadre, les procédés de fusion et d'affinage dans un four BE ont été développés particulièrement au début des années 90 et présentent un fort intérêt notamment dans le cas des alliages de titane en raison de leurs capacités à éliminer les défauts de type hard-alpha.

Dans la technique EBCHR (pour Electron Beam Cold Hearth Refining), les étapes de raffinage et de solidification sont séparées : un premier canon à électrons fait fondre la charge, qui peut prendre diverses formes (lingot, éponge, etc.). Le métal fondu s'écoule dans un creuset peu profond refroidi à l'eau (sole froide ou cold hearth), où un ou plusieurs canons à électrons maintiennent la température du métal liquide. À l'autre extrémité de la sole froide, le métal fondu s'écoule par une lèvre dans un moule en cuivre refroidi à l'eau pour former le lingot secondaire. L'une des fonctions majeures de la première étape est de séparer les inclusions plus lourdes de celles plus légères que l'alliage liquide, tout en augmentant le temps de séjour dans le bain de ces dernières, qui ont un point de fusion élevé, afin d'assurer leur dissolution complète. Ces opérations sont effectuées sous un vide poussé afin d'assurer le bon fonctionnement des canons à électrons et d'éviter la contamination de l'alliage.

Le procédé de fusion par faisceau d'électrons présente plusieurs avantages :

- Séparation des étapes d'affinage (dans la sole froide) et de solidification (lingot secondaire),
- Élimination efficace des éléments volatils tels que le chlore et l'hydrogène (du fait du vide poussé) et des inclusions,
- Bonne maîtrise du flux d'énergie du faisceau d'électrons en termes de puissance et de localisation,
- Flexibilité de l'alimentation en matériau (lingot, éponge ou ferrailles).

A contrario, le principal inconvénient du procédé consiste en des pertes importantes d'éléments d'alliage tels que l'aluminium (par volatilisation). Ceci peut conduire à une pollution des parois de la chambre et peut rendre difficile le contrôle de la composition chimique du lingot coulé. De plus, si les canons à électrons sont un atout du procédé, leurs paramètres de contrôle sont difficiles à optimiser (motif, fréquence de balayage et focalisation).

La modélisation mathématique s'est avérée un outil puissant, à la fois pour l'analyse des processus et pour l'optimisation des paramètres de fonctionnement. Une modélisation numérique du comportement hydrodynamique, thermique et solutal de l'alliage de titane, dans la sole froide et dans la lingotière, a été développée à l'Institut Jean Lamour afin de contrôler la volatilisation des éléments d'alliage et d'améliorer la capacité du procédé pour l'élimination des défauts de type hard-alpha.

Mon travail a été consacré à la première partie (sole froide) à travers une collaboration avec la société allemande ALD, fabricant de fours BE. Contrairement à la modélisation du lingot dans la deuxième partie, il n'y a pas de symétrie évidente dans le procédé, une modélisation en 3 dimensions est donc nécessaire. Nous nous sommes orientés vers le logiciel Ansys Fluent. Il a toutefois été nécessaire de
l'adapter à notre problématique, en développant un certain nombre d'UDF (User Defined Functions, fonctions développées en langage C et pouvant ensuite être compilées et liées au programme lors de son exécution).

Ces développements ont permis entre autres de représenter de façon réaliste le balayage en régime transitoire du faisceau d'électrons. Les simulations, menées aussi bien sur le four pilote du laboratoire que sur des fours de type industriel, ont montré que l'écoulement du métal est réduit à un mince film de liquide ne représentant en moyenne que 15% de la profondeur totale du métal dans la sole froide. La zone cible du faisceau est soumise à un flux local élevé, qui à son tour produit un fort gradient de température dans cette zone. L'évaporation en éléments d'alliage peut être évaluée, et donc la compensation nécessaire pour assurer la composition nominale après solidification peut être déterminée.

La figure 7 présente les deux parties du procédé ainsi que les motifs des canons à électrons dans un cas de référence. L'entrée de matière est perpendiculaire à la sole froide, le métal « tombant » au niveau de la zone rectangulaire rouge. 2 canons dessinent des motifs rectangulaires sur la sole, un 3^{ème} chauffe le creuset (motif circulaire) et dessine une ellipse (en bleu ciel) sur la sortie de la sole. L'écoulement se fait de la gauche vers la droite.



Figure 7 : Motifs dessinés par les canons à électrons, cas de référence.

Des événements de fusion, tels que l'interruption du fonctionnement d'un canon (éventuellement compensée par le mouvement d'un autre canon) peuvent être représentés, et leur effet sur l'homogénéité du lingot final peut être déterminée, démontrant l'efficacité des modèles numériques pour simuler des cas de production réels.

À titre d'exemple, la figure 8 présente un accident par rapport au cas de référence de la figure 7 : le deuxième canon est arrêté, et le canon qui balaie le creuset et la sortie de la sole (en bleu clair) est utilisé pour dessiner des motifs en forme d'ellipses afin de conserver un canal central liquide permettant l'écoulement du métal fondu. La puissance de ce canon est augmentée à cette fin.



Figure 8 : Motifs dessinés par les canons à électrons, cas d'un incident.

On peut voir sur la figure 9 l'effet de cet incident 10 secondes après l'arrêt du canon.



Figure 9 : Carte du puits liquide en surface de la sole froide dans le cas de référence (gauche) et après 10 secondes d'interruption du canon n°2 (droite).

Le rétrécissement rapide de la zone liquide est bien visible, et la composition de l'alliage en sortie du bain évolue rapidement. La figure 10 présente le profil médian en aluminium le long de la sole froide, en surface, dans le cas de référence et après 20 secondes d'interruption du canon n°2. On remarque la plus faible évaporation de l'aluminium dans la zone de sortie de la sole froide, ce qui a des conséquences importantes sur la composition du lingot coulé.



Figure 10 : Profil médian en aluminium le long de la sole froide, en surface.

Ci-après est inséré l'article suivant :

B. Dussoubs, J.P. Bellot, G. Reiter, J. Flinspach : Numerical Simulation of the EBCHR Operation for Working Towards Optimization and Process Control, *Proceedings of the Liquid Metal Processing and Casting Conference*, Santa Fe, Etats Unis, 19-21 September 2005, (eds.) P. D. Lee et al., (Pub) ASM International, 233-242 (2005). *10 pages.*

Numerical Simulation of the EBCHR Operation for Working Towards Optimization and Process Control

B. Dussoubs, J.P. Bellot

Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie (LSG2M, UMR 7584 CNRS) Ecole Nationale Supérieure des Mines de Nancy (ENSMN) Parc de Saurupt, 54042 Nancy Cedex, France

G. Reiter, J. Flinspach

ALD Vacuum Technology GmbH, Wilhelm-Rohn-Str. 35 - 63450 Hanau, Germany

Abstract

The mathematical models of the refining and solidification steps of the EBCHR process have been developed at the Ecole des Mines de Nancy with the aim of a better understanding of the coupled mechanisms (heat, mass and momentum transfer) involved. Otherwise the numerical simulation of this melting operation offers a low cost means for working towards the optimization and the process control.

A comparison between numerical and experimental results for a melting test performed on a pilot furnace is presented into details and provides a validation of the softwares. Finally large part of the paper is devoted to examine simulation results of an industrial type furnace used for the melting of Ti alloy. In order to demonstrate the usefulness of these models, the authors highlight the influence of an operating incident such as the interruption of a gun power on the aluminium losses.

Keywords: remelting process, numerical simulation, Ti alloy, optimization

Nomenclature

- $\begin{array}{lll} a & activity \\ C_p & specific heat, J kg^{-1} K^{-1} \\ C_\mu & constant of the k-\epsilon turbulence model \\ D_i & mass diffusivity, m^2 s^{-1} \\ r_p & nb of EB scans within a dwell time \end{array}$
- \mathbf{g} gravitational acceleration, m s⁻²
- g₁ liquid fraction (mass or volume fraction)
- h heat transfer coefficient, W $m^{-2} K^{-1}$
- k turbulent kinetic energy, J kg⁻¹
- k partition ratio
- K permeability of the mushy zone, m²
- K_0 permeability constant (Cozeny Karman's relation), m²
- M_i molecular weight, kg mol⁻¹
- P pressure, Pa
- P⁰ saturating vapor pressure, Pa
- R gas constant, kg m² s⁻² mol⁻¹ K⁻¹
- t time, s

- Т temperature, K flow velocity in the liquid, m s⁻¹ v Cartesian coordinates, m x,y,z Greek Symbols thermal expansion coefficient, K⁻¹ βτ latent heat of volatilization, J kg⁻¹ ΔH_{v} dissipation of the turbulent kinetic energy, W kg⁻¹ 3 small number ε_k emissivity εr radiative heat flux density, W m⁻² φr molar flux density of evaporation, mol m⁻² s⁻¹ φ_{v} volatilization heat flux density, W m⁻² φ_{v,q} thermal conductivity, W m⁻¹ K⁻¹ λ molecular viscosity, kg m⁻¹ s⁻¹ μ mass density, kg m⁻³ ρ Stefan Boltzmann constant, 5.68 10⁻⁸ Wm⁻²K⁻⁴ σ Shear stress. N σ_{s} mass fraction ω_i ∇ nabla operator Subscripts alloying element index i liquid 1 liquidus liq EB pattern р solidus sol surf surface
- t turbulent
- wall wall

Introduction

Increased demand for higher performance products requires greater control of alloy processing in order to yield:

- a reduction or control of residual elements such as oxygen and nitrogen,
- a controlled amount of defects (porosity, inclusions, etc.),
- an improved control of alloy composition with minimized macrosegregation in the solidified ingot.

These goals can be reached by improving standard liquid metal treatment and remelting processes, but also by developing new processing techniques.

In the early 90's, the EB melting and refining processes have been developed and have known a particular interest in the case of titanium alloys because of their promising abilities to eliminate hard-alpha defects¹. Since the beginning of the new century, the Electron Beam Cold Hearth Remelting process (EBCHR) has become very successful and the number of industrial EB furnaces keeps growing over the world.

In the EBCHR technique, the refining and solidification stages are clearly separated, as shown schematically in Fig. 1.



Figure 1: Schematic diagram of the EBCHR process

A first electron gun melts the charge, which can have a variety of forms (ingot, sponge or scrap). The molten metal flows into a shallow water-cooled crucible (the cold hearth), where one or more electron guns maintain the temperature of the liquid metal. At the other end of the hearth, the molten metal flows over the outlet lip into a water-cooled copper mould to form the secondary ingot. One of the major functions of the cold hearth furnace is to separate inclusions heavier or lighter than the liquid alloy, while at the same time increasing the residence time of lower density particles that have a high melting point in order to ensure their complete dissolution.

All these operations are performed inside a high vacuum chamber in order to ensure proper operation of the electron guns and to avoid alloy contamination. The electron beam melting process presents the following advantages:

-separation of the refining (in the cold hearth) and solidification (the secondary ingot) stages,

- effective elimination of volatile elements such as chloride and hydrogen (due to high vacuum) and of inclusions in the hearth,
- good control of the electron beam energy flux in terms of power and localisation,
- flexibility of feed material (ingot, sponge or scrap).

The main drawback of the process is significant losses of alloying elements such as aluminium by volatilization. It provokes a pollution of the chamber walls and makes it difficult to control the chemical composition of the as-cast ingot. Furthermore, the assessment of the energy flux is difficult. Although the high-technology electron guns are the asset of the process, their control parameters are hard to optimise (pattern, scanning frequency and focusing).

Mathematical modelling has proved to be a powerful tool, for both process analysis and for the optimization of operating parameters. A numerical modelling of the hydrodynamic, thermal and solute behaviour of the titanium alloy in the cold hearth and in the water cooled ingot crucible has been developed at the Ecole des Mines de Nancy in order to control the volatilization of the alloying elements and improve the capacity of the process to remove hard-alpha defects.

Description of the two models "Chaos" and "Bingo"

With the aim of representing the thermophysical mechanisms as precisely as possible, two comprehensive numerical models were developed:

- the "Chaos" software for the cold hearth,
- the "Bingo" software for the final ingot.

This modelling does not include the melting stage of the process i.e. the melting of the granules in the hearth or the heating and melting of the primary electrode. The two models take into account all the different physical phenomena involving momentum and solute transport in the liquid pools and the heat transport in the liquid and solid phases, together with their interactions. The Chaos software is 3D to properly describe the geometry of the cold hearth whereas the Bingo software assumes an axisymmetrical geometry.

Transport Equations

In order to take into account the effect of turbulence on the overall transport phenomena, Boussinesq's turbulent intensity concept was applied to the three transport equations (Equations 2 to 4). These equations assume the thermophysical properties (ρ , μ , λ and C_p) to be independent of temperature, except for the gravitational source term in the Navier-Stokes equations, which describes the effects of thermal convection force.

$$\left[\frac{\partial \rho}{\partial t}\right] = -\nabla(\rho \mathbf{v}) \tag{1}$$

$$\left[\rho\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t}\right] + \rho(\mathbf{v}.\nabla)\mathbf{v} = \nabla\left(\left(\mu + \mu_t\right)\nabla \cdot \mathbf{v}\right) - \nabla \mathbf{P} + \rho \mathbf{g} - \frac{\mu}{K}\mathbf{v} \quad (2)$$

$$\left[\rho C_{p} \frac{\partial T}{\partial t}\right] + \rho C_{p} \mathbf{v} \cdot \nabla T = \nabla \left(\left(\lambda + \lambda_{t}\right) \nabla T \right)$$
(3)

$$\left\lfloor \frac{\partial \omega_{i}}{\partial t} \right\rfloor + \mathbf{v} \cdot \nabla \omega_{i} = \nabla \left(\left(\mathbf{D}_{i} + \mathbf{D}_{it} \right) \nabla \omega_{i} \right)$$
(4)

The zero velocity value in the solid and the specific flow conditions in the interdendritic regions are modelled by adding a source term in the equation (2). The permeability K is calculated using a Kozeny-Carman law:

$$K = K_0 \frac{g_1^3 + \varepsilon_K}{\left(1 - g_1\right)^2}$$
(5)

 ϵ_K is a small number to prevent division by zero in equation (2) when g_l is equal to zero.

For a multicomponent alloy, such as the majority of those employed in industrial practice, the variation of the liquid fraction as a function of both temperature and concentrations of all the alloying elements is generally not known. Therefore, the liquid fraction g_1 is simply assumed to vary linearly between the liquidus T_{liq} and solidus T_{sol} temperatures:

$$g_1 = \frac{T - T_{sol}}{T_{liq} - T_{sol}}$$
(6)

This relation assumes that the evolution of latent heat occurs uniformly over the solidification range.

In the cold hearth, redistribution of the solute content at the solidification front during a transient regime is considered negligible. On the contrary, solute redistribution at the solid/liquid interface of the secondary ingot is calculated and the solute transport equation solved by the Bingo software is expressed as:

$$\left[\frac{\partial \omega_{i}}{\partial t}\right] + \mathbf{v} \cdot \nabla \omega_{il} = \nabla \left(\left(\mathbf{D}_{i} + \mathbf{D}_{it} \right) \nabla \omega_{il} \right)$$
(4b)

where ω_i is the mean solute content (liquid and solid) in the mushy zone and ω_{il} is the solute content in the liquid phase. The model assumes solute diffusion to be infinitely rapid in the solid phase, leading to the following relation between ω_i and ω_{il} :

$$\omega_{il} = \frac{\omega_{i}}{1 + (1 - g_{1}(k_{i} - 1))}$$
(7)

The variations of density with temperature are taken into account only in gravitational force term in equation (2), by introducing thermal expansion coefficient β_T :

$$\beta_{\rm T} = -\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial \rho}{\partial \rm T} \right)_{\rm P,\omega_{\rm i}} \tag{8}$$

In an effort to identify a reasonable way for predicting turbulence viscosity in the thin liquid layer (in the hearth) and in the liquid pool (at the top the ingot), we use a k- ϵ model developed initially by Launder and Spalding². The turbulent viscosity is calculated from the local values of k and ϵ :

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \tag{9}$$

The turbulent conductivity λ_t and turbulent solute diffusivity D_{it} which appear in equations (3) and (4) are determined from

 μ_t considering the turbulent Prandtl and Schmidt numbers close to unity.

Boundary conditions

Conditions at the bath surface

At the beam impingement point, the kinetic energy of the electrons is converted into thermal energy, but the backscattering of electrons results in important losses which are in the range of 20 to 30% of the incident energy³. In order to distribute the heat power across the surface of the hearth, the beam combines two movements:

- the scanning of a pattern (which can be a line, an ellipse, a filled rectangle, etc.) with a repetition rate r_p and a dwell time t_p ,
- the displacement (jump) from a pattern to another.

When all patterns of the recipe have been traced, the beam starts again from the beginning, repeating the movement. The model describes the distribution of heat over the surface taking into account the shape of the patterns and the dwell times. Since the repetition rate r_p has usually a high value in industrial practice, the heat power distribution over a pattern is constant as confirmed by thermocamera measurements. Table 1 and Fig. 2 give an illustration of the input data used. As a function of the simulation time, the heat power distribution is calculated.

 Table 1: Example of input data for the description of the spot motion (Gun #i).

Gun i Pi (=U I) ϵ_{EB}^{i} (standard deviation of the beam spot)						
Pattern	x _{min} coord.	z _{min} coord.	distance	distance	dwell time	
type	(m)	(m)	a (x dir.)	b (z dir.)	(ms)	
Rectangle	0.2	0.1	0.4	0.15	150	
Line	0.8	0.05	0	0.3	20	
Line	1.2	0.2	0.35	0	30	
Ellipse	1.6	0.2	0.4	0.25	80	



Figure 2: Schematic diagram of the beam patterns (top view of the hearth).

The metal surface radiates heat to the furnace walls, at a flux density given by:

$$\phi_{\rm r} = \sigma \varepsilon_{\rm r} \left(T_{\rm surf}^4 - T_{\rm wall}^4 \right) \tag{10}$$

Evaporation fluxes are calculated for the base metal atoms and particularly for those of volatile solute elements (Al in the case of Ti64), using Langmuir's law:

$$\varphi_{v,i} = \frac{a_i P_i^0(T)}{\sqrt{2\pi M_i RT}}$$
(11)

while the saturating vapour pressure P_i^0 for each metal species is given as a function of temperature by Dupré's law. In equation (11), the activity is equal to 1 for the base metal (Ti) and is expressed by using a Henri's law for alloying element such as aluminium.

The heat flux density lost by volatilization is calculated from the volatilization flux densities of the volatile species i (Equation (11)) and the latent heats of volatilization at the surface temperature T:

$$\phi_{v,q} = \sum_{i} \phi_{v,i} \Delta H_{v,i}(T)$$
(12)

Local surface tension gradients in the bath give rise to shear stresses (Marangoni effect):

$$\tau = \mu \frac{\partial v_i}{\partial x_j} = \frac{\partial \sigma_s}{\partial x_i}$$

The derivative of surface tension with respect to x_i is separated into the variation of surface tension with temperature (which is a thermodynamic parameter) and the temperature gradient. Therefore, the following equation is obtained:

$$\tau = \left(\frac{\partial \sigma_{s}}{\partial \Gamma}\right) \left(\frac{\partial \Gamma}{\partial x_{i}}\right)$$
(13)

Conditions at the walls

The model uses a Fourier condition to express the heat transfer between the metal solidified and the water cooled walls. The heat-transfer coefficient takes into account the heat lost by radiation across the gap caused by solidification shrinkage ($h = 50 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) and the heat lost by contact in a case of a perfect contact metal/crucible ($h = 800 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$). In the case of the cold hearth, the heat transfer coefficient depends of the ratio between the surface of contact and the total surface of the walls. Since this ratio is estimated to be closed to 50% a value of h equal to 400 Wm^{-2}K^{-1} is used.

Numerical solution and results

Chaos software (cold hearth)

The Fluent (version 6.1.22) commercial finite volume calculation code is used to solve the transport equations (Equations (1) to (4)) in both steady and transient regime, based on a three-dimensional Cartesian geometry. The Navier-Stokes equations are solved using the SIMPLEC algorithm. The scheme of extrapolation for the scalar transport equations is a first order power law whereas a second order Quick scheme is employed for the heat transport equation. Numerous modules were added to the code in order to adapt it to the case considered (boundary conditions). For a complete steady simulation treated below (90 000 cells), the computing time required was about twenty hours on 230 Mflop HP 9000/785 workstation.

The model calculates the fluid velocity, the turbulence intensity, the chemical composition and temperature fields in the cold hearth at any time. The thickness of the solidified skull (metal solidified on the cooled crucible walls) is also predicted as well as the total volume of the liquid pool. An overall balance calculates losses due to volatilization, together with the mean solute concentration in the outlet lip. Moreover, an overall heat balance predicts the heat lost by the different surfaces and mechanisms.

Bingo software (secondary ingot)

The numerical technique used to solve the coupled partial differential equations (Equations (1) to (4)) in the model is the finite volume method. The algorithm employed to treat the Navier-Stokes equations is close to the SIMPLE algorithm developed by Patankar⁴, involving a staggered grid and an implicit upwind differencing scheme. The systems of nonlinear equations are solved for each time increment by a Gauss-Seidel method, with successive relaxations. In order to take into account ingot growth, it is necessary to use a mesh which varies with time. The method chosen consists in adding an extra line of mesh for each time increment corresponding to the melting of an equivalent volume of metal. The grid size and time step are therefore related via the melting rate and composition of the alloy cast. As all the input parameters in the model, the melting rate can vary with time. The calculation can thus simulate the entire remelting cycle, including possible hot-topping and cooling. For a complete transient simulation treated below (4000 cells at the end of the ingot growth), the computing time required was about seven hours on 230 Mflop HP 9000/785 workstation.

The model calculates at each time step of the ingot growth the temperature and solute content field together with the flow condition in the liquid pool (velocity and turbulence intensity). Since the cooling stage of the secondary ingot can be simulated, the location of the final shrinkage pipe is predicted. Total evaporation losses on the pool surface, maps of segregation index and of local solidification time give useful metallurgical characteristics of the as-cast ingot.

Validation of the model

A melting test has been carried out at ALD in Hanau in 1995. Figure 3 presents a schematic diagram of the ALD pilot furnace. Two 250 kW EB guns were set up to melt the charge and to supply the heat input to the hearth and ingot surfaces. The charge was composed of Ti64 bars and a 250 mm ingot 800 mm in length, was produced.



Figure 3: Sketch of the ALD furnace for the melting test.

Different measurements have been carried out during and after the trial:

- measurement of surface temperature (thermocamera),
- analysis of Al content of the ingot,
- macrographic observation of the profile of the skull of the cold hearth and of the shape of the liquid pool of the as-cast ingot.

Figure 4 shows the power patterns at the surface of the hearth used in the simulation, as well as the dimensions of the cold hearth. The gun #1 scans a rectangular dense surface, while the gun #2 draws lines 10 cm long, excepted for the last one, close to the lip, which is 6 cm long.



Figure 4: EB patterns used in the simulation.

The dimensions of the hearth are 43.5 cm \times 15 cm \times 5.2 cm (length \times width \times depth), and the mesh is made of 100 \times 30 \times 30 cells respectively (total number of 90,000 cells). The mesh is refined next to the surface in the median section.

The main operating parameters conditions and thermophysical parameters are listed in Table 2.

Inlet temperature of the liquid metal	1800°C
Mass flow rate of the liquid metal	65 kg h ⁻¹
Copper walls temperature	100°C
Heat transfer coefficient at the walls	$400 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$
Standard deviation of the electron beam	1.5 mm *
Emissivity of the surface of the hearth	0.21
Power efficiency of the EB guns	0.7

Table 2	: Input	data for	the	simul	lation.
---------	---------	----------	-----	-------	---------

* The spot diameter of the electron beam equals 6 times the standard deviation, i.e. 0.9 cm.

Figure 5 displays the power distribution on the top surface of the hearth. The maximal value reaches 1.5 MWm⁻², whereas the mean value is around 0.8 MWm⁻². The mean power density is not the same for the 8 lines (patterns drawn by the second EB gun) since dwell times are different for each line.



Figure 5: Computed power distribution (Wm⁻²) on the top surface.

The comparison between computed and measured temperatures on the top surface, along the median section of the cold hearth is presented in Fig. 6.



Figure 6: Temperature distribution along the median section of the cold hearth, comparison between Chaos and experiments.

A discrepancy is noticed in the melting zone of the hearth which is explained by the radiation effect of the electrode (located just above the liquid metal – zone 1) on the measured values. On the contrary, simulation and measurements indicate a uniform temperature for the central and downstream zones of the hearth. Figure 7 confirms the agreement in a cross section.



Figure 7: Temperature distribution in a cross section of the cold hearth, comparison between Chaos and measurements. Middle section of the hearth, 23.5 cm from the outlet lip.

The temperature distribution in a median section predicted by Chaos is shown in Fig. 8 (the y scale (height) is multiplied by 2 for the sake of clarity). The shape of the liquid pool is given by the isovalue 0.01 of the liquid fraction (black continuous line).



Figure 8: Temperature map (°C) in the median section of the cold hearth.

The pool is shallow, with a depth of 23 mm which is 15% of the total height of the hearth. This pool depth is more or less uniform over most of the refining hearth, except near its edges. Indeed, the enthalpy transported by the liquid alloy cast deepens the pool near the inlet. An excellent agreement is noticed between the experimental and predicted liquid pool profiles (Fig. 9).

and and a second	 	
\ ↑		
$\backslash \rightarrow$		

Figure 9: Shape of the liquid pool in the cold hearth, experimental (dotted line) and computed in Chaos (continuous line).

Figure 10 illustrates the depletion of Al along the cold hearth due to the evaporation losses in the vacuum chamber. The aluminium weight content decreases from 6% (electrode) to 5.5% (outlet lip).



Figure 10: Variation of Al weight content along the median section of the cold hearth, predicted by Chaos.

In conclusion, the model results compare well with the experimentally measured surface temperatures and pool shape. The Al weight content at the outlet lip (5.5%) agrees with chemical analysis performed on the cast ingot (5.3%) since a reduction of 0.2% due to the evaporation at the ingot top is predicted by the Bingo software.

Simulation results and discussion

The Chaos and Bingo codes can be used as a predictive tool in order to optimize the EBCHR process, or to study the effect of variations of operating parameters. The dynamic simulation of an incident produced by the switch off of a gun during ten minutes is developed and the effect of this malfunction on the aluminium content in the as-cast ingot is investigated.

Description of the steady state (reference case)

Figure 11 shows the sketch of this industrial type furnace equipped with a rectangular (100 cm \times 8 cm \times 50 cm) cold hearth and an ingot crucible (60 cm in diameter). Three EB guns provide the heat power to melt the charge, to heat the surface of the refining hearth and to control the solidification process. Table 3 gathers the information concerning the distribution of the beam powers which allows the melting and refining process to be performed in a continuous mode.



Figure 11: Scheme of the EB patterns used in the reference case.

Gun	Dattorn	Localization mm		Dwell	Power,
Ouli	1 attern	Localizat	Localization, IIIII		kW
	Electrode			320	205
1	Rectangle	$\begin{array}{l} x_{\min} = 100 \\ z_{\min} = 60 \end{array}$	a = 300 b = 380	180	115
	TOTAL			500	320
2 Rectang	Doctorrolo	$x_{min} = 450$	a = 500	500	160
	Rectangle	$z_{min} = 40$	b = 420	500	100
	TOTAL			500	160
2	Ellingo	$x_0 = 900$	a = 80	85	11.5
	Linpse	$z_0 = 250$	b = 20	85	11.5
3	Ingot	Diameter	540 mm	735.4	99.5
	TOTAL			820.4	111

Table 3: EB patterns used in the simulation.

Table 4 shows the input data for the simulation. Note that the standard deviation was multiplied by 2 compared to the previous simulation presented which leads to an electron beam width around 1.8 cm, close to the experimental value observed.

Table 4: Input data for the simulation.

Inlet temperature of the liquid metal	1900°C
Mass flow rate of the liquid metal	400 kg h ⁻¹
Copper walls temperature	100°C
Heat transfer coefficient at the walls	$400 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$
Standard deviation of the electron beam	3 mm
Emissivity of the surface of the hearth	0.21
Power efficiency of the EB guns	0.7

Simulation of a incident – Switch off of a gun during 10 minutes

The gun #2 is supposed to fail and the following scenario is simulated: the power of the gun #3 is increased from 111 kW to 161.5 kW and 4 new ellipses are scanned on the hearth surface in order to compensate the missing heat power. Each ellipse is 20 cm long and 8 cm wide. They are positioned in such a way that the edges of an ellipse correspond to the centre of its neighbours. Figure 12 presents the new patterns, whose data are summarized in Table 5. After 10 minutes, the gun #2 is assumed to be fixed, power of the gun #3 is reduced to 111 kW and the former recipe (Table 3) is activated.



Figure 12: Scheme of the EB patterns used when second gun is switched off.

Table 5:	ĖВ	patterns	used	ın	the	transient	simula	tion.

T 11 **C D**

Gun	Pattern	Localization, mm		Dwell	Power,
				time, ms	KW
	Electrode			320	205
1	Rectangle	$\begin{array}{l} x_{min} = 100 \\ z_{min} = 60 \end{array}$	a = 300 b = 380	180	115
	TOTAL			500	320
	Ellipse	$x_0 = 500$ $z_0 = 250$	a = 100 b = 40	100	12
	Ellipse	$x_0 = 600$ $z_0 = 250$	a = 100 b = 40	100	12
2	Ellipse	$x_0 = 700$ $z_0 = 250$	a = 100 b = 40	100	12
3	Ellipse	$x_0 = 800$ $z_0 = 250$	a = 100 b = 40	100	12
	Ellipse	$x_0 = 900$ $z_0 = 250$	a = 80 $b = 20$	116.6	14
	Ingot	Diameter	540 mm	830	99.5
	TOTAL			1346.6	161.5

Results and discussion of cold hearth simulation

During the first seconds after the incident, the volume of the liquid pool of the refining zone shrinks and a new permanent regime is set up after 20 seconds. The fluid flow, temperature and composition of the liquid alloy quickly reach new stationary values. Figure 13 compares the liquid pool profiles on the surface between the reference case (gun #2 switched on) and after 10 seconds (gun #2 switched off).



Figure 13: Liquid pool profiles on the top surface between the reference case (left) and after 10 seconds (right).

Tables 6 and 7 present the power and mass balances, respectively, for the two steady states. In both cases, heat balances are very well respected. Water cooling and radiation represent the main heat losses, while evaporation is only a few percent of the power loss. For the "incident" case, radiative power loss decreases, not because of a lower temperature (see Fig. 14) but due to the shrinkage of the bath in the refining zone.

Thermal power, kW	Reference	Incident
EB Power	200.5	123.9
Evaporation	10.3 (4.7%)	8.5 (5.9%)
Radiation	71.2 (32.3%)	42.9 (29.8%)
Water cooling	135.6 (61.5%)	90.0 (62.6%)
Inlet	20.0	20.0
Outlet	4.0	3.8

Table 6: thermal balance for the simulated cases.

Table 7: mass balance for the simulated cases.

	Reference	Incident
w _{Al} at inlet	5.7	5.7
w _{Al} at outlet	5.27	5.37
Volat. mass flow rate of Al, kg h ⁻¹	1.93	1.48
Volat. mass flow rate of Ti, kg h ⁻¹	1.78	1.60
Liquid pool volume, l	2.08 (5.2% of the hearth volume)	1.36 (3.4% of the hearth volume)

Two parameters play an important role on the evaporation losses in the EBM process. The first parameter is the surface temperature because the total volatilization process is principally controlled by Langmuir evaporation. Indeed masstransfer resistance in the liquid weakly contributes to the overall mass flow resistance of the total volatilization process⁶. The second parameter is the mean dwell time of the alloy element in the hearth crucible resulting from the volume of the liquid bath and the melting rate. In the case studied, the two parameters have an opposite effect. The scanning of the ellipses on the refining zone produces an increase of the temperature of the EB target area (Fig. 14) but it reduces the bath volume from 2.08 l to 1.36 l (Table 7) which leads to a sharp decrease of the mean dwell time. The second effect is more important than the first one and as a result the aluminium losses are weakly reduced during the incident period (see Table 7 and Al weight content profile in Fig. 15).



Figure 14: Variation of temperature along the median section of the cold hearth.



Figure 15: Variation of Al weight content along the median section of the cold hearth.

The transient variation of Al content at the outlet lip is drawn on Fig. 16 a) and b) and confirms that the transient regime is confined in the first 20 seconds of the incident time (a). A magnification of this period of time (b) emphasizes cyclic variations with a period equal to the total scanning period of the gun#3 (1.346 s). This transient behaviour agrees well with the conclusions of former investigation⁷ on the effect of the bath scanning frequency.





Figure 16: a) Variation of mean Al weight content at the outlet of the cold hearth when gun #2 is switched off and gun #3 scans ellipses defined in Figure 12 (limited to 1 min). b) Zoom on the first 10 seconds.

Results and discussion of ingot simulation

An example of the results calculated by the Bingo software is given in Fig. 17 which draws the temperature field of the ingot at the end of melting and before cooling. The bell shape of the liquid pool results from the relatively high casting rate (400 kg/h) and from the uniform heat power density at the ingot top.



Figure 17: Temperature map of the ingot at the end of the melting.

Since the aluminium does not segregate in the titanium matrix the simulation indicates an excellent homogenization of the aluminium content within the ingot except bottom and lateral surface where the solidification rate is higher. The volatilization process on the pool surface leads to an additional depletion of Al, therefore the Al weight content changes from 5.27% (outlet lip) to 5.13% (ingot - average value).

The weak transient variation of the Al content at the outlet of the hearth affects the Al content of the final ingot an effect with the same magnitude. This effect remains weak in the present case as it can be seen in Fig. 18 with the axial Al profiles in the ingot.



Figure 18: Comparison between the axial profiles of Al weight content without (continuous line) or with incident (dotted line).

However this example shows that the combination of Chaos and Bingo softwares allows to simulate the influence of any operating conditions on the composition of the final product.

Conclusion

Two comprehensive models of the cold hearth and of the secondary ingot of the EBCHM process have been developed. As a particular feature the models considere the realistic beam scanning strategy used in modern EB processes. Simulations of a pilot furnace and of an industrial type furnace have shown that the metal flow is reduced to a thin film of liquid representing on average only 15 pct of the total depth of metal in the cold hearth. The beam target area is subject to a high local flux, which in turn produces a strong temperature gradient in that area. The Al weight content of the as-cast titanium alloy ingot is predicted taken into account volatilization losses on the hearth and ingot surfaces. An example concerning the effect of a gun interruption on the homogeneity of the final ingot demonstrates the efficiency of the numerical models to simulate real production cases. Other simulations set up beside emphasized a weak influence of the casting rate on the volatilization fluxes but a high effect on the alloy content of the ingot cast.

References

- C.E. Shamblen, *Technical Information Series Report* N°R89AERB141, General Electric Aircraft Engines, Cincinnati, OH, Jan. 31 (1989)
- 2. B.E. Launder and D.B. Spalding, *The Numerical Computation of Turbulent Flows, Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 3, 269-89 (1974)
- 3. S. Shiller, U. Heisig and S. Panzer, *Electron Beam Technology*, John Wiley & Sons, New York (1982)
- 4. S.V. Patankar, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Hemisphere Publishing Corporation, New York (1980)
- J.P. Bellot, E. Hess, S. Hans and D. Ablitzer, A Comprehensive Simulation of the Electron Beam Cold Hearth Refining of titanium Alloys, Proceedings of the 1997 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, Sante Fe, NM, 166-78 (1997)
- M. Ritchie, P.D. Lee, A. Mitchell, S.L. Cockcroft and T. Wang, X-ray based Measurement of Composition during Electron Beam Melting of AlSI 316 Stainless Steel: PartII. Evaporative Process and Simulation, *Metallurgical and Materials Trans. A*, 34A, 863-77 (2003)
- J.P. Bellot, E. Hess and D. Ablitzer, Aluminium Volatilization and Inclusion Removal in the Electron Beam Cold Hearth Melting of Ti Alloys, *Metallurgical and Materials Trans. B*, 31B, 845-54 (2000)

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

C.2 Modélisation des procédés de refusion (P13, P19, P21-23, P37, P39, P56-57 ; P23 incluse ci-après)

Les procédés de refusion à l'arc sous vide (VAR, pour Vacuum Arc Remelting) ou sous laitier électroconducteur (ESR, pour ElectroSlag Remelting) consistent à fondre un lingot primaire, appelé « électrode consommable » pour former un lingot secondaire de meilleure qualité. Ce dernier croît et se solidifie progressivement dans une lingotière refroidie par eau. Dans le cas du VAR, qui est opéré sous vide primaire et en courant continu, la source de chaleur correspond à un arc électrique qui éclate initialement entre le bas de l'électrode, qui joue le rôle de cathode, et le fond de la lingotière, qui correspond à l'anode. Les premières gouttes de métal liquide coulent au fond de la lingotière, et l'arc électrique se maintient par la suite entre le bas de l'électrode et le sommet du lingot, qui reste à l'état liquide. Le lingot croît au fur et à mesure de la fusion de l'électrode. Dans le procédé ESR, opéré en général en courant alternatif et à pression atmosphérique, la source de chaleur est un laitier fortement résistif (composé d'oxydes et de fluorures) qui couvre le lingot en cours de croissance (du fait de sa densité plus légère que celle du métal) et dans lequel l'électrode est plongée de quelques mm ou cm. L'effet Joule échauffe le laitier, et par contact avec ce dernier, le métal de l'électrode est fondu, les gouttes traversent le laitier où elles subissent un affinage chimique, et viennent s'accumuler dans le puits liquide du lingot en cours de croissance.

Dans les deux procédés, le lingot en cours de croissance est composé de 3 zones : la zone solide, qui se propage à partir des parois de la lingotière, la zone totalement liquide au sommet du lingot, maintenue dans cet état soit par l'arc électrique, soit par le contact avec le laitier, et une zone intermédiaire dite zone pâteuse, caractérisable par sa fraction volumique liquide.

À noter que dans le cas de l'ESR, une fine couche de laitier solidifié peut se retrouver emprisonnée entre la lingotière et le lingot métallique en croissance, formant ce qu'on nomme une peau de laitier, dont l'effet isolant est en général bénéfique sur les propriétés du produit.

Les lingots secondaires produits en VAR ou en ESR sont entre autres utilisés dans des applications critiques telles le nucléaire (alliages de zirconium), l'aéronautique ou la formule 1 (aciers ou superalliages, alliages de titane), etc. Il est possible d'obtenir, par une conduite fine de la vitesse de fusion et de la solidification des lingots, des produits de haute qualité. La modélisation de ces procédés, à l'échelle industrielle, est donc un outil très utile pour permettre aux industriels d'analyser et d'optimiser leurs procédés, de tester de nouvelles voies d'élaboration, de justifier auprès de leurs acheteurs de la qualité de leurs produits, de diminuer les coûts et les délais de mise au point de nouveaux produits, etc.

La mise au point de ces modèles nécessite de tenir compte des transferts couplés de chaleur et de quantité de mouvement, de la conservation des éléments d'alliage, des effets électromagnétiques, dans des alliages potentiellement complexes où la solidification joue un rôle majeur sur la structure obtenue.

La modélisation des procédés VAR et ESR remonte aux années 80 au LSG2M, notamment via les travaux d'A. Jardy. Le procédé VAR a ensuite fait l'objet de plus d'études, conduisant au modèle SOLAR (SOlidification d'un Lingot refondu à l'ARc), qui est aujourd'hui considéré comme le plus avancé au monde dans son domaine. Ces travaux ont servi de base au développement d'un modèle analogue pour la simulation de l'ESR, SOLECS (SOlidification d'un Lingot ESR et Solidification). Après avoir contribué au développement du modèle lors d'une première thèse, j'ai assuré le co-encadrement des deux dernières thèses sur le sujet. Celles-ci ont permis, après la mise au point du modèle général, d'étudier plus particulièrement deux phénomènes peu ou pas pris en compte dans les autres modèles : 1) le passage du courant dans la lingotière en cuivre. Le laitier solide est réputé isolant électriquement. Nous avons montré que ceci n'est pas toujours vrai, et qu'une quantité non négligeable de courant est susceptible de fuir dans la lingotière en fonction de la conductivité électrique et de l'épaisseur de la zone solide ; 2) l'effet des gouttes de métal. En effet, on considère habituellement que le métal au sommet du lingot est en équilibre avec le laitier au-dessus, l'interface entre les deux milieux restant plane et indéformable. Mais nos travaux prouvent que les gouttes de métal tombant de l'électrode ont tendance d'une part à se concentrer dans un rayon inférieur à celui de l'électrode, et d'autre part à avoir un impact sur une certaine profondeur de métal liquide du lingot du fait de leur inertie et de leur vitesse d'entrée dans le puits liquide de ce dernier.

À noter que depuis maintenant près de 20 ans, le développement des codes SOLAR et SOLECS plus récemment, est assuré principalement, dans le cadre de travaux de thèse, au sein d'un Club d'utilisateurs dont sont membres les sociétés Aubert et Duval (aciers et superalliages), Framatome (alliages de zirconium), Aperam (alliages base nickel) et TIMET (alliages de titane), ainsi que l'IJL. En

termes de conception et spécifications, je collabore avec 4 doctorants en moyenne, les oriente et les forme sur les méthodes numériques adaptées et le débogage des codes. J'assure également la « mémoire » des logiciels et je pilote le développement des codes (développement des interfaces graphiques, mise à jour des nouvelles versions des codes, etc.), en vue de produire un outil livrable annuellement aux partenaires industriels. Pour leur permettre d'être efficients à l'utilisation de ces logiciels, je dispense avec A. Jardy la formation ad hoc auprès des ingénieurs utilisateurs. Nous maintenons également une « hotline » et apportons une aide à l'utilisation des logiciels et à l'interprétation de leurs résultats.

Cette fois encore, les réacteurs que nous simulons sont à l'échelle industrielle et ce sont des outils de production. La mise en place du Club et les relations de confiance établies avec nos partenaires permettent une instrumentation aussi poussée que possible de leurs fours lors de campagnes expérimentales que nous menons sur site, et également la refusion par ces partenaires de lingots d'essais, dans des conditions non standard, qui sont précieux pour valider nos modèles et pour nos activités de recherche.

Pour illustrer cette étude, je présenterai quelques résultats récents sur l'ESR obtenus dans le cadre des thèses de Mathilde Hugo et Jérémy Chaulet.

Dans ce procédé, un lingot primaire, également appelé électrode, est immergé dans un laitier liquide, composé de fluorure de calcium et de divers oxydes tels que la chaux, l'alumine ou la magnésie. Le courant électrique (généralement alternatif) qui alimente le système est dissipé par chauffage Joule lors de son écoulement à travers le laitier, du fait de la forte résistivité électrique de ce dernier. La chaleur est transférée par contact à l'électrode, qui fond ensuite progressivement, formant un film à sa base. Des gouttes de métal liquide vont se former, se détacher du film, et tomber à travers le laitier (dont la masse volumique est inférieure à celle du métal). Un lingot secondaire croît ainsi dans un moule en cuivre refroidi par un circuit d'eau. Il est constitué d'une partie solide, d'une zone pâteuse et d'une partie liquide dans laquelle les gouttes de métal liquide chutent. Un schéma du procédé est présenté sur la figure 11.



Figure 11 : Schéma du procédé ESR.

La thèse de Mathilde Hugo (2011-2014), reprenant le premier modèle développé par Valentine Weber (2005-2008) a porté sur l'intégration dans SOLECS d'un module électromagnétique prenant en compte

la possibilité de passage de courant entre le laitier et la lingotière au cours de la refusion ESR. En effet, des constatations expérimentales et des résultats de simulations numériques ont récemment remis en cause l'hypothèse classique d'isolation électrique parfaite du moule, à la base du calcul électromagnétique dans le modèle initial.

La première étape de l'étude a consisté à dériver une formulation de l'équation électromagnétique compatible avec la formulation aux volumes finis. La version initiale de cette équation, basée sur la variable champ magnétique H, n'était pas adaptée pour simuler le passage de courant vers la lingotière ; c'est en considérant une nouvelle formulation basée sur la fonction courant rH qu'il a été possible de représenter correctement le comportement électromagnétique au sein de milieux de conductivités électriques très différentes (laitier ou métal liquide/laitier solide/lingotière).

Nous avons implémenté cette nouvelle écriture d'abord au sein d'un modèle présentant une géométrie comparable à celle des refusions ESR, mais fortement simplifié. Ceci a permis à la fois de valider cette formulation et d'étudier l'influence de la conductivité électrique et de l'épaisseur du laitier solidifié sur la répartition du courant et le comportement électromagnétique. Il a été ainsi montré, en régime permanent, que la valeur de la conductivité électrique du laitier solidifié a un impact considérable sur la proportion de courant dans la lingotière, d'où la nécessité de connaître la valeur précise de ce paramètre. L'effet d'une variation d'épaisseur du laitier solidifié est plus secondaire mais peut devenir important lorsque cette épaisseur diminue.

Toutefois, il n'existe pas, à ce jour et à notre connaissance, de valeurs expérimentales précises de conductivité électrique d'un laitier solidifié à haute température. Les valeurs que nous avons pu utiliser (typiquement entre 0,1 et 50, voire 100 S.m⁻¹) ont été rapportées dans la littérature. Avec celles-ci, la proportion de courant dans la lingotière n'est pas négligeable, même pour une faible conductivité électrique du laitier solidifié, rendant nécessaire sa prise en compte pour l'obtention de simulations « réalistes ». En effet, la réduction de la puissance générée par effet Joule au sein du laitier liquide qui en découle favorise la solidification du laitier au contact du moule refroidi. L'épaisseur de la peau de laitier en paroi du lingot est ainsi accrue, et la résistance thermique entre le lingot et la lingotière également. Les temps locaux de solidification du lingot secondaire risquent alors d'augmenter dans des proportions importantes.

Par ailleurs, ce travail a mis en évidence que les paramètres opératoires, ainsi que certaines propriétés thermophysiques du laitier, influent sur la distribution de courant dans le système. Ainsi, l'accroissement de la profondeur d'immersion de l'électrode au sein du laitier liquide réduit la proportion de courant au sein de la lingotière mais également la puissance dissipée par effet Joule au sein du laitier. Cependant, le modèle ne tenait pas compte de l'impact de ces changements sur la vitesse de fusion de l'électrode et ne prévoyait en conséquence pas d'influence majeure de ce paramètre sur la qualité finale du lingot.

Le taux de remplissage (rapport de la surface de l'électrode sur la surface interne de la lingotière) influence également la répartition du courant : plus il augmente et plus la proportion de courant qui pénètre dans la lingotière est élevée. L'accroissement de la section de l'électrode combinée avec l'intensification de ce phénomène de « fuite » est à l'origine d'une augmentation locale de la densité de courant au niveau de l'interface avec la paroi refroidie de la lingotière ; la solidification du laitier est freinée et les temps locaux de solidification du lingot sont réduits en conséquence.

La composition du laitier fluoré (nombre de moles équivalent d'alumine) joue également un rôle majeur sur l'efficacité du processus de fusion. Ce paramètre détermine la conductivité électrique du laitier - donc l'effet Joule généré – et va ainsi influer sur l'épaisseur de peau de laitier et la vitesse de solidification du lingot.

Dans ce qui suit, je présente quelques résultats obtenus avec le modèle totalement couplé, où l'épaisseur de la peau de laitier solidifiée est calculée explicitement. Les résultats obtenus avec et sans prise en compte du passage du courant dans le moule sont comparés avec ceux d'une refusion d'acier réalisée par Aubert & Duval aux Ancizes. Celle-ci se décomposait en trois parties : 150 minutes de refusion à un courant de 18 kA et une vitesse de fusion de 10 kg.min⁻¹, 150 minutes à un courant de 16 kA et une vitesse de fusion de 6 kg.min⁻¹, puis une augmentation brutale de la profondeur d'immersion de l'électrode, et enfin un palier de 100 minutes à un courant de 19 kA et une vitesse de fusion de 8,5 kg.min⁻¹.

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

La figure 12 présente une comparaison de l'effet Joule généré dans le laitier, sans (à gauche) et avec (à droite) passage du courant dans le moule, pour deux moments différents de la refusion (50% du temps total de refusion en haut et 90% en bas). Lorsque le courant circule à travers le laitier solidifié, le chauffage par effet Joule dans le laitier liquide est moins homogène, du fait de sa diminution le long de l'interface laitier / moule. En raison de la fuite progressive du courant le long de cette paroi, la zone affectée par ce phénomène augmente avec la profondeur. Par conséquent, la puissance totale générée au sein du laitier par effet Joule est plus faible lorsque le moule n'est pas isolé, ce qu'on observe sur la figure 13, où une comparaison avec la puissance mesurée expérimentalement est également présentée. Si le creuset est supposé entièrement isolé, le modèle surestime la puissance générée lors de la refusion. Sinon, le chauffage résistif semble sous-estimé pendant la première partie de la refusion et légèrement surestimé pendant la deuxième. Ceci tendrait à montrer que la valeur utilisée pour la conductivité électrique du laitier solidifié n'est pas connue avec suffisamment de précision (ni forcément constante au cours de l'opération, sachant qu'ici nous la considérons égale à 1 S.m⁻¹) : la fraction du courant « perdu » vers le moule est trop élevée pendant la première partie de la refusion et trop faible pendant la deuxième. Au cours de la troisième partie de la refusion, le système de régulation a été déconnecté. La profondeur d'immersion n'est plus connue, ce qui explique les variations de la puissance générée et l'imprécision des résultats de la simulation.



Figure 12 : Puissance volumique générée dans le laitier par effet Joule (W.m⁻³) sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière.



Figure 13 : Comparaison de la puissance générée sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière (simulations) et de la puissance mesurée expérimentalement.

La figure 14 présente les cartes de température calculées dans le laitier et le puits liquide du lingot sans (à gauche) et avec (à droite) passage du courant dans le moule, pour deux moments différents de la refusion (50% du temps total de refusion en haut et 90% en bas).



Figure 14 : Cartes de température dans le laitier et le puits liquide du lingot sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière. 50% (haut) et 90% (bas) du temps total de refusion, les iso-valeurs 0,01 0,5 et 0,99 de la fraction liquide sont également représentées.

Quand le courant peut traverser le moule, on observe une température du laitier plus basse en moyenne, du fait de la diminution de la puissance générée par le chauffage par effet Joule. Il en résulte une épaisseur de la couche de laitier solidifié qui augmente à l'interface laitier / lingot / moule. L'isolation électrique seulement partielle par le laitier solidifié a une influence majeure sur l'épaisseur calculée de la peau de laitier entourant le lingot: au fur et à mesure que le lingot monte, la quantité de laitier solide piégé et écrasé contre le moule est plus importante, conduisant à une peau de laitier plus épaisse et donc à un creusement du puits liquide, comme on peut le voir sur la figure 14, ce phénomène étant principalement une conséquence de la quantité de chaleur perdue à la paroi latérale. La résistance thermique due à la peau de laitier solide est proportionnelle à son épaisseur : le temps local de solidification calculé augmente donc lorsque le moule n'est pas supposé être complètement isolé, comme le montre la figure 15. Étant donné qu'il est généralement admis que l'occurrence de défauts de macroségrégation augmente avec ce temps de solidification, la qualité du lingot final prédite n'est donc pas aussi bonne avec ce modèle que dans la version antérieure supposant le moule électriquement isolé.



Figure 15 : Temps local de solidification dans le lingot secondaire ESR, sans et avec prise en compte du passage du courant dans la lingotière.

Malheureusement, même si ce modèle a montré son intérêt et sa capacité à représenter certains phénomènes qu'un modèle n'intégrant pas le passage du courant dans le moule ne peut pas simuler correctement, son utilisation dans la version transitoire entièrement couplée avec calcul explicite de l'épaisseur de la couche de laitier solidifié est toujours très réduite aujourd'hui. La faute à la nécessité d'utiliser des maillages très fins de la peau de laitier solidifié et de définir un niveau de convergence très faible pour l'équation électromagnétique. Ces deux paramètres ont pour effet de fortement grever le temps de calcul : une simulation en conditions industrielles, qui peut s'effectuer en quelques heures sur un PC de bureau sans prendre en compte le passage du courant dans le moule, voit son temps total passer à plusieurs semaines lorsque le passage du courant est pris en compte !

Il reste donc un travail important à mener sur l'accélération des simulations dans ces conditions, mais aussi sur la détermination expérimentale précise des valeurs de conductivité électrique à haute température des laitiers liquides et solidifiés, paramètre indispensable à l'obtention de simulations réalistes. Ceci pourrait permettre de remédier (au moins partiellement) à la surestimation de l'épaisseur de laitier solide. L'obtention d'épaisseurs calculées comparables à celles mesurées expérimentalement après démoulage du lingot est en effet indispensable pour déterminer de manière fiable la vitesse de solidification et utiliser le modèle de manière prédictive pour aider à l'amélioration de la qualité des produits.

Par ailleurs, un biais est introduit dans ce modèle par l'utilisation d'un profil de vitesse de fusion, fourni en donnée d'entrée et déduit du profil de fusion réel. Il ne tient donc pas compte de l'impact d'un paramètre testé sur l'énergie transmise à l'électrode par le laitier. L'utilisation d'une vitesse de fusion « recalculée » basée sur un bilan thermique au sein de l'électrode permettrait d'éliminer cette source d'incertitude dans les interprétations.

En adaptant le maillage, il serait alors possible de déterminer et de modéliser la forme de l'électrode immergée ainsi que les variations de sa profondeur d'immersion au sein du laitier, fournissant au modèle les données nécessaires pour « s'autoréguler ».

Lors de la thèse de Jérémy Chaulet (2018-2021), nous nous sommes attachés à la description du transfert de métal liquide au sommet du lingot refondu, en prenant en compte le comportement des gouttes de métal liquide lors de leur chute à travers le laitier, et à l'étude de leurs interactions avec ce dernier, sur le plan de la thermique, de la quantité de mouvement et de l'électromagnétisme. Représenter précisément le comportement des gouttes nécessite un modèle tridimensionnel, difficilement compatible avec un modèle de procédé. C'est pourquoi nous avons choisi, à partir de résultats obtenus en 3D par Abdellah Kharicha à l'Université de Leoben en Autriche, de développer un

modèle bidimensionnel axisymétrique et multiphasique du domaine laitier, en utilisant une approche eulérienne à deux fluides.

Il nous a fallu proposer une évolution originale du coefficient de traînée des gouttes, dont le diamètre peut varier typiquement entre 1 et 10 mm. Compte tenu de leurs propriétés thermophysiques, elles peuvent voir leur forme sphérique changer au cours de leur chute. Le type d'évolution que nous avons retenu est présenté sur la figure 16.



Figure 16 : Évolution du coefficient de traînée des gouttes en fonction du nombre de Reynolds

Le modèle a été développé sous le code commercial Ansys Fluent par ajout de fonctions utilisateur (UDF).

Nous avons pu montrer dans cette étude que les petites gouttes ont un effet important sur l'écoulement du laitier, non pas par un changement de champ électromagnétique, mais en raison de forts échanges de quantité de mouvement avec le laitier (figure 17). Elles se retrouvent donc rapidement à l'équilibre thermique avec ce dernier.

Au contraire, les gouttes de plus grand diamètre ont principalement un effet sur la thermique dans le laitier. Par ailleurs, elles ne sont pas en équilibre thermique avec ce dernier (figure 18).



Figure 17 : Norme de vitesse du laitier et vecteurs vitesse dans le laitier (normalisés et moyennés sur le temps) pour des gouttes d'un diamètre de a) 1 mm, b) 5 mm, c) 10 mm



Figure 18 : Différence de température entre les gouttes et le laitier (moyennée sur le temps) pour des gouttes d'un diamètre de a) 1 mm, b) 5 mm, c) 10 mm

Le comportement du film liquide à la surface de l'électrode en fusion doit également être décrit afin de déterminer la zone de formation des gouttes. La concentration spatiale de ces dernières lors de leur chute dans le laitier est en effet un paramètre de premier ordre.

L'influence de la modification de certains paramètres opératoires a pu être étudiée. Par exemple, une augmentation de l'intensité du courant électrique diminue la zone de génération des gouttes ; une augmentation de la vitesse de fusion crée un effet de saturation du film liquide, ce qui étend la surface sous laquelle les gouttes sont formées. Enfin, lorsque la profondeur d'immersion de l'électrode est augmentée, la zone de génération des gouttes est étendue, ce qui est en accord avec les résultats de simulations 3D.

Une version simplifiée de ce modèle a ensuite été intégrée dans le code SOLECS, afin de prendre en compte l'impact des gouttes sur le laitier mais également sur le puits liquide. Il permet de retrouver qualitativement les résultats issus des simulations Euler-Euler, et d'améliorer la description du transport de métal liquide au sommet du lingot. À titre d'exemple, la Figure 19 présente une comparaison entre la vitesse du laitier obtenue en utilisant la version « classique » de SOLECS (a) et en appliquant le modèle d'interactions gouttes-laitier (b).



Figure 19 : Comparaison de l'écoulement du laitier calculé par SOLECS pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en appliquant le modèle d'interactions gouttes-laitier

On remarque toutefois que la différence n'est pas aussi notable que ce qui est observé dans le modèle 2D diphasique « externe ». Une raison à cela pourrait être la forte intensité turbulente prédite par le modèle k- ε implémenté dans SOLECS, qui amoindrit l'effet des gouttes.

On note le même effet sur la température dans le laitier, Figure 20 : la boucle de recirculation créée par la traînée des gouttes et observable sur la Figure 19 permet une extension de la zone chaude sous l'électrode jusqu'au puits liquide. Deux différences sont toutefois notables par rapport aux résultats du modèle 2D diphasique « externe » présentés sur la Figure 18 : la température du laitier est un peu plus homogène – donc les zones les plus chaudes le sont moins dans l'absolu – et surtout, le laitier est plus froid à proximité de l'interface avec le puits liquide. La forte turbulence prédite par SOLECS en est encore une fois sans doute à l'origine.

La surchauffe moyenne des gouttes quittant le laitier est d'environ 110 °C, plus faible que celle calculée avec le modèle Euler-Euler.



Figure 20 : Comparaison de la température du laitier calculée par SOLECS pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en appliquant le modèle d'interactions gouttes-laitier (cas d'une électrode d'acier refondue à 10 kgmin⁻¹))

En parallèle, un modèle original a été proposé pour tenir compte de l'impact des gouttes sur le puits liquide, y compris en profondeur. En effet, nous supposons que les gouttes de métal liquide – puisqu'elles acquièrent une quantité de mouvement non négligeable pendant leur chute dans le laitier – peuvent réellement pénétrer dans le puits liquide avant de s'y disperser.

Dans le modèle SOLECS, l'apport de matière nécessaire à la croissance progressive du lingot est effectué à l'interface avec le laitier, celle-ci étant indéformable. Nous souhaitions conserver ces bases du modèle : la source de métal liquide produisant la croissance ne pouvait donc pas être déplacée ni rendue plus locale. Néanmoins, les termes sources de quantité de mouvement, d'enthalpie et de solutés liés à cet apport de matière au sommet du lingot ont dû être modifiés et complétés par de nouveaux termes sources dans certaines cellules du domaine de calcul afin de rendre compte de l'apport localisé du contenu des gouttes et de sa libération en profondeur. En d'autres termes, l'apport de la matière et du contenu des gouttes sont traités différemment.

La Figure 21 présente le modèle que nous avons mis en place : nous avons proposé un concept de « fraction volumique de gouttes » déterminée à partir du débit de métal liquide traversant l'interface laitier / puits liquide. Les gouttes peuvent interagir jusqu'à une certaine profondeur *profimp* (qui est une donnée puisqu'à notre connaissance, il n'existe pas de corrélation permettant de la déterminer dans notre cas). Pour représenter la déformation progressive des gouttes et leur ralentissement au fur et à mesure de leur descente dans le puits, plutôt que d'évaluer précisément la diminution de leur impact, nous avons choisi de diminuer la fraction volumique de gouttes, jusqu'à ce qu'elle devienne nulle à la profondeur *profimp*. Arbitrairement, cette diminution suit une loi en puissance 2. Ainsi, les gouttes gardent les mêmes propriétés jusqu'à une certaine profondeur, puis se mélangent instantanément au puits liquide.



Figure 21 : Représentation synthétique du modèle d'interactions gouttes/puits liquide

La notion de fraction volumique permet de calculer une force de traînée rendant compte de l'influence de la pénétration des gouttes sur l'écoulement du puits liquide, ainsi qu'un apport enthalpique et solutal (libéré lorsque les gouttes se « dissolvent » à la profondeur *profimp*). Afin de déterminer quelle quantité de gouttes disparait pour une cellule donnée à un rayon donné, on calcule la différence de fraction volumique de gouttes entre la cellule située sous l'interface au même rayon et la cellule considérée.

Nous illustrerons cela en comparant, Figure 22, les résultats obtenus sans et avec prise en compte du rôle des gouttes (pour la même fusion que celle représentée Figure 20).

La libération de l'enthalpie des gouttes en profondeur entraîne une augmentation notable de la température du puits liquide dans la zone impactée. La surchauffe moyenne des gouttes entrant dans le puits liquide atteint 110 °C lorsque le modèle d'interactions gouttes-laitier est utilisé, mais seulement 70 °C dans le cas sans prise en compte de l'influence des gouttes (calcul effectué en supposant l'équilibre thermique entre le métal au sommet du lingot et le laitier adjacent). Cette différence de surchauffe est à l'origine de l'augmentation de la profondeur du puits liquide lorsque le modèle d'interactions est utilisé.



Figure 22 : Température dans le laitier et le puits liquide et profil du puits liquide pour a) le cas sans prise en compte des gouttes et b) en utilisant les modèles d'interactions gouttes-laitier et gouttes-puits

Un autre axe de l'étude concernait la formulation d'un modèle thermique simple, monodimensionnel, de l'électrode ESR. Ce dernier est obtenu en résolvant l'équation de Fourier modifiée par une méthode d'ablation de type Landau afin de s'affranchir de l'emploi d'un maillage évolutif au fur et à mesure que l'électrode est consommée. Ce modèle est désormais associé au code SOLECS et permet soit de déterminer une vitesse de fusion de l'électrode comme résultat (un profil de vitesse de fusion de cette dernière est une donnée d'entrée du logiciel SOLECS dans son utilisation standard), soit de s'affranchir de l'entrée d'un profil de vitesse de fusion et d'utiliser celle donnée par le modèle d'électrode (couplage).

Ci-après sont insérés les articles suivants :

M. Hugo, A. Jardy, B. Dussoubs, J. Escaffre, H. Poisson : Influence of the Mold Current on the Electroslag Remelting Process, *Metallurgical and Materials Transactions B: Process Metallurgy and Materials Processing Science*, 47 (4), 2607-2622 (2016). *16 pages.*

J. Chaulet, A. Kharicha, S. Charmond, B. Dussoubs, S. Hans, M. Wu, A. Ludwig, A. Jardy : A 2D Multiphase Model of Drop Behavior during Electroslag Remelting, *Metals*, 10, 490 ; https://doi.org/10.3390/met10040490. *16 pages*.

Influence of the Mold Current on the Electroslag Remelting Process



MATHILDE HUGO, BERNARD DUSSOUBS, ALAIN JARDY, JESSICA ESCAFFRE, and HENRI POISSON

The electroslag remelting process is widely used to produce high value-added alloys. The use of numerical simulation has proven to be a valuable way to improve its understanding. In collaboration with Aubert & Duval, the Institute Jean Lamour has developed a numerical transient model of the process. The consumable electrode is remelted within a mold assumed to be electrically insulated by the solidified slag skin. However, this assumption has been challenged by some recent studies: the solidified slag skin may actually allow a part of the melting current to reach the mold. In this paper, the evolution of our model, in order to take into account this possibility, is presented and discussed. Numerical results are compared with experimental data, while several sensitivity studies show the influence of some slag properties and operating parameters on the quality of the ingot. Even, a weakly conductive solidified slag skin at the inner surface of the mold may be responsible for a non-negligible amount of current circulating between the slag and crucible, which in turn modifies the fluid flow and heat transfer in the slag and ingot liquid pool. The fraction of current concerned depends mainly on the electrical conductivities of both the liquid and solidified slag.

DOI: 10.1007/s11663-016-0694-x © The Minerals, Metals & Materials Society and ASM International 2016

I. INTRODUCTION

CRITICAL applications such as aeronautics, energy, and tooling require high-quality and defect-free metal, which cannot be fully achieved after primary melting. One way to achieve this quality is the use of remelting processes such as electroslag remelting (ESR) which allows a good control of the alloy chemistry and solidification structure of the ingot.^[1] The materials concerned encompass high value-added metallic alloys such as special steels or nickel-based superalloys.

Remelting is caused by means of an electric current, usually an alternative one, which flows from the primary ingot—acting as a consumable electrode—whose lower part, as shown in Figure 1(a), is immersed in a highly resistive calcium fluoride-based slag, to a water-cooled crucible, thus generating Joule heating in the slag. The electrode melts by contact, forming metal droplets which fall down through the slag to the liquid pool of the secondary ingot. Because of the water cooling, the latter solidifies continuously while growing, and its contraction leads to the building of an air gap between the solidified ingot and crucible.

It must be noticed that the slag is also in contact with the water-cooled mold, which results in the formation of a layer of solidified slag at the slag/mold interface, as shown in Figure 1(b). As the secondary ingot rises, this layer is partially remelted and/or crushed between the metal and crucible, resulting in a slag skin which acts as a thermal insulator and provides ESR ingots with a smooth lateral surface. After the end of melting, complete solidification, and removal of the mold, this slag skin may remain in the form of a few-millimeter-thick slag crust around the ingot. The thickness of this crust, at different heights, can be measured to compare model predictions with the actual observation.

Besides, chemical reactions occur at the electrode/ slag, droplets/slag, and pool/slag interfaces, thus influencing the final ingot chemistry. Non-metallic inclusions are dissolved in the liquid slag.^[1]

The strategic importance of the remelted products makes it essential to acquire a detailed understanding of the process. Actual remelting experiments are very costly; so their repeated use cannot be considered as a suitable solution to get a better insight into the process and help for its optimization. Apart from being easy to use, mathematical modeling is a valuable tool to enhance fundamental understanding, since it allows linkage of operating parameters, such as the fill ratio, electrode immersion depth, slag composition and properties, ingot diameter, or cooling conditions, to local solidification conditions, hence the ingot final quality.

MATHILDE HUGO, formerly Graduate Student with the Institut Jean Lamour - UMR 7198 CNRS/Université de Lorraine (Laboratory of Excellence DAMAS), Parc de Saurupt, CS 50840, 54011, Nancy Cedex, France, is now Engineer with Sopra Banking Software, Tour Manhattan, 5 place de l'Iris, 92095, La Défense Cedex, France. BERNARD DUSSOUBS, Research Engineer, and ALAIN JARDY, Senior Research Fellow, are with the Institut Jean Lamour - UMR 7198 CNRS/Université de Lorraine, France (Laboratory of Excellence DAMAS). Contact e-mail: alain.jardy@univ-lorraine.fr JESSICA ESCAFFRE and HENRI POISSON, Research Engineers, are with Aubert & Duval, BP1, 63770, Les Ancizes, France.

Manuscript submitted January 20, 2015.

Article published online June 1, 2016.



Fig. 1—(a) Schematic representation of an Electroslag Remelting furnace.^[2] (b) Growth of the solidified slag skin.^[1]

Therefore, several models of the ESR process have been developed during the last 40 years. The first ones were purely analytical and mainly focused on heat transfer and Joule heating in the slag bath,^[3] but the complexity of the ESR process rapidly led to the use of computer simulation and the development of numerical models.

In 1977, Dilawari and Szekely introduced a model coupling electromagnetic phenomena, fluid motion, and heat transfer in steady-state conditions, for an ESR operation using a DC current,^[4] which was later adapted to AC current^[5] and improved.^[6]

The liquid pool profile, originally used as input data, was a result of the simulation in Choudhary's work in 1980, allowing the observation of the consequences of the operating parameters on the shape and depth of the melted bath.^[7,8]

In 1984, with Jardy's two-part model,^[9,10] the transient ingot solidification was determined, based on the slag temperature field and fluid motion computed in steady-state conditions.

More recently, several studies have been presented, aiming to simulate the whole process in a transient way, in particular by Kharicha *et al.*,^[11,12] Kelkar *et al.*,^[13] and Rückert and Pfeifer^[2,14]

Over the years, the influence of operating parameters and thermophysical properties of the materials on the heat transfer, fluid flow, and final quality of the ingot has been addressed^[15,16] and numerical studies have challenged some of the assumptions used in the majority of models, such as the flatness of the immersed extremity of the electrode.^[17,18]

Among those models, a simulation software of the ESR process named SOLECS (which stands for SOLar-type ESR Complete Simulation) was developed at Institut Jean Lamour (IJL) in Nancy, in close collaboration with Aubert & Duval.^[19] This 2D axisymmetric transient model, similar in nature to the SOLAR code used for the simulation of Vacuum Arc Remelting,^[20,21] uses a finite volume method and a fully implicit time scheme to account for electromagnetic, fluid flow, heat transfer, and phase change in a coupled way.^[22] In the paper by Weber *et al.*,^[19] it was stated that "we

assume that the solidified slag skin insulates electrically the slag and ingot from the mold. This assumption is particularly questionable and needs to be confirmed. Indeed, in some cases, the model predicts a discontinuous solid skin surrounding the slag cap, implying a possible electrical contact between liquid slag and mold." While this strong assumption is made classically in the literature devoted to ESR simulation,^[23-25] it was sometimes claimed that a certain amount of current is able to flow in the copper crucible.^[26,27] This phenomenon could modify the thermohydrodynamic behavior of the slag and liquid pool, hence influencing the solidification process. Therefore, the goal of our study is to quantify this phenomenon and determine the impact of the mold current on the phenomena which take place during electroslag remelting, including ingot solidification.

In this paper, the whole simulation model of the ESR process, as well as the modifications of the electromagnetic part which were necessary to take into account the possibility of mold current, are described. A study aiming to determine the impact of the electrical con-

1. Fluid flow and turbulence

The mean fluid flow is solved using Reynolds averaged Navier-stokes (RANS) and continuity equations that can be written as

$$\rho \frac{\partial u_r}{\partial t} + \rho u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + \rho v_z \frac{\partial u_r}{\partial z} = -\frac{\partial P}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial r} \left((\mu + \mu_t) \frac{1}{r} \frac{\partial (ru_r)}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left((\mu + \mu_t) \frac{\partial u_r}{\partial z} \right) - \frac{\mu}{K} u_r + \hat{F}_r$$

$$\rho \frac{\partial v_z}{\partial t} + \rho u_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + \rho v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} = -\frac{\partial P}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left((\mu + \mu_t) r \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left((\mu + \mu_t) \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) + \rho g_z - \frac{\mu}{K} v_z + \hat{F}_z, \qquad [1]$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0$$

ductivity and thickness of the solidified slag skin on the electromagnetic phenomena presented, for a simplified geometry, is then detailed. Finally, results of numerical simulations accounting for mold current or assuming perfect insulation during an actual full-scale remelting are compared, and the effect of this phenomenon on the remelted ingot is discussed.

II. THE MATHEMATICAL MODELS

A. Principle of the Overall Thermohydrodynamic Model

In the present study, the furnace geometry is supposed to be 2D axisymmetric. The electrode–slag and slag– metal interfaces are assumed to be flat: the influence of metal droplets on the fluid flow is not considered, as it is in some models,^[2,11,14] in which a volume-of-fluid (VOF) method is generally used to compute the geometry of the where P is the pressure and with

$$\hat{F}_r = -\frac{\mu_0}{2} \operatorname{Re}(\hat{J}_z \hat{H}) = -\frac{\mu_0}{2} \left(\operatorname{Re}(\hat{J}_z) \operatorname{Re}(\hat{H}) + \operatorname{Im}(\hat{J}_z) \operatorname{Im}(\hat{H}) \right)$$
[2]

$$\hat{F}_z = \frac{\mu_0}{2} \operatorname{Re}(\hat{J}_r \hat{H}) = \frac{\mu_0}{2} \left(\operatorname{Re}(\hat{J}_r) \operatorname{Re}(\hat{H}) + \operatorname{Im}(\hat{J}_r) \operatorname{Im}(\hat{H}) \right).$$
[3]

In their papers, Jardy *et al.*,^[10] and Kelkar *et al.*^[28,29] have highlighted the possibility for the fluid motion to be turbulent in the slag bath and liquid metal pool. This is taken into consideration in the model by computing the turbulent viscosity using a $k-\varepsilon$ model.^[19,22]

$$\begin{cases} \rho \frac{\partial k}{\partial t} + \rho \left(u_r \frac{\partial k}{\partial r} + v_z \frac{\partial k}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) r \frac{\partial k}{\partial r} \right\} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial z} \right\} \\ + P_k + G_k - \rho \varepsilon - \frac{2\mu}{K} k \\ \rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + \rho \left(u_r \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} + v_z \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) r \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \right\} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right\} \\ + \left(c_1 (P_k + c_{\varepsilon 3} G_k) - c_2 \rho \varepsilon - c_3 \frac{2\mu}{K} k \right) \frac{\varepsilon}{k} \end{cases}$$

$$[4]$$

interfaces. The immersion depth of the electrode, which is a model input parameter, remains constant during the whole simulation. The transient-state numerical model accounts for electromagnetic phenomena and coupled heat and momentum transfers, in order to simulate the continuous growth of the electroslag remelted ingot and the solidification of both metal and slag. To achieve that goal, Maxwell equations as well as Navier–Stokes, turbulence, heat transfer, and solidification equations are solved. with

$$\mu_t = \rho c_\mu \frac{k^2}{\varepsilon},\tag{5}$$

where $c_1 = 1.44$, $c_2 = 1.92$, $c_3 = 1$, $\sigma_k = 1$, $\sigma_{\varepsilon} = 1.3$ are constant,^[19] μ_t is the turbulent dynamic viscosity, and P_k and G_k are the creation terms, respectively, depending on fluid motion and temperature.^[19-22]

In order to account for the influence of solidification on the hydrodynamic behavior of the liquid, the model classically assumes that the mushy zone of the remelted ingot can be assimilated to a porous medium whose permeability is estimated by the Kozeny-Carman relation:

$$K = K_0 \frac{g_l^3}{(1 - g_l^2)},$$
 [6]

where K_0 depends on the size of the solidification structure, *i.e.*, the dendrite arm spacing.

The solidification of slag is, in a first approximation, treated in a similar way

From that representation, source terms $-\frac{\mu}{K}u_r$ and $-\frac{\mu}{K}v_z$ in Eq. [1] as well as $-\frac{2\mu}{K}k$ in Eq. [4] allow for the decay of mean motion and turbulence during solidification to be fully accounted for, as stated by Prescott and Incropera^[30] and Antohe and Lage.^[31] This feature is strictly identical to the one previously used by the present authors.^[19]

2. Heat transfer and solidification

The temperature distribution is governed by the energy conservation equation:

$$\rho \frac{\partial H}{\partial t} + \rho C_p \left[u_r \frac{\partial T}{\partial r} + v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right]$$

= $\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left((\lambda + \lambda_t) r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left((\lambda + \lambda_t) \frac{\partial T}{\partial z} \right) + Q,$ [7]

where Q is the volumetric power dissipated by Joule effect.

The turbulent conductivity λ_t is calculated explicitly from the turbulent viscosity μ_t , assuming that the turbulent Prandtl number keeps a constant value $Pr_T = \frac{C_p \mu_i}{\lambda_i} = 1.$ An explicit enthalpy formulation is used to take into

account the solidification of the metal and slag:

$$H = C_p T + q_l g_l.$$

$$[8]$$

At each time step, Eq. [7] is solved by assuming a given liquid fraction. A new temperature–liquid fraction couple of values are then deduced, depending on both the solidification path and enthalpy-temperature relation. This approach is repeated until convergence is reached. The use of such a method requires a precise knowledge of the solidification path gl = f(T) for a given alloy.

Solving the heat transfer equation in the slag bath enables prediction of slag solidification and the subsequent formation of a solidified slag layer, whose thickness is calculated at each location at the slag/mold interface.

3. Boundary conditions

a. Fluid flow and turbulence. A no-slip condition is applied at all liquid/solid interfaces and a zero shear stress condition is imposed at the slag-free surface.

The slag-liquid pool interface is assumed to remain flat: the radial velocity is continuous, while the axial velocity is assumed to be equal to zero.

Wall functions are employed to compute the turbulent kinetic energy, dissipation rate, and heat flux on liquid/solid interfaces and, at the free surface, a zero normal gradient is imposed for both k and ε , meaning

that surface tension effects are neglected. Finally, at the slag-pool interface, k and ε are continuous variables.

b. Heat transfer. The present model does not include the calculation of heat transfer inside the electrode. To take into account the melting process in a very simplified way, the temperature of the electrode tip in contact with the molten slag is assumed constant and equal to the liquidus temperature of the alloy. Moreover, the model assumes that the immersion depth of the electrode remains constant during the whole melting process.

At the slag-free surface, heat loss due to thermal radiation is considered.

At the baseplate and on the lateral ingot/mold and slag/mold interfaces, a heat transfer coefficient is determined using an electrical analogy. The air gap and solidified slag skin are treated as additional thermal resistances.

The temperature distribution in the copper mold is calculated with a finite volume approach which simulates radial and axial conduction in a transient way, while the computation of heat transfer between the mold and cooling water accounts for the water flow and, if necessary, the nucleated boiling mechanism.

Illustrations of typical results obtained with this transient model are presented in the final section of this article.

B. Details: Electromagnetism

In the ESR process, the consumable electrode is melted because of the resistive heating generated by an electric current flowing through the slag. In most cases, AC is used at a frequency of 50 Hz. In that case, the magnetic and electric fields in the system are dependent on each other, and hence the phenomena are governed by the four Maxwell's equations:

Gauss's law for electricity :
$$\operatorname{div}\vec{D} = 0$$
 [9]

Gauss's law for magnetism :
$$\operatorname{div}\vec{B} = 0$$
 [10]

Faraday's law of induction :
$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\frac{\partial \left(\mu \vec{H}\right)}{\partial t}$$
[11]

Ampere's circuital law :
$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \sigma \vec{E} + \frac{\partial (\varepsilon \vec{E})}{\partial t}.$$
[12]

The system formed by these equations can be reduced to a single one under some assumptions^[4]:

- magnetization is negligible;
- the magnetic Reynolds number remains very low, which means that the fluid flow does not affect the electromagnetic field. In such conditions, Ohm's law $\vec{J} = \sigma \left(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B} \right)$ can be simplified to $\vec{J} = \sigma \vec{E}$;

• current displacement is much lower than the electric conduction, which is valid if the electrical conductivity is not too small.

Moreover, we use the phasor notation in order to account for the periodic time dependence. In a 2D axisymmetric geometry, as no external field is applied, the magnetic field has only one component in the azimuthal direction, which varies with time as

$$H = H_{\max}\cos(\omega t + \varphi) = H_{\max}\cos(2\pi f t + \varphi), \quad [13]$$

where H_{max} is the maximum value of the magnetic field, f is the frequency of the alternating current, and φ is the local phase angle. Both H_{max} and φ are dependent on the position. The phasor of the magnetic field is defined by

$$H = \hat{H}e^{j\omega t}$$
 with $j^2 = -1$ and $\hat{H} = H_{\text{max}}e^{j\varphi}$. [14]

Therefore, the system of Maxwell's equations reduces to a single one, with the stream function $r\hat{H}$ as the main variable and incorporating the electrical conductivity as a transfer coefficient. All interfacial conditions at the boundaries between adjacent media are automatically accounted for. The resulting equation for the phasor of the azimuthal component of the magnetic stream function is

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{1}{r\sigma}\frac{\partial(r\hat{H})}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{r\sigma}\frac{\partial(r\hat{H})}{\partial z}\right)$$

$$-\frac{1}{r^{2}\sigma}\frac{\partial(r\hat{H})}{\partial r} - j\omega\mu_{0}\hat{H} = 0.$$
[15]

This formulation is strictly identical to the one used, for instance, by Kharicha *et al.*^[23] It is solved within the whole calculation domain, *i.e.*, the electrode, slag, ingot (liquid and solid), and mold.

The real and imaginary parts of Eq. [15] are coupled through their source term.

1. Boundary conditions

The calculation domain for electromagnetic phenomena includes the electrode, slag, ingot, and crucible.

On top of the electrode and at the bottom of the ingot and mold, the model assumes that there is no radial current. Consequently, the boundary condition is expressed by

$$\hat{J}_r = 0 \Leftrightarrow \frac{\partial(\hat{H})}{\partial z} = 0.$$
 [16]

At the lateral edge of the non-immersed electrode, the inner wall of the mold in contact with air, and the external wall of the crucible, the generalized Ampere theorem is applied:

$$\hat{H} = \frac{I}{\sqrt{2}\pi R},\qquad[17]$$

where R is the radius of the wall.

This equation is also applied to determine the value of the magnetic field at the surface of the slag bath. In this particular case, R is the radial distance from the axis of symmetry.

C. Computational Technique

The overall model is based on the solution of all partial differential equations (PDEs), along with their required boundary conditions. PDEs are discretized using a finite volume method with a fully implicit time scheme.^[32] Pressure–velocity coupling is treated with the semi-implicit method for pressure-linked equations—consistent (SIMPLEC) algorithm, as proposed by Van Doormaal and Raithby.^[33]

Fluid flow and heat transfer equations are solved for each time step in a coupled way. On the contrary, the calculation of the electromagnetic phenomena occurs in case of a change in the electric current or an evolution of the mesh, due to the growth of the ingot and the melting of the electrode.

The ESR model is written in FORTRAN 77. Its computational time, for a full remelting simulation, depends on the operating parameters and is typically 48 to 72 hours on a PC, when mold current is not considered. When this phenomenon is taken into consideration, the computational time can be dramatically increased.

D. Main Grid and EM Grid

The growth of the ingot and melting of the electrode are simulated through a mesh-splitting method. In the original SOLECS model, the mold was assumed to be perfectly insulated from the melting current. An identical mesh was used whatever the equation to be solved.

If the current is allowed to flow from the slag to the crucible, the necessity to mesh the solidified slag skin, in order to simulate its effects on the current distribution, implies the use of an extremely refined mesh at the slag/mold interface.

Consequently, to reduce the overall simulation time, we chose to develop a specific grid for the electromagnetic phenomena. This grid—referred below as the EM grid—is built around a minimum number of control volumes imposed within the solidified slag skin, and covers the electrode, slag, growing ingot, and crucible.

Whenever the electromagnetic phenomena are calculated, the EM grid is generated and interpolation subroutines determine the values of liquid fraction and temperature for every node. After the electromagnetic phenomena are solved, values of Joule heating and Lorentz forces are interpolated back into the main grid and used to solve the thermohydrodynamic equations.

E. Working Method

To be able to simulate the mold current and its influence on the ESR process, a step-by-step method has been used. At first, we developed an independent model of the electromagnetic phenomena occurring during an electroslag remelting, for the simplified geometry presented in Figure 2. With this model, we aimed to validate the possibility of mold current and its intensity,



Fig. 2-Simplified geometry for the independent electromagnetic model.

according to the value of the electrical resistance of the solidified slag layer. Results are presented in the next section of this article.

It has to be noted that this model considers a uniform solidified slag skin thickness along the inner wall of the crucible. However, during an actual electroslag remelting, the value of this thickness varies with time and location, depending on the fluid flow and slag solidification. To take into account these phenomena as well as the consequence of mold current on the whole ESR process, the second step was to implement the detailed electromagnetic approach in the transient model. The thickness of the solidified slag skin is then determined according to the temperature distribution within the slag cap, and the transient geometry of the system corresponds to the one of an actual experimental remelting. Results obtained are presented in Section IV of this article.

III. RESULTS OF THE INDEPENDENT ELECTROMAGNETIC MODEL

A. Input Data and Main Results

To reach the water-cooled crucible and baseplate, the melting current supplied to the electrode and liquid slag can either flow in the ingot pool or directly through the solidified slag skin. The resulting current distribution depends on the electrical resistance of that medium, hence the solid slag conductivity and skin thickness. In this section, we only address the computation of electromagnetic phenomena for the simplified geometry depicted in Figure 2. The thickness of the solidified slag skin is assumed to be uniform. The main input data are gathered in Table I. The electrical conductivity of the metal is assumed to be identical in the electrode and ingot, regardless of the actual liquid or solid state. The

Table I. Parameters Used in the Simulations

Melting current (maximum value)	10 kA
AC frequency	50 Hz
Electrode radius	26 cm
Mold external radius	30 cm
Mold thickness	2.5 cm
Height of the slag cap	15 cm
Electrode immersion depth	1 cm
Thickness of the solidified slag skin	1/2/4/6 mm
Electrical conductivity of the metal	10^{6} S m^{-1}
Electrical conductivity of the liquid slag	400 S m^{-1}
Electrical conductivity of the solid slag	10^{-3} to 400 S m ⁻¹

effects of the variations of two parameters (electrical conductivity and thickness of the solid slag layer) on the current distribution and resulting Joule heating were studied. The electrical conductivity was allowed to vary in the range from 10^{-3} to 400 S m⁻¹, where 10^{-3} S m⁻¹ corresponds to a full insulation, while 400 S m⁻¹ is the (assumed) conductivity of the liquid slag. The thickness of the solidified slag skin was set to 1, 2, 4, or 6 mm.

In the literature, the computed current distribution is most often represented by visualizing the magnitude of the current density phasor (*i.e.*, the maximum value for each component of the current density), which classically leads to the observation of an important skin effect in the electrode and ingot.^[4,19,24] Indeed, it is well known that the current distribution is related to the value of the skin depth within the different materials: if the latter is larger than the actual dimension of the domain, the current distribution is homogeneous, *e.g.*, in the liquid slag.

However, within this study, we chose to represent the instantaneous current distribution at a given moment in the alternating period t = 0. In addition to the visualization of the skin effect, such a representation also highlights the local variation in the phase angle caused by the variation in the induced magnetic field in the metallic conductors, as shown by Li *et al.*^[25]

The first step of the study consists in confirming that part of the current is likely to flow through the solidified slag layer and directly enter the mold. Figure 3 presents the computed results obtained either when the solid layer behaves as a perfect insulator (such behavior is reached as soon as the electrical conductivity is less than or equal to 10^{-3} S m⁻¹) or when the electrical conductivity is set to 15 S m⁻¹, a value that lies in the range from 0.1 to 50 S m⁻¹, recently proposed by Kharicha *et al.*^[26] The solidified slag skin is supposed to be 4 mm thick.

Clearly, when the electrical conductivity of the solid slag is set to 15 S m⁻¹, part of the current flows through the skin to reach the mold. The solidified slag layer does not act as a perfect electrical insulator and this modifies the current distribution in the system.

This conclusion is biased by the assumption made on the value of the electrical conductivity of the solid slag. However, as will be shown further in Figure 8, this statement remains valid as soon as the conductivity of the solid slag is assumed to be greater than 0.1 S m^{-1} .



Fig. 3—Current density distribution (A m⁻²) computed for two values of the electrical conductivity of the solidified slag skin (thickness 4 mm): 10^{-3} S m⁻¹ (*a*) and 15 S m⁻¹ (*b*).

It must be stated that in this study, we voluntarily used a wrong value for the electrical conductivity of the copper mold $(10^6 \text{ S m}^{-1} \text{ instead of } 6.10^7 \text{ S m}^{-1})$. Indeed, the model predicts that, in the latter case, important eddy currents take place within the crucible during the remelting, and their visualization prevents us from observing the melting current which flows from the slag.^[34] To avoid this phenomenon, we attribute to copper a lower electrical conductivity, for which the skin depth is larger than the mold width, which results in negligible eddy currents. All the results obtained remain unchanged in the electrode, slag, and ingot, while the melting current flowing in the mold may be observed.^[35]

B. Influence of the Electrical Conductivity of the Solid Slag

This parametric study aims to compute the impact of a variation in the conductivity—in the range from 10^{-3} to 400 S m⁻¹—on the current distribution, *i.e.*, to observe the behavior of the melting current when the slag/mold electrical contact varies from a total insulation to perfect contact. Figures 4 and 5 present, respectively, the current density distribution and the resistive heating computed if the conductivity of the 4-mm-thick slag skin is set to 10^{-3} (a), 1 (b), 15 (c), or 400 S m⁻¹ (d).

If the solid slag layer acts as a perfect insulator, the current distribution is homogeneous within the liquid slag (Figure 4(a)), leading to a homogeneous Joule heating (Figure 5(a)). Moreover, the amount of current inside the insulating layer and the resulting Joule effect are negligible.

As the resistivity of the solidified slag decreases, more current flows through the solid skin: the remaining current in the liquid slag generates a lower Joule heating. On the contrary, an important Joule heating can be noticed in the solid phase, which could lead to a partial remelting of the skin. It can be noted that in the absence of any partially insulating skin, the majority of the current would be attracted toward the mold (Figure 4(d)). As a result, resistive heating in the slag (Figure 5(d)) would very probably be sufficient for neither the slag to remain in the liquid state nor the electrode to be melted.

C. Influence of the Thickness of the Slag Skin

As stated above, the thickness of the solidified slag layer is here assumed to be uniform along the height of the crucible. In the next chapter, coupling the electromagnetic model to the transient thermohydrodynamic calculations will allow us accounting for the calculated variation of that thickness with the axial position.

Based on industrial observations, we tested several values for this parameter: 1, 2, 4, and 6 mm. It must be noted that a slag skin thickness of 6 mm lies in the upper part of the range of measured values.

Figures 6 and 7 present a comparison of the computed current distribution and resistive heating for all cases. The electrical conductivity of the solid slag was set to 15 S m⁻¹.

As it can be deduced from the observation of Figures 6 and 7, the model predicts that even a thick



Fig. 4—Current density distribution (A m⁻²) computed with different values for the electrical conductivity of the solidified slag (thickness 4 mm): 10^{-3} (*a*), 1 (*b*), 15 (*c*), and 400 (*d*) S m⁻¹.



Fig. 5—Computed Joule heating (W m⁻³) for different values of the electrical conductivity of the solidified slag (thickness 4 mm): 10^{-3} (*a*), 1 (*b*), 15 (*c*), and 400 (*d*) S m⁻¹.



Fig. 6—Computed current density distributions (A m⁻²) for different values of the skin thickness (mm): 1 (a), 2 (b), 4 (c), and 6 (d)— $\sigma = 15$ S m.

slag skin (6 mm) cannot insulate completely the crucible as it was assumed until recently. Obviously, increasing the skin thickness has the same consequences as decreasing the electrical conductivity, since in both cases the electrical resistance of the solid layer is increased:

- the amount of current "lost" in the mold is lower;
- the total Joule heating in the liquid slag resulting from the current distribution is higher;
- on the contrary, the current within the skin, hence the Joule effect in the solid phase, is reduced.



Fig. 7—Joule heating (W m⁻³) for different values of the skin thickness – $\sigma = 15$ S m⁻¹.



Fig. 8—Evolution of the total resistive heating in the slag, according to the electrical conductivity and the thickness of the solidified slag skin.

D. Conclusion

Figure 8 summarizes the main effects discussed in the previous sections: it represents the evolution of the total Joule heating generated according to both parameters. Indeed, in order to represent the influence of the equivalent electrical conductance of the solidified slag skin on the total Joule heating, it must be recalled that while the order of magnitude of the skin thickness is well known (a few mm), there is a much larger uncertainty concerning its conductivity. Therefore, the influence of the two parameters is better evidenced if they are studied independently.

The electrical conductivity of the solid slag appears to be a crucial parameter of the process. When its assumed value is lower than 0.1 S m^{-1} , the mold could be

considered as being fully insulated from the melting current. However, for higher values, the fraction of current flowing through the solidified slag skin and reaching the mold increased dramatically. This observation emphasizes the necessity to have access to actual measurements.

The thickness of the solidified slag layer also influences the current distribution in the system. However, in the range of values tested, the impact of this factor remains of secondary importance although not negligible.

The current distribution during an electroslag remelting operation is a major issue to achieve the efficiency and the final quality of ingot required. The 2-D axisymmetric steady-state model predicts that a part of the melting current may flow directly from the slag within the mold. This amount depends on the electrical resistance of the solidified slag skin, hence its electrical conductivity and thickness.

Our results confirm some previous claims in the literature^[27,36] and raise new questions regarding the consequences of such a loss of current on the process efficiency.

As discussed above, in this section, the model considered a uniform layer thickness along the slag/crucible interface. However, this parameter is prone to vary from a negligible value to few millimeters during a real remelting. To take into account this variation, as well as to assess the influence of the electrical current distribution on the ingot solidification, the next step of our study consists in a full coupling of the model with a numerical simulation of the whole ESR process. Results presented in the following section are compared to those obtained without mold current and with experimental data.



Fig. 9-Current and melt rate profiles of the full-scale remelting.

 Table II.
 Main "Electromagnetic" Parameters of the Simulation

AC frequency	50 Hz
Electrode diameter	432 mm
Fill ratio	0.664
Electrode immersion depth	1 cm
Electrical conductivity of the metal	$10^{6} \mathrm{S} \mathrm{m}^{-1}$
Electrical conductivity of the liquid slag	$400 \text{ S} \text{ m}^{-1}$
Electrical conductivity of the solid slag	$1 \mathrm{~S~m^{-1}}$

IV. RESULTS OF THE OVERALL COUPLED MODEL

In this section, we do not assume anymore the thickness of the solidified slag skin to be an input of the model. On the contrary, it is calculated explicitly, since all phenomena (*i.e.*, electromagnetic, thermal, and hydrodynamics) are coupled. The computation of the slag temperature field enables the determination of its solidified part. In the following, we compare the results obtained with and without consideration of the mold current, for a steel remelting specifically designed and achieved at Aubert&Duval's plant in Les Ancizes.

This process can be decomposed into three parts: 150 minutes with a 18 kA AC current and a melt rate of 10 kg minute⁻¹, 150 minutes with a 16 kA current and a melt rate of 6 kg minute⁻¹, and after a brutal increase of the immersion depth and the disconnection of the regulation system, 100 minutes at 19 kA and 8.5 kg minute⁻¹, as shown in Figure 9.

The main parameters of the simulation are presented in Tables II and III. As in the previous section, the electrical conductivities of the liquid and solid metal are assumed to be equal.

The full remelting has been simulated using the transient model, able to predict at any time the temperature, fluid flow, turbulence, current distribution,

Table III. Other Thermophysical Properties

Property (Units)	Metal	Slag
Viscosity (kg $m^{-1} s^{-1}$)	4.2×10^{-3}	2×10^{-2}
Density (kg m^{-3})	6982	2611
Specific heat $(J \text{ kg}^{-1} \text{ K}^{-1})$	804	1260
Thermal conductivity $(W m^{-1} K^{-1})$	30	34
Emissivity of the liquid	1×10^{-2}	8.7×10^{-1}
Volumetric thermal expansion coefficient of the liquid (K^{-1})	1.1×10^{-4}	1.9×10^{-4}
Latent heat of solidification	1.87×10^{5}	4.25×10^{5}
$(J kg^{-1})$		
Liquidus temperature	1638.15 (1365)	1748.15 (1475)
Solidus temperature [K (°C)]	1399.15 (1126)	1633.15 (1360)

and solidification conditions. In the following, results are represented either as values evolving with time or with snapshots at specific moments of the remelting.

A. Electromagnetic Phenomena

Figure 10 presents a comparison of the Joule effect generated within the slag, with and without mold current, at two different times of the remelting (50 and 90 pct of the total remelting time).

When current is allowed to flow through the solidified slag skin, the Joule heating within the liquid slag is less homogeneous, as it is reduced along the slag/mold interface. Due to the progressive "loss" of current along this wall, the area affected by this phenomenon increases with the depth.

Consequently, the total power generated within the system by Joule effect is lower when the mold is not fully insulated, as seen in Figure 11.



Fig. 10—Volumetric power generated by Joule effect within the slag bath (W m^{-3}) with and without mold current.



Fig. 11—Comparison of the power generated with and without mold current with the experimental data.

The partial electrical insulation of the mold has a non-negligible impact on the power generated in the system. If the crucible is assumed to be fully insulated, the model overestimates the power generated during the remelting.

If not, the resistive heating is underestimated during the first period and slightly overestimated during the second one. This tends to show that the value used for the electrical conductivity of the solidified slag is not accurately known: the computed fraction of current "lost" to the mold is too high during the first part of the remelting and too low during the second one. Experimental measurements of this property are therefore required.

During the third period of the remelting, the regulation system was disconnected. The immersion depth is not known anymore, which explains the variations in the power generated and the inaccuracy of the simulation results.

B. Fluid Motion

Within the slag bath, fluid motion results from the combined action of buoyancy and Lorentz forces. The

existence of a current circulating from the slag to the mold modifies the current distribution, hence the computed Lorentz forces and resulting fluid motion. Figures 12 and 13, respectively, present the map of stream function and velocity field when mold current is taken into account or not.

On the right part of each figure, vortices orientated in the clockwise direction are induced by buoyancy. In the absence of electromagnetic forces, the downward motion of the "colder" slag near the edge and the upward motion near the axis of symmetry are the consequences of the lateral cooling. In contrast, Lorentz force tends to induce a recirculating motion in the counter-clockwise direction.

As we can see, in both cases, the fluid flow is mainly driven by Lorentz forces near the axis of symmetry and by thermal convection along the mold wall, due to the contact with the water-cooled mold, and under the tip of the immersed electrode.

When the mold is not fully insulated, the intensity of the fluid flow decreases with the reduction of the current density in the slag. However, due to the reduction of both thermal convection (through the reduction of the Joule heating) and Lorentz forces, the motion distribution is not affected.

In the liquid pool, the fluid motion is low. Due to the high electrical conductivity of the metal, Joule heating and Lorentz forces are reduced and the fluid flow is mainly driven by buoyancy.

C. Heat Transfer and Solidification

Figure 14 presents the computed temperature map in the slag bath and liquid pool of the solidifying ingot.

Mold current leads to a lower temperature of the slag bath, due to the decrease of the power generated by Joule heating (see above). As a result, the thickness of the solidified slag layer increases at the slag/ingot/mold interface.

The partial electrical insulation of the mold has a major influence on the computed thickness of the slag skin surrounding the ingot: while the ingot rises, the amount of slag trapped and crushed against the mold is more important, leading to a thicker slag skin as it can be seen in Figure 15.

It must be stated at this point that the measurement of the solidified slag skin thickness has been performed


Fig. 12—Stream function (kg s⁻¹) in the melt pool and slag bath with and without mold current at 50 and 90 pct of the remelting time, also showing iso-liquid fraction gl = 0.01, gl = 0.5, and gl = 0.99.



Fig. 13-Velocity field in the slag bath with and without mold current at 50 and 90 pct of the remelting time.

experimentally after complete solidification, by measuring the width of the slag crust remaining around the ingot.

If the insulation is assumed to be perfect, the model predicts a slag skin thickness lower than 1 mm, smaller

than the experimental values measured after the removal of the mold, due to the overestimation of the power generated within the slag bath.

Otherwise, the power generated inside the slag is reduced. The resulting thickness of the solidified slag



Fig. 14—Temperature map in the slag bath and the ingot pool with and without mold current at 50 and 90 pct of the total remelting time, also showing iso-liquid fraction gl = 0.01, gl = 0.5, and gl = 0.99.



Fig. 15-Experimental and calculated thickness of the slag skin surrounding the ingot.

increases and the values calculated by the model are similar to experimental data.

As it was deduced from the evolution of the total Joule power (Figure 11), the thickness of the solidified slag skin increases during the second period of the remelting, when the melt current and melting rate are lowered. It has to be noted that in the presence of mold current, this computed thickness presents noticeable variations with the height when the current and melt rate are reduced, while it is relatively uniform when the melt rate is high. These results confirm the experimental observation: the aspect of the ingot skin varies from smooth to rough when the melt rate decreases.

The slag skin acts like a thermal insulator from the water-cooled mold. A variation of its thickness consequently influences the heat loss, hence the depth and shape of the liquid pool profile. Figure 16 shows the evolution of the computed centreline liquid pool depth during the remelting, with and without mold current.

Predictions of both models (gl = 0.5) are compatible with the measurements based on the hypothesis of grain perpendicularity to the solidification front, except when the immersion depth is voluntarily increased (between 400 and 450 minutes). Indeed, this modification of one of the main operating parameters is not taken into account in the simulation.

The solidification of the ingot is mainly a consequence of the lateral heat loss. As the thermal resistance caused by the solid slag skin is proportional to its thickness, computed local solidification time increases when the mold is not assumed to be fully insulated as shown in Figure 17. As it is generally claimed that the occurrence of macrosegregation defects is higher if the solidification time is increased, this means that the resulting quality of



Fig. 16-Evolution of the depth of the liquid pool during the remelting with and without mold current.



Fig. 17—Local solidification time in the secondary ingot (s) with and without mold current.

the final ingot is not as good as it was determined by the first version of the model assuming no mold current.^[19,22]

V. CONCLUSIONS

The electrical insulation of the mold during an ESR operation depends on the thickness and electrical conductivity of the solidified slag layer. Whereas the thickness can be deduced from the computation of heat transfer and fluid flow, the electrical conductivity has to be measured experimentally and the lack of accurate data has been highlighted in the present work.

Kharicha *et al.*^[24] assumed its value to lie in the range from 0.1 to 50 S m⁻¹, for which the study realized with the electromagnetic part of the overall model confirms the existence of a mold current. The resulting decrease of the Joule heating and its consequences on the ingot solidification cannot be neglected. Indeed, results highlight that even a weakly conductive solidified slag skin at the inner surface of the mold can be responsible for a non-negligible amount of current circulating between the slag and mold.

The use of the fully coupled transient model indicated that the existence of a mold current reduces the Joule heating and fluid flow inside the slag bath, leading to a lower slag temperature and thicker solidified slag skin around the ingot. When mold current is accounted for, results are consistent with experimental measurements of the slag skin thickness after solidification and removal of the mold. This shows the validity of the results and the necessity to integrate this phenomenon in the model in order to be able to predict accurately the solidification conditions of the remelted material.

ACKNOWLEDGMENTS

As a part of the OPERAS (Optimizing Processes based on Electrode Remelting with Arc or Slag) Project, this work has been supported by the French National Research Agency (ANR-08-MAPR-0006-04).

NOMENCLATURE

SYMBOLS

B	Magnetic induction (T)
C_p	Specific heat $(J kg^{-1} K^{-1})$
\vec{D}	Electric displacement field (C m^{-2})
$ec{E}$	Electric field (V m^{-1})
f_{1}	Frequency (Hz)
$\hat{F}(\hat{F}_r,\hat{F}_z)$	Phasor of the Lorentz forces $(N m^{-3})$
g` /	Gravity (m s^{-2})

g_1	Liquid fraction
\vec{H}	Magnetic field (A m^{-1})
\hat{H}	Phasor of the magnetic field $(A m^{-1})$
Ι	Current (A)
Im ()	Imaginary part of a complex number
$\hat{J}(\hat{J}_r,\hat{J}_z)$	Phasor of the current density $(A m^{-2})$
$P^{(1)}$	Total power (W)
Q	Volumetric Joule power (W m^{-3})
q_1	Latent heat of solidification $(J kg^{-1})$
r	Radial coordinate
R	Radial distance from the axis (m)
Re ()	Real part of a complex number
t	Time (s)
Т	Temperature (K)
u_r	Radial component of velocity (m s^{-1})
V _z	Axial component of velocity $(m s^{-1})$
Ζ	Axial coordinate

GREEK SYMBOLS

- Thermal expansion coefficient (K^{-1}) β_T
- Thermal conductivity (W m^{-1} K⁻¹) λ
- Turbulent thermal conductivity (W m⁻¹ K⁻¹) λ_t
- Dynamic viscosity (kg m⁻¹ s⁻¹) Turbulent viscosity (kg m⁻¹ s⁻¹) μ
- μ_t
- Density (kg m^{-3}) ρ
- Electrical conductivity (S m^{-1}) σ
- Phase shift (rad) Φ
- Pulsation (rad s^{-1}) ω

REFERENCES

- 1. G. Hoyle: Electroslag Processes-Principles and Practice, Applied Science Publishers ltd, Essex, U.K., 1983.
- 2. A. Rückert and H. Pfeifer: Proceedings of METAL 2007-16th International Metallurgical & Material Conference, CD-ROM, Hradec nad Moravicí, Czech Republic, 2007.
- 3. A. Mitchell, J. Szekely, and J.F. Elliott: Electroslag Refining: Proceedings of a Conference on Electroslag Refining, Metals Society, London, UK. 1973, pp. 3-15.
- 4. A.H. Dilawari and J. Szekely: Metall. Trans. B, 1977, vol. 8B, pp. 227-36.
- 5. A.H. Dilawari and J. Szekely: Metall. Trans. B, 1978, vol. 9B, pp. 77-87.
- 6. B. Hernandez-Morales and A. Mitchell: Ironmaking Steelmaking, 1999, vol. 26 (6), pp. 423-38.
- 7. M.K. Choudhary: A study of heat transfer and fluid flow in the electroslag refining process. Ph.D. Thesis, MIT, Cambridge, 1980.
- 8. M.K. Choudhary and J. Szekely: Metall. Trans. B, 1980, vol. 11B, pp. 439-53.
- 9. A. Jardy: Modélisation des procédés de refusion à électrode consommable, Application à l'Inconel 718, Ph.D. Thesis (in French), INPL, Nancy, France, 1984.
- 10. A. Jardy, D. Ablitzer, and J.F. Wadier: Metall. Trans. B, 1991, vol. 22B, pp. 111-20.
- 11. A. Kharicha, A. Ludwig: Proceedings of the 6th International Scientific Colloquium, Modeling for Material Processing, Riga, Latvia. 2010, pp. 207-14. http://www.modlab.lv/publications/ mmp2010/index.html.

- 12. A. Kharicha, M. Wu, and A. Ludwig: Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M.J.M. Krane, A. Jardy, R.L. Williamson, J. Beaman, eds., TMS, Wiley, Austin, 2013, pp. 145-50.
- 13. K. Kelkar et al.: Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M.J.M. Krane, A. Jardy, R.L. Williamson, J. Beaman, eds., TMS, Wiley, Austin. 2013, pp. 3-12.
- 14. A. Rückert and H. Pfeifer: MagnetoHydrodynamics, 2009, vol. 45 (4), pp. 527-33.
- 15. S. Viswanathan et al.: Proceedings of the 2005 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, P.D. Lee, A. Mitchell, R.L. Williamson, and A.S. Ballantyne, eds., ASM International, Santa Fe. 2005, pp. 145-54.
- 16. S. Viswanathan et al.: Proceedings of the 11th International Conference on Modeling of Casting, C.-H. Gandin, M. Bellet, eds., TMS, Nice, France. 2006, vol. 11, pp. 977-84.
- 17. A. Kharicha, A. Ludwig, and M. Wu: Mater. Sci. Eng. A, 2005, vol. 413, pp. 129-34.
- 18. A. Kharicha et al.: Proceedings of the 11th International Conference on Modeling of Casting, C.-H. Gandin, M. Bellet, eds., TMS, Nice, France. 2006, vol. 11, pp. 985-92.
- 19. V. Weber et al.: Metall. Trans. B, 2009, vol. 40B, pp. 271-80.
- 20. T. Quatravaux et al.: Proceedings of the 2003 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, P.D. Lee, A. Mitchell, J.-P. Bellot, A. Jardy, eds., SF2M, Nancy, France. 2003, pp. 19-27.
- 21. T. Quatravaux et al.: J. Mater. Sci., 2004, vol. 39 (24), pp. 7183-91.
- 22. V. Weber: Simulation numérique du procédé de refusion sous laitier électroconducteur, Ph.D. Thesis (in French), INPL, Nancy, France, 2008.
- 23. A. Kharicha et al.: CFD Modeling and Simulation of Materials Processing, Wiley, Orlando, 2012, pp. 139-46.
- 24. M.J. Krane et al.: Proceedings of the 2011 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M. J.M. Krane, R.L. Williamson, J.-P. Bellot, A. Jardy, eds., SF2M, Nancy, France. 2011, pp. 65-72.
- 25. B. Li, F. Wang, and F. Tsukihashi: ISIJ Int., 2012, vol. 52 (7), pp. 1289-95.
- 26. A. Kharicha et al.: Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M. J.M. Krane, A. Jardy, R.L. Williamson, J. Beaman, eds., TMS, Wiley, Austin. 2013, pp. 95-100.
- 27. A. Mitchell: Mater. Sci. Eng. A, 2005, vol. 413, pp. 10-18.
- 28. K.M. Kelkar, J. Mok, S.V. Patankar, and A. Mitchell: Journal de Physique IV, 2004, vol. 120, pp. 421-28.
- 29. K.M. Kelkar, S.V. Patankar, A. Mitchell: Proceedings of the 2005 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, P.D. Lee, A. Mitchell, R.L. Williamson, and A.S. Ballantyne, eds., ASM International, Santa Fe. 2005, pp. 137-44.
- 30. P.J. Prescott and F.P. Incropera: Adv. Heat Transfer, 1996, vol. 28, pp. 231-338.
- 31. B.V. Antohe and J.L. Lage: Int. J. Heat Mass Transfer, 1997, vol. 40, pp. 3013-24.
- 32. S.V. Patankar: Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, 1st ed., Mc Graw-Hill Co, New York, 1980.
- 33. J.P. Van Doormaal and G.D. Raithby: Numer. Heat Transfer, 1984, vol. 7 (2), pp. 147-63.
- 34. E. Karimi Sibaki et al.: Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M.J.M. Krane, A. Jardy, R.L. Williamson, J. Beaman, eds., TMS, Wiley, Austin. 2013, pp. 13-19.
- 35. M. Hugo et al.: Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M.J.M. Krane, A. Jardy, R.L. Williamson, J. Beaman, eds., TMS, Wiley, Austin. 2013, pp. 79-85
- 36. A. Kharicha, A. Ludwig, M. Wu: Proceedings of the 2011 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, M.J.M. Krane, R.L. Williamson, J.-P. Bellot, A. Jardy, eds., SF2M, Nancy, France. 2011, pp 113-19.





A 2D Multiphase Model of Drop Behavior during Electroslag Remelting

Jérémy Chaulet ^{1,2}, Abdellah Kharicha ^{3,*}, Sylvain Charmond ², Bernard Dussoubs ¹, Stéphane Hans ², Menghuai Wu ⁴, Andreas Ludwig ⁴ and Alain Jardy ¹

- ¹ Institut Jean Lamour (UMR 7198 Université de Lorraine/CNRS), Campus Artem, 2 allée André Guinier-BP 50840, LabEx DAMAS, F-54011 Nancy CEDEX, France; jeremy.chaulet@univ-lorraine.fr (J.C.); bernard.dussoubs@univ-lorraine.fr (B.D.); alain.jardy@univ-lorraine.fr (A.J.)
- ² Aubert & Duval, BP 1, F-63770 Les Ancizes, France; sylvain.charmond@eramet.com (S.C.); stephane.hans@eramet.com (S.H.)
- ³ Christian Doppler Laboratory for Metallurgical Applications of MHD, Montanuniversitaet, Franz Josef-Straße 18, A-8700 Leoben, Austria
- ⁴ Chair of Simulation and Modeling of Metallurgical Processes, Montanuniversitaet, Franz Josef-Straße 18, A-8700 Leoben, Austria; menghuai.wu@unileoben.ac.at (M.W.); and reas.ludwig@unileoben.ac.at (A.L.)
- * Correspondence: abdellah.kharicha@unileoben.ac.at; Tel.: +43-3842-402-3115

Received: 16 March 2020; Accepted: 3 April 2020; Published: 8 April 2020



Abstract: Electroslag remelting is a process extensively used to produce metallic ingots with high quality standards. During the remelting operation, liquid metal droplets fall from the electrode through the liquid slag before entering the liquid pool of the secondary ingot. To better understand the process and help to optimize the operating condition choice, a 2D axisymmetric multiphase model of the slag domain has been developed using a two fluid Eulerian approach. During their fall, droplets hydrodynamic interactions are calculated thanks to an appropriate drag law. Influence of droplets on the electromagnetic field and on the slag hydrodynamics is discussed, as well as their heat exchange with the slag. Even with a small volume fraction, the droplets influence is noticeable. The present investigation shows that small droplets have a large influence on the slag hydrodynamics, due to a great momentum exchange. However heat transfer is more influenced by large drops, which are found to be relatively far from the thermal equilibrium with the slag phase.

Keywords: electroslag remelting; eulerian model; droplet; magnetohydrodynamic

1. Introduction

Electroslag remelting (ESR) is a leading process to produce alloys for applications requiring high metallurgical quality. For example, aeronautics, energy or tooling demand a reduced macro- and meso-segregation and a good inclusion cleanliness. These requirements may be achieved thanks to remelting operations. A schematic representation of the electroslag remelting process is presented in Figure 1. A primary ingot, also called the electrode, is immersed into a liquid slag. This slag is composed of calcium fluoride and various oxides such as lime, alumina or magnesia. Electric current is supplied to the process and is dissipated into Joule heating as it flows through the slag, since the latter is a highly resistive medium. Heat is transferred to the electrode, which then melts gradually, forming a liquid film underneath the electrode. From this liquid film, liquid metal drops form and fall through the slag. Liquid metal is collected into a copper mold cooled by a water circuit. The growing secondary ingot is constituted of a solid part, a mushy zone, and a melt pool where the liquid metal drops are falling. A comprehensive description of the process has been made in particular by Hoyle [1].





Figure 1. Schematic representation of the electroslag remelting process.

Remelted ingot quality is linked to the solidification conditions, such as the local solidification time for example [2]. Another way to assess ingot quality is to examine the liquid pool shape and depth. Melt pool profile depends on the magnitude and distribution of heat transfer at the boundaries of the ingot. Heat is extracted at the bottom and at the lateral bounds—the copper mold being continuously cooled—while heat is supplied through the slag/ingot interface. Previous work showed that drops are the main enthalpy carrier, whereas conductive transfer at the slag/liquid pool interface represents less than 20% of the total heat input to the ingot [2,3].

Studying the influence of operating conditions on the ingot quality using a trial and error approach is hindered by the cost of such remelting operations, the complexity of the process and the intricacy of in-situ measurements. Then, in order to better understand the energy transfer during the electroslag remelting, numerical modeling became the tool-of-choice. The first 2D models based on the resolution of coupled transfers were monophasic and covered only some parts of the process [4–7], and then were improved to comprehensively describe the entire process [8–11].

Later, the development of 3D multiphasic models [12–17] made the study of the liquid metal drop formation and behavior achievable. Such models are then very useful to better understand the mass and energy transfers; however their very high computational cost prevents a wide application.

A few 2D diphasic models of the electroslag remelting process were developed, based on the volume of fluid (VOF) method to track the interfaces between slag and metal [18–22]. Considering the drop behavior, such a 2D approach can be used if only one droplet is formed toward the axis, which can be the case for laboratory scale ESR. Thereby, these models are unsuitable to study industrial geometries as multiple droplets are formed under the electrode [12].

Whereas a 2D axisymmetric approach is adequate to model ingot solidification [24], an accurate simulation of drop behavior requires a three-dimensional model. Nonetheless, implementing an extensive description of drop behavior within a comprehensive 2D axisymmetric model of the electroslag remelting process could be a great improvement. Characterizing the enthalpy content of the liquid metal drops, their distribution and velocities, the computation of energy transfers to the melt pool would be more accurate, and thus the assessment of the expected final ingot quality would be better.

For instance, Weber et al. [8] compared the liquid pool profiles simulated using their comprehensive 2D axisymmetric model to those obtained from an industrial Ni-based alloy remelted ingot. Two main stages composed this experiment: the first half of the electrode was remelted using a low melt rate and a low current, and then a higher melt rate was achieved using a higher electric current. Operating conditions are given more in details in the original publication.

Figure 2 reproduces the ingot structure, with seven pool profiles marked by the addition of nickel balls. The calculated pool profiles are overlaid: dashed lines locate the liquidus isotherms and dotted lines the solidus. The first four calculated pool profiles are in excellent agreement with the observation. The next ones are in fairly good agreement, but the shape is not entirely complied with. As the melt rate is higher during this part of the remelting, droplets may have more influence on heat distribution and hydrodynamics. An improved description of energy transfer, especially by the drops contribution to the melt pool, could make the simulation more accurate.



Figure 2. Experimental (black) and simulated pool profiles (red), reproduced from reference [23].

With this in mind, the present work—inspired by a previous study made by Kharicha et al. [25] addresses the development of a two-fluid average model in a 2D axisymmetric frame. This model is then used to study the influence of drop fall on hydrodynamics and heat transfer during electroslag remelting.

2. Model Description

A 2D axisymmetric thermo-magnetohydrodynamic model has been developed at Montanuniversitaet (Leoben, Austria) and at the Institut Jean Lamour (Nancy, France), in close collaboration with Aubert & Duval company (Les Ancizes, France). It is based on a two-fluid Eulerian approach to model the diphasic flow. Liquid slag constitutes the continuous phase, through which falling liquid metal droplets are dispersed.

This section presents the constitutive equations of the model. Subscript *s* refers to the continuous phase (the slag), *m* to the dispersed phase (the liquid metal) and *mixt* to the mixture data.

2.1. Electromagnetism

Electromagnetic phenomena are of great importance in the electroslag remelting process since the heat source is created by an electric current flowing through the slag. The four Maxwell equations, which govern these electromagnetic phenomena, can be reduced to a single one when the displacement current is negligible: the induction equation. Assuming that the process is axisymmetric, the electromagnetic field *B* is purely azimuthal. Therefore, using cylindrical coordinates (r, θ , z), the induction equation reduces to Equation (1):

$$\frac{\partial B_{\theta}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{\sigma_{mixt}\mu_0} \frac{\partial B_{\theta}}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{\sigma_{mixt}\mu_0} \frac{1}{r} \frac{\partial(rB_{\theta})}{\partial r} \right) = 0 \tag{1}$$

where μ_0 is the magnetic permeability of free space, and σ_{mixt} is the mixture electrical conductivity per cell.

This equivalent conductivity per cell σ_{mixt} depends on the volume fraction of liquid metal α_m . It is here calculated using the Equation (2), derived by Maxwell assuming small spheres dispersed in a medium of distinct electrical conductivity [26]:

$$\sigma_{mixt} = \frac{\sigma_s \left(\frac{2}{\sigma_m} + \frac{1}{\sigma_s} - 2\alpha_m \left(\frac{1}{\sigma_m} - \frac{1}{\sigma_s}\right)\right)}{\frac{2}{\sigma_m} + \frac{1}{\sigma_s} + \alpha_m \left(\frac{1}{\sigma_m} - \frac{1}{\sigma_s}\right)}$$
(2)

where σ_s and σ_m are the electrical conductivities of the liquid slag and liquid metal.

To account for the time periodicity of the alternating current supplied to the process, the phasor notation is used. For instance, the phasor of the electromagnetic induction is given by Equation (3).

$$B_{\theta} = \widetilde{B_{\theta}} e^{j\omega t} \quad \text{with} \quad \widetilde{B_{\theta}} = B_{\theta,max} e^{j\varphi} \tag{3}$$

where $j^2 = -1$, ω is the pulsation and φ the phase.

Once the magnetic field has been computed, electric current density J is determined using Ampère's circuital law (4).

$$\widetilde{J} = \frac{1}{\mu_0} \nabla \times \widetilde{B} \tag{4}$$

The power generated by Joule Heating and the Lorentz forces are computed using Equations (5) and (6). They are accounted for as source terms respectively in the heat transfer and the momentum equations.

$$Q_{Joule} = \frac{1}{2\sigma} Re\left(\widetilde{J} \cdot \widetilde{J}_{conjugate}\right)$$
(5)

$$F_{L,r} = -\frac{1}{2} Re(\widetilde{BJ}_{z\,conjugate}) \text{ and } F_{L,z} = \frac{1}{2} Re(\widetilde{BJ}_{r\,conjugate})$$
(6)

Following Leenov and Kolin's discussion of the electromagnetokinetic effect [27], Lorentz Forces (Equation (6)) acting on the drops are multiplied by 3/2. This coefficient accounts for a MHD force due to the pressure gradient created in the fluid by the interaction of the electric current and the magnetic field. In the slag phase, and where the liquid metal does not form drops, Equation (6) remains unchanged.

2.2. Continuity and Phase Fraction Equations

The continuity equation for the dispersed phase (7) is solved to compute the volume fraction α_m of liquid metal. v_m is the metal velocity vector.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_m \rho_m) + \nabla \cdot (\alpha_m \rho_m \boldsymbol{v}_m) = 0 \tag{7}$$

The slag volume fraction α_s is then deduced using the relation $\alpha_s + \alpha_m = 1$, which is a consequence of the mixture continuity Equation (8).

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\alpha_m \rho_m + \alpha_s \rho_s \right) + \nabla \cdot \left(\alpha_m \rho_m \boldsymbol{v}_m + \alpha_s \rho_s \boldsymbol{v}_s \right) = 0 \tag{8}$$

2.3. Hydrodynamics

One set of momentum equations is solved per phase. The two phases are considered as an interpenetrating continuum and share a unique pressure field P. The momentum equation for the continuous phase (the slag) is written below (Equation (9)). A similar equation is solved for the liquid metal dispersed phase.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_s\rho_s\boldsymbol{v}_s) + \nabla \cdot (\alpha_s\rho_s\boldsymbol{v}_s\cdot\boldsymbol{v}_s) = -\alpha_s\nabla \mathbf{P} + \alpha_s\rho_s\boldsymbol{g} + \nabla \cdot \overline{\boldsymbol{\tau}}_s^{=} + \boldsymbol{F}_{\boldsymbol{Bo}} + \boldsymbol{R}_{\boldsymbol{ms}} + \boldsymbol{F}_L \tag{9}$$

The shear rate tensor $\overline{\tau}$, or viscous stress tensor, accounts for the diffusive momentum transfer. The buoyancy force F_{Bo} follows the Boussinesq approximation. The source term R_{ms} represents the interphase momentum exchange, and is developed according to Equation (10).

$$\boldsymbol{R}_{ms} = \frac{C_D R e_p}{24} \frac{\rho_m A_i}{6\tau} (\boldsymbol{v}_m - \boldsymbol{v}_s) \tag{10}$$

 $Re_p = \frac{\rho_s |v_m - v_s|d_p}{\mu_m}$ is the drop Reynolds number, μ the dynamic viscosity, A_i is the interfacial area concentration, τ is the drop relaxation time constant, and C_D is the drag coefficient.

During the electroslag remelting operation, droplets are formed within a wide size range, typically lying between 1 and 10 mm [28]. However, in the present study, the liquid metal dispersed phase is characterized by a unique drop diameter d_p .

At an intermediate Reynolds number, drop behavior can deviate from the one of a rigid sphere. As shown by the experiments performed by Hu and Kintner [29], when the drop diameter is increased, the drag coefficient raises from the standard drag curve. This may be the result of internal fluid circulation inside the drop, or interfacial oscillations.

From these results and Loth's analysis [30], an accurate drag function is proposed, based on the evaluation of an increment of the drag coefficient compared to the ideal solid sphere case, and bounded by the case of a highly deformable drop.

The drag coefficient is thus given by Equation (11) [30]:

$$C_D = C_{D,We\to0} + \Delta C_D^* \left(C_{D,We\to\infty} - C_{D,We\to0} \right)$$
(11)

We is the Weber adimensional number $We = \frac{\rho_m v^2 d_p}{\gamma}$, where γ is the slag/metal interfacial tension. $C_{D,We\to0}$ represents the drag coefficient of an ideal sphere, and is estimated thanks to Clift and Gauvin (Equation (12)) [31]:

$$C_{D,We\to0} = \frac{24}{Re_p} \left(1 + 0.15 \ Re_p^{0.687} \right) + \frac{42}{1 + 4.25 \ 10^4 Re_p^{-1.16}}$$
(12)

 $C_{D,We \to \infty}$ is the drag coefficient of a strongly deformed drop, for which the result of Davies and Taylor modified by Moore is used (Equation (13)) [31]:

$$C_{D,We \to \infty} = \frac{8}{3} + \frac{14.24}{Re_p}$$
(13)

As no fit for the drag increment ΔC_D^* has been found for drops, the expression given by Loth for bubbles is chosen (Equation (14)) [30]:

$$\Delta C_D^* = \tanh\left(0.0038 \left(WeRe_p^{0.2}\right)^{1.6}\right)$$
(14)

Figure 3 represents the drag curve obtained, compared to the experimental drag coefficients determined by Hu and Kintner [29]. The chosen drag function respects the trend highlighted by the observation.



Figure 3. Comparison of the proposed drag curve (**a**) and the experimental data of Hu and Kintner (**b**), reproduced from reference [29] with permission.

2.4. Heat Transfer

One enthalpy *h* transport equation is solved for each phase. Convection and conduction are taken into account. The enthalpy equation solved for the slag phase is given by Equation (15):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_s\rho_sh_s) + \nabla \cdot (\alpha_s\rho_s\boldsymbol{v}_sh_s) = \nabla \cdot (\alpha_s\lambda_s\nabla T_s) + Q_{ms} + Q_{Joule}$$
(15)

where λ is the thermal conductivity.

 Q_{ms} represents the interphase heat exchange, and is computed as stated in Equation (16):

$$Q_{ms} = h_{ms}A_i \left(T_m - T_s\right) \tag{16}$$

Interfacial heat transfer coefficient is estimated from Ranz and Marshall's correlation (Equation (17)):

$$Nu_p = \frac{h_{ms}d_p}{\lambda_s} = 2.0 + 0.6Re_p^{1/2}Pr^{1/3}$$
(17)

where $Nu_p = \frac{h_{ms}d_p}{\lambda_s}$ is the Nusselt number and $Pr = \frac{c_{ps}\mu_s}{\lambda_s}$ is the slag Prandtl number.

2.5. Calculation Domain, Boundary Conditions and Resolution

The computational domain is schematically shown in Figure 4, while the process dimensions and operating conditions for the industrial-sized reference case studied are given in Table 1. The domain covers the whole slag bath and includes the lower part of the electrode and the upper part of the ingot. The immersed tip is considered flat and does not suffer any morphology change during the simulation. Solidification of the ingot is not considered.



Figure 4. Schematic representation of the computational domain.

Table 1. Geometry	y and o	perating	conditions of	the ref	erence case.

Electrode Radius (m)	0.215
Inner mold radius (m)	0.265
Electrode immersion depth (m)	0.015
Electrode-ingot distance (m)	0.157
Droplet diameter (mm)	1; 5; 10
Electrode melt rate (kg.min ⁻¹)	10
Electric current intensity (kA)	15

Slag–ingot interface is not explicitly represented: the slag and upper ingot are within the same resolution zone, where the two fluids (slag and metal) form a continuum. This interface is then located by means of the liquid metal volume fraction field.

A source of liquid metal drop, related to the melt rate, is distributed homogeneously under the horizontal electrode–slag interface.

Boundary conditions are summarized in Table 2. The radiative heat loss is calculated using Stefan–Boltzmann law, assuming an emissivity of 0.9 and an external temperature of 1000 K. Regarding the electromagnetic boundary conditions at c., d. and e., Ampère's circuital law (18) is applied:

$$\widetilde{B_{\theta}} = \frac{\mu_0 I}{2\pi r} \tag{18}$$

The CFD commercial software ANSYS Fluent is used to solve the coupled transfers of momentum and enthalpy. Electromagnetic field is calculated using User Defined Functions (UDF) written in C language and loaded with ANSYS Fluent solver. The multiphase coupled scheme is used for pressure-velocity coupling. First order upwind is used for spatial discretization of the flow. For time discretization, the implicit scheme is applied. The 2D mesh contains 28,845 quadrilateral cells, among

them 25,545 covering the zones 2 and 3 (see Figure 4). A pseudo steady state is obtained; results are then time-averaged during 40 s. This represents around 60 h of computation, using a time step of 5×10^{-4} s, with a 3.30 GHz CPU.

Boundary ¹	Description	Electromagnetic	Hydrodynamic	Thermal
a.	symmetry axis	$B_{\theta} = 0$	free slip	no flux
b.	top of the calculation domain	no flux	-	no flux
с.	vertical electrode wall	Ampère's circuital law (18)	-	-
d.	slag surface	Ampère's circuital law (18)	free slip	radiative heat transfer
e.	slag-mold and mold-ingot interface	Ampère's circuital law (18)	no slip	slag liquidus temperature
f.	bottom of the domain	no flux	no slip	metal liquidus temperature
g.	vertical immersed electrode wall	coupled	no slip	metal liquidus temperature
h.	horizontal immersed electrode wall	coupled	no slip	metal liquidus temperature

Table 2.	Summary	z of the	boundary	conditions.
1abic 2.	Junning	or the	Doundary	contantions.

¹ Boundary nomenclature refers to Figure 4.

2.6. Material Properties

Physical properties of the materials, needed as model input data, are presented in Table 3, along with their values in this study, corresponding to the remelting of a low-alloyed steel using a standard 70/15/15 type slag.

Table 3. Physical properties of the liquid metal and slag needed by the model, obtained from references [25,32,33] and CALPHAD computation (Thermo-Calc, TCFE9).

Physical Property	Liquid Metal (Low-Alloyed Steel)	Liquid Slag (70/15/15 Type)
Dynamic viscosity η (kg·m ⁻¹ ·s ⁻¹)	0.006	0.008
Density ρ (kg·m ⁻³)	6940	2765
Liquidus temperature (K)	1763	1733
Thermal expansion coefficient β (K ⁻¹)	1.1×10^{-4}	7.5×10^{-5}
Thermal conductivity λ (W·m ⁻¹ ·K ⁻¹)	30	35
Specific heat capacity C_p (J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹)	690	1380
Electrical conductivity σ ($\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$)	10 ⁶	250

3. Results and Discussions

3.1. Drop Fall Influence

In this section, the model is applied to two cases. The first one does not consider the fall of liquid drops through the slag, in order to be similar to usual monophasic 2D axisymmetric simulations. For the second case, the fall of 5 mm drops through the slag is considered.

The time-averaged liquid metal volume fraction fields are plotted in Figure 5 for both cases. Liquid metal drop source is distributed evenly under the electrode. Within the slag, falling drops lead to small liquid metal volume fractions: around 5×10^{-4} in the zone where drop acceleration is

negligible. Since the calculated drop terminal velocity is around $0.38 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, these 5 mm drops have a residence time of about 0.45 s, which explains the small volume fractions obtained.



Figure 5. Liquid metal volume fraction fields (time-averaged) without drops (**a**) and considering the drops falling through the slag (**b**). Normalized velocity vectors of the liquid metal drops are plotted in black on (**b**).

As reported by various studies using monophasic models [5,7,9], slag motion is driven by the combination of Lorentz forces and buoyancy. The thermal buoyant circulation is caused by the lateral cooling, and is seen as a clockwise motion on Figure 6a. The Lorentz forces, generated as the electric current flows through the slag, create a vortex under the electrode, and are visible as a counter-clockwise loop in Figure 6.



Figure 6. Slag phase velocity magnitude and normalized slag velocity vectors (time-averaged) for the case without drops (**a**) and considering the drops fall (**b**).

The fall of liquid metal droplets seems to amplify the electro-vortex under the electrode. Thermal loop driven by lateral cooling is obviously identical, as no drops are falling in this region. The smaller vortex driven by Lorentz forces in the annular zone remains also the same.

As illustrated in Figure 7, temperature distribution within the slag is quite similar in both cases, the hotter region is located underneath the electrode tip. For the case considering the drops fall, the hot zone is extended because of the wider electromagnetic recirculation loop.



Figure 7. Temperature distribution of the slag phase (time-averaged) for the case without drops (**a**) and considering the drops fall (**b**).

It is interesting to look at the temperature difference between slag and drop and the drop overheat fields, as shown in Figure 8. Drop overheat is defined by $T - T_{\text{liquidus}}$. The drops are first heated by the slag when they fall through the hotter region, and then are cooled as they reached the cooler bottom part of the slag cap. Finally, they are overheated by around 100 to 120 K when they enter the melt pool. One can also notice that drops of 5 mm and larger diameter are not in thermal equilibrium with the slag, as illustrated in Figure 8b. This represents a fairly new finding, as thermal equilibrium has been generally assumed throughout the literature.



Figure 8. Drop overheat (**a**) and temperature difference between the drops and the slag (**b**) (time-averaged) for the 5 mm falling drops.

3.2. Influence of Drop Diameter

3D simulations highlighted than liquid metal droplets exhibit a wide size range [15,28]. During an ESR operation, some slag were taken from the region between the slag and ingot and a 7 mm metal drop has been found [28], supporting the hypothesis that drop diameter may lie between 1 and 10 mm. As one unique diameter is set in the model, several simulations have been performed to investigate separately the influence of each drop size on the hydrodynamics and heat transfer.

A change in the drop diameter first affects the drop terminal velocity. For instance, reducing the diameter from 10 to 5 mm, then to 1 mm, decreases the terminal velocity from 0.41 to $0.38 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, then to $0.10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Hence, the residence time increases to nearly 2 s for the smallest drops. This explains the higher volume fraction calculated in the latter case, as presented in Figure 9a. This figure also reveals that droplets trajectory is not anymore purely axial, as it is for larger drops. In fact, droplets near the electrode corner are deviated toward the axis by the strong Lorentz forces (see Figure 10a), and this motion is also maintained by the slag flow in this zone. Resulting drop radial velocity is plotted in Figure 10b.



Figure 9. Liquid metal volume fraction (time-averaged) considering the fall of 1 mm (**a**), 5 mm (**b**) and 10 mm (**c**) liquid metal drops.



Figure 10. Magnitude of Lorentz forces and vectors (**a**) and radial velocity of 1 mm diameter liquid metal drops (**b**) (time-averaged).

The 5 and 10 mm drops here acquire a quite similar terminal velocity. The drag law used in this model (Equation (11)) reflects the speed reduction due to the drop deformation and its internal circulation. Both phenomena are more significant for the 10 mm drops, thus their terminal velocity remains within the same range as for drops with a diameter 2 times lower (which are 8 times lighter). The volume fraction fields for 5 and 10 mm drops are then similar, except in the zone where acceleration is nonzero.

Considering large drops (5 and 10 mm diameter, Figure 11b,c), slag hydrodynamics is quite similar to the case where the drop fall is not considered (Figure 6a). As the metal volume fraction is small and homogeneously distributed, these big drops does not have a strong influence on slag motion.



Figure 11. Slag phase velocity magnitude and normalized slag velocity vectors (time-averaged) considering the fall of 1 mm (**a**), 5 mm (**b**) and 10 mm (**c**) drops.

In opposite, in the case of smaller drops—here 1 mm diameter (Figure 11a)—the slag hydrodynamics is greatly modified. The flow loop governed by electromagnetic forces seems to be predominant. The electrical conductivity of the mixture is around $251 \Omega^{-1} \cdot m^{-1}$, so electromagnetic field is mostly the same as for other cases. As shown by Figure 12, Lorentz forces calculated for the case with 1 mm droplets are sensibly similar than in the single phase case. A small increase around 0.5% is

predicted in the region where the electro-vortex intensifies. Nevertheless, as electromagnetokinetic effect is introduced is the model (factor 3/2 on the drop's Lorentz force), these droplets get higher momentum in the radial direction. This additional momentum is then transferred to the slag by a mechanism of drag interaction. The electro-vortex is then strengthened by the presence of small droplets, not because of a change in the electromagnetic field (almost the same), but only because of hydrodynamic interactions.



Figure 12. Difference of Lorentz forces (in %) between the case with 1 mm droplets and without droplets.

These results indicate that in addition to natural buoyancy and Lorentz forces, the momentum interaction with the dispersed droplet phase has to be considered in order to predict accurately slag behavior.

The size of the drops also affects the heat exchange: small droplets are almost in thermal equilibrium with the slag, while larger ones are not, as illustrated in Figure 13. Slag temperature distribution is similar in these three cases, so the maximum overheat is reached for the smallest droplets. However, during their fall in the bottom part of the slag cap—which is cooler—these small droplets also lose more quickly their overheat, while bigger drops remain hotter than the surrounding slag. Hence, 10 mm drops bring more enthalpy to the melt pool than 1 mm drops. Drop overheats are compared in Figure 14.



Figure 13. Temperature difference between drops and slag (time-averaged) considering the fall of 1 mm (**a**), 5 mm (**b**) and 10 mm (**c**) drops.



Figure 14. Drop overheat (time-averaged) considering the fall of 1 (a), 5 (b) and 10 mm (c) drops.

As already stated, in most engineering models of the ESR process, the enthalpy provided to the liquid pool by the drops is computed considering that they are in thermal equilibrium with the slag right above the interface. The cases presented here point out that this assumption is not verified for large droplets, which remains hotter than the slag above the melt pool.

4. Conclusions

A 2D thermo-magnetohydrodynamic diphasic model based on a Euler–Euler approach has been developed to study the behavior of liquid metal drops falling through the slag bath during electroslag remelting. This method is suitable to simulate full-scale operations, which is not the case for 2D axisymmetric models using the VOF technique.

This study highlights new insights, which are valuable to improve the description of heat and momentum transfer in a comprehensive model of the ESR process:

- Small drops have a strong effect on the flow, not because of a change in electromagnetic field, but due to their great momentum exchange with the slag;
- Large drops have a more important effect on heat transfer, and are found quite far from thermal equilibrium with the slag;
- Small metallic droplets transfer efficiently their momentum to the slag hydrodynamic. In opposite, slag hydrodynamic remains relatively unaffected by the presence of larger droplets, which release their momentum inside the liquid metal pool.

Thermal equilibrium between drops and slag and the fact that hydrodynamics is mainly driven by buoyancy and Lorentz forces are classic assumptions used in engineering models of electroslag remelting. It may be necessary to reassess them for some cases.

Author Contributions: Conceptualization, A.K., M.W., A.L. and A.J.; investigation, J.C.; supervision, A.K., S.C., B.D., S.H. and A.J.; visualization, J.C.; writing—original draft, J.C.; writing—review and editing, A.K., S.C., B.D., S.H. and A.J. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: This research was funded by the French National Research and Technology Association, CIFRE funding #2017–1585 (Aubert & Duval Company). This research was also funded by the Austrian Federal Ministry of Economy, Family and Youth and the National Foundation for Research, Technology and Development within the framework of the Christian-Doppler Laboratory for Metallurgical Applications of Magnetohydrodynamics (Abdellah Kharicha).

Acknowledgments: Jérémy Chaulet acknowledges mobility grant from the Erasmus + Agency. Abdellah Kharicha acknowledges financial support from the Austrian Federal Ministry of Economy, Family and Youth and the National Foundation for Research, Technology and Development within the framework of the Christian-Doppler Laboratory for Metallurgical Applications of Magnetohydrodynamics.

Conflicts of Interest: The authors declare no conflict of interest.

References

- 1. Hoyle, G. Electroslag Processes: Principles and Practice; Applied Science Publishers: London, UK, 1983.
- 2. Ballantyne, A.S. Heat Flow in Consumable Electrode Remelted Ingots. Ph.D. Thesis, University of British Columbia, Vancouver, BC, Canada, 1978.
- Jardy, A.; Ablitzer, D.; Wadier, J.F. Modeling of Movements and Heat Transfer in ESR Slags. In Proceedings of the International Conference on Vacuum Metallurgy, Linz, Austria, 30 September–4 October 1985; Volume 2, pp. 1152–1173.
- 4. Dilawari, A.H.; Szekely, J. A mathematical model of slag and metal flow in the ESR Process. *Metall. Trans. B* **1977**, *8*, 227–236. [CrossRef]
- 5. Choudhary, M.; Szekely, J. The modeling of pool profiles, temperature profiles and velocity fields in ESR systems. *Metall. Trans. B* **1980**, *11*, 439–453. [CrossRef]
- 6. Ferng, Y.M.; Chieng, C.C.; Pan, C. Numerical Simulations of Electro-Slag Remelting Process. *Numer. Heat Transf. Part Appl.* **1989**, *16*, 429–449. [CrossRef]
- Jardy, A.; Ablitzer, D.; Wadier, J.F. Magnetohydronamic and thermal behavior of electroslag remelting slags. *Metall. Trans. B* 1991, 22, 111–120. [CrossRef]
- Weber, V.; Jardy, A.; Dussoubs, B.; Ablitzer, D.; Rybéron, S.; Schmitt, V.; Hans, S.; Poisson, H. A Comprehensive Model of the Electroslag Remelting Process: Description and Validation. *Metall. Mater. Trans. B* 2009, 40, 271–280. [CrossRef]
- 9. Hugo, M.; Dussoubs, B.; Jardy, A.; Escaffre, J.; Poisson, H. Influence of the Mold Current on the Electroslag Remelting Process. *Metall. Mater. Trans. B* **2016**, *47*, 2607–2622. [CrossRef]
- Yanke, J.; Fezi, K.; Fahrmann, M.; Krane, M.J.M. Predicting Melting Behavior of an Industrial Electroslag Remelting Ingot. In Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing & Casting, Austin, TX, USA, 22–25 September 2013; pp. 47–55.
- Karimi-Sibaki, E.; Kharicha, A.; Wu, M.; Ludwig, A.; Holzgruber, H.; Ofner, B.; Ramprecht, M. A Numerical Study on the Influence of the Frequency of the Applied AC Current on the Electroslag Remelting Process. In Proceedings of the 2013 International Symposium on Liquid Metal Processing & Casting, Austin, TX, USA, 22–25 September 2013; pp. 13–19.
- Kharicha, A.; Ludwig, A.; Wu, M. 3D Simulation of the Melting during an industrial scale Electro-slag remelting process. In Proceedings of the International Symposium on Liquid Metal Processing & Casting, Nancy, France, 25–28 September 2011; pp. 41–48.
- 13. Giesselmann, N.; Rückert, A.; Eickhoff, M.; Pfeifer, H.; Tewes, J.; Klöwer, J. Coupling of Multiple Numerical Models to Simulate Electroslag Remelting Process for Alloy 718. *ISIJ Int.* **2015**, *55*, 1408–1415. [CrossRef]
- 14. Liu, S.; He, Z.; Hui, C.; Wang, Q.; Li, B. Numerical simulation of the formation and the dripping of droplet in the Electroslag Remelting process. *Therm. Sci.* **2017**, *21*, 1241–1250. [CrossRef]
- 15. Li, B.; Li, R.; Wang, B. Formation and Drop of Metal Droplets in Slag Bath of Electroslag Remelting Processes. In *Materials Processing Fundamentals*; Springer: Cham, Switzerland, 2013; pp. 39–44, ISBN 978-3-319-48584-3.
- 16. Wang, Q.; Zhao, R.; Fafard, M.; Li, B. Three-dimensional magnetohydrodynamic two-phase flow and heat transfer analysis in electroslag remelting process. *Appl. Therm. Eng.* **2015**, *80*, 178–186. [CrossRef]
- 17. Wang, Q.; Li, B. Numerical investigation on the effect of fill ratio on macrosegregation in electroslag remelting ingot. *Appl. Therm. Eng.* **2015**, *91*, 116–125. [CrossRef]
- 18. Yu, J.; Jiang, Z.; Liu, F.; Chen, K.; Li, H.; Geng, X. Effects of Metal Droplets on Electromagnetic Field, Fluid Flow and Temperature Field in Electroslag Remelting Process. *ISIJ Int.* **2017**, *57*, 1205–1212. [CrossRef]
- 19. Giesselmann, N. Numerische Untersuchungen des Elektroschlacke-Umschmelzprozesses für Alloy 718. Ph.D. Thesis, RWTH Aachen University, Aachen, Germany, 2014.
- 20. Kharicha, A.; Ludwig, A.; Wu, M. Shape and stability of the slag/melt interface in a small dc ESR process. *Mater. Sci. Eng. A* **2005**, *413*, 129–134. [CrossRef]
- 21. Dong, Y.-W.; Jiang, Z.-H.; Fan, J.-X.; Cao, Y.-L.; Hou, D.; Cao, H.-B. Comprehensive Mathematical Model for Simulating Electroslag Remelting. *Metall. Mater. Trans. B* **2016**, *47*, 1475–1488. [CrossRef]
- Huang, X.; Li, B.; Liu, Z.; Yang, X.; Tsukihashi, F. Numerical study on the removal and distribution of non-metallic inclusions in electroslag remelting process. *Int. J. Heat Mass Transf.* 2019, 135, 1300–1311. [CrossRef]

- 23. Weber, V. Simulation Numérique du Procédé de Refusion Sous Laitier Electroconducteur. Ph.D. Thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 2008.
- 24. Karimi-Sibaki, E.; Kharicha, A.; Bohacek, J.; Wu, M.; Ludwig, A. On Validity of Axisymmetric Assumption for Modeling an Industrial Scale Electroslag Remelting Process. *Adv. Eng. Mater.* **2016**, *18*, 224–230. [CrossRef]
- 25. Kharicha, A.; Schützenhöfer, W.; Ludwig, A.; Tanzer, R. Multiphase Modelling of the Slag Region in ESR process. In Proceedings of the 2007 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, Nancy, France, 2–5 September 2007; pp. 107–111.
- 26. Maxwell, J.C. A Treatise on Electricity and Magnetism; Clarendon Press: Oxford, UK, 1873; Volume 1.
- 27. Leenov, D.; Kolin, A. Theory of Electromagnetophoresis. I. Magnetohydrodynamic Forces Experienced by Spherical and Symmetrically Oriented Cylindrical Particles. *J. Chem. Phys.* **1954**, *22*, 683–688. [CrossRef]
- Kharicha, A.; Schützenhöfer, W.; Ludwig, A.; Tanzer, R. Numerical and Experimental Investigations on the ESR Process of the Hot Work Tool Steel H11. In Proceedings of the 2009 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, Santa Fe, NM, USA, 20–23 September 2009; pp. 235–242.
- 29. Hu, S.; Kintner, R.C. The fall of single liquid drops through water. AIChE J. 1955, 1, 42–48. [CrossRef]
- 30. Loth, E. Quasi-steady shape and drag of deformable bubbles and drops. *Int. J. Multiph. Flow* **2008**, *34*, 523–546. [CrossRef]
- 31. Clift, R.; Grace, J.R.; Weber, M.E. Bubbles, Drops, and Particles; Academic Press: New York, NY, USA, 1978.
- 32. Davies, M.W.; Wright, F.A. The viscosities of calcium fluoride based-slags. Chem. Ind. 1970, 11, 359–363.
- 33. Ogino, K.; Hara, S. Density, Surface Tension and Electrical Conductivity of Calcium Fluoride Based Fluxes for Electroslag Remelting. *Tetsu-to-Hagane* **1977**, *63*, 2141–2151. [CrossRef]



© 2020 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

C.3 Modélisation de la solidification et établissement d'un benchmark numérique (P11, P14, P16, P35-36, P50-51, P53-55 ; P14 incluse ci-après)

Lors de la solidification des alliages, l'écoulement du fluide dans la zone pâteuse joue un rôle fondamental dans la formation de la macroségrégation dans le produit final, en redistribuant les solutés. Dans certains cas, on observe la formation de canaux ségrégés (correspondant à des mésoségrégations), qui ont un effet important sur la qualité des pièces moulées in fine car la composition et la structure cristalline du solide qui se forme dans les canaux peuvent fortement différer de celles des régions solides voisines. Ces canaux se présentent sous la forme de longues traînées étroites alignées selon une direction préférentielle, avec une concentration en soluté souvent supérieure à celle des régions environnantes. L'écoulement interdendritique dans la région pâteuse conduit à des perturbations de la structure colonnaire en croissance, provoquant ainsi une instabilité du front de croissance qui conduit à son tour à une instabilité supplémentaire de la carte de ségrégation et à la formation de canaux.

Classiquement, la macroségrégation est étudiée à l'aide de modèles multi-échelles basés sur des lois macroscopiques faisant appel soit à la théorie des mélanges soit à la moyenne volumique, couplés à des modèles de microségrégation. Dans ces modèles, la zone pâteuse est considérée comme un milieu poreux saturé, de perméabilité variable, et l'écoulement dans la zone pâteuse est régi par la loi de Darcy. Le modèle de Carman-Kozeny est généralement utilisé pour calculer la perméabilité. La discrétisation des équations de conservation du modèle macroscopique est basée le plus souvent sur des formulations aux volumes finis ou aux éléments finis. Dans ces conditions, un paramètre fondamental dans le calcul des mésoségragations est la perméabilité dans la zone pâteuse. En effet, la dépendance de cette dernière avec la fraction liquide est très fortement nonlinéaire, et une très faible variation de la fraction liquide peut entraîner une grande variation (plusieurs ordres de grandeur) de la perméabilité, et donc affecter de manière significative l'écoulement dans la zone pâteuse, et par là même la ségrégation. Dans la formulation aux volumes finis, la discrétisation de l'équation de quantité de mouvement nécessite une estimation de l'intégrale de volume du terme de Darcy sur les volumes de contrôle, en appliquant un schéma de discrétisation. Par ailleurs, la perméabilité est connue au centre des volumes de contrôle, mais le terme de Darcy dans lequel elle intervient doit être estimé aux faces de ces volumes du fait qu'on utilise une grille de pression-vitesse décalée. Le schéma de discrétisation du terme de perméabilité et son interpolation auront donc un effet majeur sur les prédictions de macroségrégation et sur les canaux ségrégés dans la zone pâteuse, ce qui a motivé une étude sur ce thème.

Sans étonnement, nos calculs ont montré que pour un maillage suffisamment raffiné, les schémas de discrétisation testés conduisent tous à des résultats similaires. Malheureusement, lorsqu'on simule des opérations sur des produits industriels, il est difficile, voire impossible de générer des maillages assez fins pour que les résultats soient indépendants du schéma choisi. Dans ce cas-là, la discrétisation de la perméabilité à l'aide d'un schéma de fraction liquide interpolée et d'un schéma d'intégration analytique est recommandée. Nous avons constaté qu'un maillage grossier peut assez bien capter le risque de former des mésoségrégations, mais que seul un maillage fin est capable de résoudre plus en détail les phénomènes complexes impliqués. Avec un maillage très fin, les canaux ont été capturés avec une définition de plus d'un point dans leur largeur, permettant une détermination précise de cette largeur.

Pour illustrer cela, la figure 23 présente l'évolution, dans un modèle 1D où une solution analytique « exacte » peut être calculée, de l'écart entre la vitesse obtenue selon différents schémas de discrétisation et la vitesse exacte (1,2414 mm/s ici), ceci en fonction du nombre de mailles. Le domaine possède une longueur de 10 cm. On constate que 40 mailles a minima (i.e. une taille de maille de 2,5 mm ou moins) sont nécessaires afin que le choix du schéma de discrétisation soit sans influence.



Figure 23 : Évolution en fonction du nombre de mailles (dans un maillage 1D) de l'écart entre la vitesse obtenue selon différents schémas de discrétisation et la vitesse exacte (solution analytique, 1,2414 mms⁻¹).

Dans un second temps, un modèle 2D a été élaboré. Dans celui-ci, un alliage étain-5% (massique) plomb est contenu dans une cavité rectangulaire adiabatique sur 3 côtés, le 4^{ème} (côté gauche) correspondant à l'extraction d'un flux de chaleur, ce qui provoque la solidification du fluide (cf. figure 24). Lors de celle-ci, l'élément d'alliage est rejeté en amont du front de solidification, et du fait de sa masse volumique supérieure à celle de l'étain, la convection d'origine solutale entraine un mouvement dans le sens inverse des aiguilles d'une montre, donc dans le même sens que celui provoqué par la convection d'origine thermique. Le mouvement antihoraire est donc renforcé, ce qui va contribuer à créer des canaux ségrégés.



Figure 24 : Domaine de calcul pour la simulation 2D.

Différents schémas de discrétisation du terme de perméabilité ont été testés, en utilisant un maillage de 60 x 60 mailles, dont on pourrait espérer, au vu des résultats 1D, qu'il n'influence pas (trop) les résultats quel que soit le schéma de discrétisation choisi. Les résultats en termes de macroségrégation à t = 400 s sont présentés sur la figure 25.



Figure 25 : Cartes de macroségrégation dans la cavité à t = 400 s (maillage 60 x 60). a) discrétisation analytique de la perméabilité ; b) interpolation harmonique de la perméabilité ; c) évaluation de la perméabilité à partir de l'interpolation de la fraction liquide ; d) interpolation linéaire de la perméabilité

Si la tendance générale est la même quel que soit le schéma, des différences fortes peuvent être observées quant à la forme, à la concentration, et au nombre de canaux ségrégés. L'interpolation linéaire du terme de perméabilité (d) semble relativement s'éloigner des 3 autres schémas.

Si l'on se fixe un schéma d'interpolation, on peut étudier l'effet du maillage. C'est ce que montre la figure 26, où 3 maillages (de plus en plus fins de haut en bas) sont testés pour 2 schémas d'interpolation (discrétisation analytique à gauche, interpolation harmonique à droite). On constate bien que les différences entre schémas disparaissent pour des maillages suffisamment fins, comme constaté avec le modèle 1D. C'est seulement dans les maillages les plus fins que plusieurs mailles sont définies dans la largeur d'un canal, permettant ainsi de déterminer une taille précise pour ce dernier. Un maillage plus grossier (ce qui sera fatalement le cas si on veut simuler un lingot à l'échelle industrielle) permettra sans doute de repérer les risques de mésoségrégation, mais pas de capturer finement les phénomènes complexes mis en jeu.



90×90 mesh - analytical discretization



90×90 mesh - harmonic interpolation

C-Co

0.8 0.4 0.2 0 -0.2 -0.4 -0.6 -0.8 -1



150×150 mesh - analytical discretization



150×150 mesh - harmonic interpolation



300×300 mesh - analytical discretization

300×300 mesh - harmonic interpolation

Figure 26 : Cartes de macroségrégation dans la cavité à t = 400 s pour 3 maillages différents et 2 schémas d'interpolation.

Cette sensibilité des mésoségrégations calculées aux effets numériques nous a poussés à proposer avec un certain nombre d'équipes de recherche françaises un benchmark au cours de l'ANR SMACS.

Après avoir comparé nos propres modèles entre eux, nous avons soumis un appel à contribution visant à proposer différents exercices de comparaison afin de vérifier et de valider des modèles mathématiques et des codes numériques relatifs à la solidification des lingots d'alliages métalliques binaires. Deux problèmes ont été envisagés dans un cas de convection naturelle laminaire : convection thermique transitoire pour un métal liquide pur avec un nombre de Prandtl de l'ordre de 100, et un processus de solidification avec surchauffe initiale du liquide ; convection double-diffusive dans une enceinte pour un métal plomb et d'étain, avec un nombre de Prandtl de l'ordre de 100 et un nombre de Lewis de l'ordre de 10 000, afin de simuler des écoulements convectifs thermosolutaux dans la zone liquide lors de la solidification. En parallèle, des expériences de solidification des mêmes alliages ont été menées au SIMAP à Grenoble. Le site de dépôt du benchmark était géré à l'IJL. Il a été ainsi possible d'étalonner les modèles, de confirmer expérimentalement et numériquement l'existence des mésoségrégations (que certains modèles pouvaient ne pas capter).

Ces études plus fondamentales illustrent l'importance du choix des méthodes numériques, notamment dans le cas de phénomènes multi-échelles, où par définition l'ensemble des phénomènes microscopiques ne peuvent être résolus à l'échelle du produit industriel. Elles montrent comme toujours l'importance de corroborer les résultats numériques par des expériences qui se doivent d'être de plus en plus fines pour répondre à la précision de plus en plus grande des modèles.

Ci-après est inséré l'article suivant :

A. Kumar, B. Dussoubs, M. Zaloznik, H. Combeau : Effect of Discretization of Permeability Term and Mesh Size on Macro- and Meso-segregation Predictions, *Journal of Physics D : Applied Physics* 42 (10) (2009), article 105503, DOI: 10.1088/0022-3727/42/10/105503. *13 pages*.

J. Phys. D: Appl. Phys. 42 (2009) 105503 (13pp)

Effect of discretization of permeability term and mesh size on macro- and meso-segregation predictions

Arvind Kumar, Bernard Dussoubs, Miha Založnik and Hervé Combeau¹

Institut Jean Lamour, Département SI2M, CNRS - Nancy-Université - UPV-Metz, Ecole des Mines de Nancy, Parc de Saurupt CS 14234, F-54042 Nancy cedex, France

E-mail: herve.combeau@mines.inpl-nancy.fr

Received 4 November 2008, in final form 26 March 2009 Published 28 April 2009 Online at stacks.iop.org/JPhysD/42/105503

Abstract

The effect of interpolation schemes used for discretization of permeability in numerical simulations on macrosegregation and channel segregation (mesosegregation) during solidification has been studied. The different ways to discretize the permeability term and its effect on the interdendritic velocity are illustrated by a simplified 1D model which solves the Darcy equation for a porous medium. The Darcy equation is solved numerically using the SIMPLE algorithm for the coupled velocity-pressure fields. For this simplified case, an analytical reference solution can also be obtained. In the numerical solution four different interpolation schemes for permeability discretization have been employed, and the results obtained are compared. For coarse mesh, different interpolation schemes produce large differences from the analytical reference solution. We thereafter, present simulation results for solidification of Sn-Pb alloy in a two-dimensional rectangular cavity using different discretization schemes. It is observed that solute-rich liquid flowing towards the bottom of the rectangular cavity in the mushy zone due to thermosolutal convection results in patches of thin structure known as channels. These channels are formed by perturbation by the interdendritic fluid flow in the mushy zone and in some cases by the localized remelting in some portions of the solid/mush interface. The role of discretization schemes and mesh size on the formation of channel segregates and macrosegregation is discussed.

(Some figures in this article are in colour only in the electronic version)

Nomenclature

С	average mass fraction of solute (Pb) (wt%)	
-		

- C_0 initial mass fraction of solute (Pb) in the alloy (wt%)
- c_p specific heat (J kg⁻¹ K⁻¹)
- D solutal diffusion coefficient (m² s⁻¹)
- g_l volume fraction of liquid
- g gravity vector (m s⁻²)
- GM global macrosegregation
- *h* enthalpy $(J kg^{-1})$
- k thermal conductivity ($W m^{-1} K^{-1}$)

binary partition coefficient $k_{\rm p}$ K permeability (m²) L latent heat of fusion $(J kg^{-1})$ l length of the domain (m) liquidus slope (°C wt% $^{-1}$) $m_{\rm L}$ pressure (Pa) р time (s) t Т temperature (°C) superficial average velocity $(m s^{-1})$ \boldsymbol{v} intrinsic velocity of the liquid phase $(m s^{-1})$ v_1 velocity of the isotherm $(m s^{-1})$ v_{T} Vvolume (m³) volume of the computational domain (m³) V_{domain} X, Ycoordinate axes (m)

¹ Author to whom any correspondence should be addressed.

Greek symbols

- $\beta_{\rm T}$ thermal expansion coefficient (°C⁻¹)
- $\beta_{\rm c}$ solutal expansion coefficient (wt%⁻¹)
- λ_2 secondary dendrite arm spacing (m)
- μ dynamic viscosity (kg m⁻¹ s⁻¹)
- ρ mass density (kg m⁻³)

Subscripts

- 0 reference
- 1 liquid
- m melting point for a pure substance
- s solid

1. Introduction

For alloys solidifying with columnar microstructure, a diffuse zone of porous crystalline solid (mushy zone) separates the melt from the fully solidified region, and coupled fluid flow, induced by buoyancy forces, solidification shrinkage, etc, occurs in the mush and the melt. The mushy zone is the source of all important phenomena such as macro- and microsegregation, as-cast mechanical properties and porosity. Macrosegregation in castings refers to variations in the average composition of alloying elements at the scale of casting. Fluid flow in the mushy zone plays an important role in the formation of macrosegregation in the castings by redistributing the segregated solute elements [1-5] and in some cases forms channel segregates in the mushy zone [6-9]. The formation of channel segregates in castings represents a severe form of segregation, also known as mesosegregation, since the composition and crystalline structure of the solid which ultimately forms within the channels differ significantly from those of the nearby solid regions. Mesosegregations in the casting appear as long narrow trails aligned in some preferred direction, with solute concentration greater than that of the surrounding regions. The mesosegregates are formed due to interdendritic flow in the two-phase region (solid/liquid) during the solidification process. The interdendritic fluid flow leads to perturbations of the growing columnar structure. The instability of the growth front leads to further instability of the segregation map leading to the formation of channel The scale of mesosegregation can affect the segregates. homogenization of the ingot and its extent in the casting can severely influence the quality of ingots.

Macrosegregation has been widely studied using multiscale models consisting of macroscopic models based on mixture theory [2] or volume averaging [10], coupled to models of microsegregation [11]. In the volume-averaged formulation, generally, the equations are solved on a representative element volume (REV), small with respect to the extent of the mushy zone, but large compared with the dendrite arm spacing (DAS). The averaging method allows us to use a single set of equations in the whole domain (fully liquid, mushy zone and fully solid). In this representation, the mushy zone is considered as a saturated porous medium with varying permeability and the flow in the mushy zone is governed by the Darcy law. Models relating the permeability to the

liquid fraction, e.g. the Carman–Kozeny model, are generally used to calculate the permeability. The solution procedures of these macroscopic models involve the discretization of the macroscopic conservation equations based most often either on a finite-volume formulation [1-6] or on a finite-element formulation [6, 12-15]. In these formulations, a set of governing equations, characterizing the transport and conservation of mass, energy, momentum and solute in the ingot, is solved at the macroscopic scale, which gives the evolutions in time of different averaged parameters, such as velocity, temperature and solute concentration.

One of the parameters that has an essential effect on macrosegregation profiles is the mush permeability. Permeability in the mushy zone, which for the simplest model is a function of the liquid fraction and of the dendritic arm spacing (DAS), varies over a wide range of magnitude for a variation of liquid fraction from 1 to 0. In the melt, the liquid fraction is equal to one and the permeability is infinite. Accordingly, as solidification completes, liquid fraction and permeability tend towards zero. The dependence of permeability on liquid fraction is highly nonlinear, thus a small variation in the liquid fraction can result in a large variation in permeability which can significantly affect the flow in the mushy zone and hence the segregation pattern. Within a volume-averaged solidification model the permeability is the principal parameter of the Darcy term, which describes the hydrodynamic drag of the porous mush in the averaged momentum balance equation. In the finite-volume formulation the discretization of the momentum balance equation requires an estimation of the volume integral of the Darcy term over the control volume (CV) $\int_V g_1(\mu/K) v \, dV$ by applying some discretization scheme. The way this integration is approximated to get the discretized form of the Darcy term can play an important role in the numerical predictions [16]. The permeability (K) is a function of the liquid fraction (g_1) and is thus known at the CV nodes. When using staggered pressurevelocity grids the Darcy term has to be integrated over the velocity CV using some interpolation of the permeability from the adjacent pressure CVs.

To the best of our knowledge, the effect of the numerical discretization of the Darcy term on the predictions of macroand mesosegregation has not been investigated in the literature. The objective of this paper is to investigate the effect of discretization schemes for the permeability term on predictions of macrosegregation and channel segregates in the mushy region. In this respect, two important aspects of the numerical studies aimed at predicting channel segregates require special attention; (a) does a good resolution for the prediction of channel segregates depend on the discretization of permeability and (b) does this depend on mesh size used in computations. To answer these questions, simulations using different discretization schemes are performed in this study for solidification of an alloy in a side-cooled cavity. Using the Carman-Kozeny relation to express permeability, we have employed different discretizations of the Darcy term: (a) linear interpolation of the permeability between two adjacent cells, (b) harmonic mean of the permeability between two adjacent cells, (c) volume weighted interpolation of the

liquid fraction between two adjacent cells and computation of the permeability with the interpolated value of the liquid fraction and (d) analytical integration of the Darcy term assuming a linear variation of g_1 between the adjacent pressure points. The paper is organized as follows. We first introduce the volume-averaged micro-macroscopic solidification model. Then we present the different integration schemes that we used for the Darcy term. We analyse the accuracy of the different discretization schemes in predicting the interdendritic velocity in the mushy zone by solving the Darcy equation on a simplified 1D problem and comparing the numerical solutions with the analytical solution. This analysis enables us to observe the behaviour of various discretization schemes which will be helpful in analysing results obtained in 2D simulations. Thereafter, we present simulation results for a 2D solidification case and discuss the effects of various discretization schemes and of the mesh size on the prediction of macro- and mesosegregation.

2. Mathematical modelling

The conservation equations for solidification in a 2D rectangular cavity involve the following main assumptions:

- (a) The liquid flow is laminar and Newtonian. The viscosity μ is constant. The solid phase is fixed and non-deformable.
- (b) The solidifying system is considered to be a two-phase system, of either solid or liquid. Gas porosity is neglected.

$$g_s + g_1 = 1.$$
 (1)

(c) The mushy zone is modelled as a porous medium saturated with liquid. The permeability is defined through Carman– Kozeny relation [17]:

$$K = \frac{\lambda_2^2 g_l^3}{180(1-g_l)^2}.$$
 (2)

(d) Solid and liquid mass densities are equal and constant except for the buoyancy term in the momentum conservation equation, where the density of the liquid depends on temperature and solute concentration (Boussinesq approximation):

$$\rho_{\rm l}(T,C_{\rm l}) = \rho_{\rm 0}[1 - \beta_{\rm T}(T - {\rm T}_{\rm 0}) - \beta_{\rm c}(C_{\rm l} - C_{\rm 0})]. \quad (3)$$

(e) Microsegregation obeys the following hypotheses: infinite diffusion in the liquid, zero diffusion in the solid and thermodynamic equilibrium at the solid–liquid interface during solidification. In the case of a closed system, where the average concentration remains constant, these assumptions correspond to the Scheil law. In the case of an open system, a specific treatment has to be done. In this model for each CV, which is considered locally as an open system (i.e. its overall solute content can be modified by macroscopic transport), the average mass fraction of solute in the solid phase can be expressed as

$$\bar{C}_{s} = \frac{1}{g_{s}} \int_{0}^{g_{s}} C_{s}(\alpha) \, d\alpha = \frac{1}{g_{s}} \int_{0}^{g_{s}} C_{s}^{*}(g_{s}) \, dg_{s}, \qquad (4)$$

where C_s is the concentration profile in the solid, C_s^* is the concentration of the solid phase at the solid–liquid interface. In the absence of solid diffusion the profile of the concentration in the solid remains frozen and is given by the interface concentration along the solidification path, C_s^* (g_s). The average solid concentration \bar{C}_s is thus the averaged integral of this concentration profile. During *solidification* the interface composition in the solid phase C_s^* is related to the liquid composition at the interface C_1^* , assuming that the interface is at thermodynamic equilibrium

$$C_{\rm s}^* = k_p C_1^*. {(5)}$$

The average liquid composition C_1 is assumed always to be equal to C_1^* due to infinitely fast diffusion of solute at the microscopic scale

$$C_1 = C_1^*. (6)$$

In the case of *remelting* the interface condition is different [11]. In order to consider remelting we followed the ideas of Rappaz and Voller [11], which were also used by Heinrich and Poirier [18] and Kumar *et al* [19]. Since the concentration profile in the solid remains frozen due to the absence of diffusion, we have to remelt what has been solidified, so the condition is taken from the microsegregation profile in the solid

$$C_{\rm s}^* = C_{\rm s}(\alpha = g_{\rm s}). \tag{7}$$

Thus, in the case of remelting, the condition in equation (7) is applied instead of the equilibrium condition of equation (5). The concentration profile in the solid C_s (α) has to be stored for this purpose.

(f) The phase diagram is linearized (with a constant liquidus slope). Taking into account the infinite diffusion in the liquid phase (equation (6)) the temperature can be thus expressed as

$$T = T_{\rm m} + m_{\rm L} C_1^* = T_{\rm m} + m_{\rm L} C_1.$$
 (8)

(g) The relationship between average enthalpy, temperature and volume fraction of solid, assuming constant and equal c_p for solid and liquid phase, can be expressed as

$$h = g_{s}h_{s} + (1 - g_{s})h_{1} = c_{p}(T - T_{0}) + (1 - g_{s})L.$$
 (9)

The conservation equations for mass, heat and solute are averaged over both liquid and solid phase and are given as follows [4, 6]:

Mass conservation:

Ì

$$\nabla \cdot \boldsymbol{v} = \nabla \cdot (\boldsymbol{g}_1 \boldsymbol{v}_1) = 0. \tag{10}$$

Energy conservation:

$$\rho \frac{\partial h}{\partial t} + \rho c_p v \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T). \tag{11}$$

Solute conservation:

$$\rho \frac{\partial C}{\partial t} + \rho \, \boldsymbol{v} \cdot \nabla C_1 = \nabla \cdot (\rho D \nabla C_1). \tag{12}$$

Due to the small diffusion coefficient D, the diffusion term is often considered negligible in equation (12), which reduces it to

$$\rho \frac{\partial C}{\partial t} + \rho \, \boldsymbol{v} \cdot \nabla C_1 = 0. \tag{13}$$

Momentum conservation for the liquid phase [20]:

$$\rho \frac{\partial \boldsymbol{v}}{\partial t} + \frac{\rho}{g_1} \boldsymbol{v} \cdot (\nabla \boldsymbol{v}) = \mu \nabla^2 \boldsymbol{v} - g_1 \frac{\mu}{K} \boldsymbol{v} + \rho_0 [\beta_{\mathrm{T}} (\mathrm{T} - T_0) + \beta_{\mathrm{c}} (C_1 - C_0)] g_1 \boldsymbol{g} - g_1 \nabla p. \quad (14)$$

The momentum conservation equation is written using the averaging technique presented in [6]. The term $g_1(\mu/K)v$ corresponds to a drag force of the solid skeleton on the interdendritic liquid region. In this work the focus is on the evaluation of this term using different discretization schemes, to be discussed in section 2.1. The governing transport equations have been solved using the finite-volume technique [21] with a staggered grid arrangement. In this formulation, the computational domain is divided into nonoverlapping control volumes. All scalar variables (enthalpy, temperature, pressure, etc) are computed at the centre of the pressure CVs, while a staggered grid is used to determine the components of the velocity at the faces of the pressure CVs. The SIMPLE algorithm [22] is used to treat the pressurevelocity coupling. A specific algorithm, detailed in [4, 6] has been implemented in order to resolve the nonlinearity of the transport equations, and in particular the relationship between temperature and enthalpy. The phase change that is governed by the coupling of heat and mass transfer and thermodynamic equilibria at the microscopic scale is introduced by solving the system of equations (1), (4)–(6) and (8)–(9) for solidification and equations (1), (4) and (6)-(9) for remelting locally in each meshpoint. Given the average enthalpy h and average concentration $C = g_s C_s + g_l C_l$, which are obtained from the macroscopic conservation equations (11) and (13), the solution of the microscopic system gives the temperature T, the phase concentrations \bar{C}_s and C_l , the phase fractions g_s and g_l and the interface concentrations C_s^* . To account for the case of remelting, the concentration profile in the solid phase has to be kept in memory, as already explained (equation (7)). To avoid excessive storage, the profile is stored at increments of $\Delta g_s = 0.01$, which gives sufficient precision [19]. Linear interpolation is used to compute the profile between the stored points during remelting.

2.1. Discretization of the permeability term

In the mushy zone the only significant forces of the momentum balance are the Darcy drag, the pressure gradient and the buoyancy. This reduces the momentum equation (14) to

$$-\frac{\mu}{K}\boldsymbol{v} + \rho_0[\beta_{\rm T}(T - T_0) + \beta_{\rm c}(C_1 - C_0)]\boldsymbol{g} - \nabla \boldsymbol{p} = 0.$$
(15)

A Kumar et al

Due to the strong nonlinear dependence of the permeability K on the liquid fraction g_1 the discretization of the Darcy term is critical for the accuracy of the numerical solution of the flow in the mushy zone. To get the discretized form of this term we have to approximate its integral across the control volume $\int_V (\mu/K) v \, dV$. For the horizontal component of the momentum equation this means integration between the faces 'w' and 'e' of the velocity CV 'P', which corresponds to the adjacent pressure points. This gives $\int_w^e (\mu/K) v_x S \, dx$, where *S* is the cross section of the CV. We point out that in all schemes we approximate the velocity to be constant across the whole velocity CV. Further, we recall that the viscosity μ is assumed to be constant. This means that the integral is evaluated as

$$\int_{w}^{e} (\mu/K) v_{x} S \, \mathrm{d}x = \mu v_{x,P} \, S \int_{w}^{e} \frac{\mathrm{d}x}{K} = \mu v_{x,P} \, S \frac{1}{\bar{K}_{P}}, \qquad (16)$$

where \bar{K}_P is the effective discretized value of the permeability in CV 'P' that is evaluated using an approximation of the integral $\int_w^e dx/K$ by some interpolation of *K* between the faces 'w' and 'e', where it is known. We now introduce four different discretization schemes for the approximation of this integral using different ways of interpolating *K* between the two adjacent pressure points.

- (a) Linear interpolation of the permeability between two adjacent cells.
- (b) Harmonic mean of the permeability between two adjacent cells.
- (c) Volume weighted interpolation of the liquid fraction between two adjacent cells and computation of the permeability with the interpolated value of the liquid fraction.
- (d) Analytical integration of the Darcy term assuming a linear variation of g_l between the adjacent pressure points.

$$\frac{1}{\bar{K}_{\rm P}} = \int_{w}^{e} \frac{\mathrm{d}x}{K(g_1(x))}.$$
(17)

The dependence of the permeability on the liquid fraction $K(g_1)$ is given by equation (2) and the variation of the liquid fraction $g_1(x)$ is assumed to be linear between the adjacent pressure points 'w' and 'e'.

2.2. Simplified 1D problem

To evaluate the accuracy of the proposed discretization schemes for permeability we consider a problem of 1D flow in the mushy region by solving the Darcy equation. We solve the problem numerically using these schemes and compare the results with the analytical solution of this problem. In the mushy zone the inertial and viscous terms of the momentum equation (14) can be neglected. Considering a horizontal orientation also omits the buoyancy term. We obtain the Darcy momentum equation.

$$\frac{\mu}{K}v = -\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}x}.$$
(18)

There are two unknowns in equation (18), velocity (v) and pressure (p). The second equation necessary to close the



Figure 1. Schematic representation of the 1D problem. Scheil solidification path is used for variation of liquid fraction (g_1) along the length.

system is the continuity equation:

$$\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}x} = 0. \tag{19}$$

This typically shows the fluid flow in a 1D mushy region driven by the imposed pressure gradients. For the simplified 1D problem, described by equations (18) and (19), an analytical solution, detailed below, can also be obtained. Combining equations (18) and (19), we obtain

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x}\left(\frac{K}{\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}x}\right) = 0. \tag{20}$$

Equation (19) depicts that velocity is constant across the 1D domain. As a consequence, given an inlet pressure (p_{in}) and an outlet pressure (p_{out}) in a domain of length l, and considering a constant dynamic viscosity μ , the pressure profile can be expressed as

$$p = A\mu \int_0^x \frac{\mathrm{d}x}{K(x)} + p_{\mathrm{in}},\qquad(21a)$$

where *A* is a constant of integration given as

$$A = (p_{\text{out}} - p_{\text{in}}) \left(\mu \int_0^l \frac{\mathrm{d}x}{K(x)} \right)^{-1}.$$
 (21*b*)

The permeability, as defined in equation (2) depends on the secondary DAS (λ_2) (considered as constant in this work) and on the liquid fraction (g_1). Given a profile of liquid fraction in the domain, it is possible to determine the permeability as a function of x, and then pressure using equation (21*a*). It may be noted that expressions in equation (21*a*) can be calculated analytically. Once the pressure is determined the velocity can be calculated using equation (18). The same problem is also solved numerically using the discretization schemes described in section 2.1. In the numerical solution the same methodology is followed as explained for the full model.

3. Results and discussion

3.1. Simplified 1D problem

Figure 1 shows a schematic for the 1D problem considered and the parameters used for the computation are given in table 1. The problem consists of flow in a 1D domain driven by imposed pressure gradient between the inlet and the outlet. In this problem we solve only the fluid flow and the problem is not coupled to macrosegregation. The domain depicts the

Table 1. Thermophysical	data and pa	arameters u	used in t	he 1I
computation.				

Parameter	Scheil solidification path
Phase diagram	
Initial mass fraction (wt%)	5.0
Melting temperature (°C)	232.0
Liquidus slope (°C wt% ⁻¹)	-1.286
Partition ratio	6.56×10^{-2}
Thermophysical data	
Molecular viscosity (kg m ^{-1} s ^{-1})	10^{-3}
Secondary DAS (μ m)	50.0
Computational parameters	
Length of the domain (m)	0.1
Liquid fraction at inlet	0.99
Liquid fraction at outlet	0.6
Pressure drop in the domain (Pa)	-2000
Temperature gradient (K m ⁻¹)	-39.4

mushy region with liquid fraction varying from 0.99 to 0.6 on a distance of 10 cm. This range of liquid fraction in the mushy domain is chosen so that the magnitude of the interdendritic fluid velocity in the domain is significant. As macrosegregation is neglected, the Scheil law can be used to relate the average solute concentration in the liquid to the liquid fraction as $C_1 = C_0 g_1^{(kp-1)}$. Then, substituting from equation (8) for C_1 in the Scheil law, one can get the liquid fraction as a function of temperature, which can be simplified to $g_1 = [(T - T_m)/(m_L C_0)]^{(1/(kp-1))}$. The variation of the liquid fraction in the domain is deduced assuming a constant composition ($C_0 = 5 \text{ wt\%Pb}$) and a linear variation of temperature with a given inlet temperature and temperature gradient (see figure 1), $T(x) = 225.57 \circ C + \nabla T \cdot x$, where $\nabla T = -39.4 \,^{\circ}\mathrm{C}\,\mathrm{m}^{-1}$. A small temperature gradient across the domain is chosen to have a wider mushy zone so that we can emphasize the effect of discretization schemes for permeability on the interdendritic flow in the mushy zone. The imposed pressure drop (Δp) is chosen such that fluid velocities are of the order typically encountered in a liquid metal flow ($\sim 10^{-3} \,\mathrm{m \, s^{-1}}$).

Figure 2 shows the variation of permeability in the computational domain. As seen from this figure, near the inlet within a small length of 5 mm where liquid fraction is close to 1, permeability varies very rapidly. The rapid variation of permeability for small variation in liquid fraction illustrates that appropriate discretization of permeability is important to predict the interdendritic velocity in the mushy region accurately. To illustrate the effect of discretization



Figure 2. Variation of permeability and liquid fraction along the computational domain. Scheil solidification path is used for the variation of liquid fraction along the computational domain. Permeability values for various discretization schemes considering two mesh cells in the domain are shown at the mid-length of the domain: \bullet , harmonic mean; \blacktriangle , analytical integration; *, interpolated liquid fraction; \circ , linear mean.



Figure 3. Variation of deviation of velocity obtained using various discretization schemes from the exact solution with number of nodes (1D case). The magnitude of the velocity is obtained using exact solution is 1.2414 mm s^{-1} .

schemes on permeability, we have also shown in figure 2 the values of permeability obtained using various discretization schemes at the mid-width of the domain. Harmonic mean interpolation underestimates the permeability; however, other schemes overestimate it.

In figure 3 we compare the computed velocity for the 1D problem using various interpolation schemes, discussed in section 2.1 and the grid convergence of the solution. The figure shows the deviation from the exact solution for velocity where the exact solution corresponds to the evaluation of the pressure field in equation (21a) by numerical integration using the trapezoidal method and then the calculation of velocity using equation (18). As seen from figure 3, the linear interpolation leads to the largest deviation from the exact solution. Harmonic mean and calculation of permeability with interpolated liquid fraction show less deviation from the exact values. The harmonic mean solution underestimates the predictions whereas solution using interpolated liquid fraction overestimates it. This is intuitive if one observes values of



Figure 4. Schematic representation of the computational domain for solidification in a 2D side-cooled rectangular cavity.

permeability obtained using various schemes as marked in figure 2. The higher permeability obtained using linear mean and interpolated liquid fraction results in higher velocity. On the other hand lower permeability obtained by harmonic mean interpolation results in lower velocity. Comparing results in figure 3, linear interpolation of permeability seems to be the worst discretization scheme and schemes using either the analytical integration or interpolated liquid fraction produce results closer to the exact solution. However, when the number of nodes is increased, the discretization error of all solutions decreases to reasonable values, as they all converge to the exact solution.

Although with a large number of mesh cells in the mushy region all schemes produce similar results, use of very fine mesh in practical simulation scenario, e.g. in industrial ingots, is not practiced because of the computation cost involved. For industrial ingots, the number of cells in the mushy region is generally ~ 10 , for which there could be large differences in the solutions obtained using different discretization schemes (see figure 3), and therefore appropriate care has to be taken for discretization of the permeability when not using very fine mesh.

3.2. Solidification in a two-dimensional rectangular cavity

After illustrating the effect of discretization schemes for permeability in a 1D simplified problem, we performed simulations for solidification of a Sn-5 wt%Pb binary alloy in a 2D rectangular cavity to ascertain such an effect on the solidification behaviour and on the resulting macro- and mesosegregation. The problem corresponds to the well-known experiment by Hebditch and Hunt [23]. The cavity is cooled from the left side and the remaining three sides are thermally insulated (see figure 4). A constant heat transfer coefficient and a constant coolant temperature are used at the cooled side [6]. The thermophysical property data, boundary conditions and parameters used in the computations are given in table 2 and are identical to the ones used in [6]. For the alloy considered in the simulations (Sn-5 wt%Pb) the thermal and solutal buoyancy are cooperating as the heavier solute (Pb) is rejected into the liquid upon solidification. This thermosolutal configuration tends to create a downward flow in the melt at the cooled side on account of density variations across the phase changing front; henceforth we term this direction of

Table	2.	Thermo	ophysical	data	and	parameters	used	in	the	2D
comp	uta	tion.								

Parameter	Sn-5 wt%Pb
Phase diagram	
Initial mass fraction (wt%Pb)	5.0
Melting temperature (°C)	232.0
Eutectic temperature (°C)	183.0
Liquidus slope (°C wt% $^{-1}$)	-1.286
Eutectic mass fraction (wt %Pb)	38.1
Thermophysical data	
Specific heat $(J kg^{-1} K^{-1})$	260.0
Thermal conductivity ($W m^{-1} K^{-1}$)	55.0
Latent heat of fusion $(J kg^{-1})$	61 000
Reference mass density $(kg m^{-3})$	7000.0
Reference temperature for mass density (°C)	226.0
Thermal expansion coefficient ($^{\circ}C^{-1}$)	6.0×10^{-5}
Solutal expansion coefficient (wt $\%^{-1}$)	-5.3×10^{-3}
Molecular viscosity (kg m ^{-1} s ^{-1})	10^{-3}
Secondary DAS (µm)	100.0
Computational parameters	
Initial temperature (°C)	226.0
Heat transfer coefficient (W $m^{-2} s^{-1}$)	300.0
External temperature ($^{\circ}C$)	25.0
Dimension of the cavity (m) $(X \times Y)$	0.1×0.06
Number of nodes $(X \times Y)$ directions	60×60

the flow circulation 'counter-clockwise'. The computations reported are performed with different interpolation schemes for discretization of permeability and the number of nodes in the computational domain.

3.3. Macro- and mesosegregation: effect of discretization schemes

Figure 5 shows segregation maps in the cavity obtained with different discretization schemes and on a regular 60×60 mesh. For all segregation maps (figures 5(a)-(d)), it is observed that the rejected solute-rich liquid flowing towards the bottom of the rectangular cavity in the mushy zone by the counter-clockwise thermosolutal convection results in patches of thin structure in the mushy zone. These patches in the solute field are known as channel segregates which are a severe form of segregation on an intermediate scale (also referred to as mesosegregation). These channels are formed by perturbation in the mushy zone by the interdendritic fluid flow and in some cases by the localized remelting in some portions of the mush/melt interface. The segregated channels in the bottom of the cavity cover approximately two-thirds of the ingot length. These channel segregates are similar to those observed by Fredriksson and Nilsson for a Sn-10 wt%Pb [24] where they occurred from instabilities in the mushy zone, when the velocity of the interdendritic fluid is larger than the speed of the isotherms. It may be noted that the above segregation maps are at 400 s after which the nature of channel segregates does not change.

As observed in the 1D results (figure 3), in 2D simulation also, results obtained with the linear interpolation scheme (figure 6(d)) are the farthest from the result obtained using the analytical integration scheme. When using linear interpolation of permeability, one can note that (1) the number of channels has decreased from 10 to 8, (2) the nature of these channels

is completely different compared with the solution using other three discretization schemes and (3) the macrosegregation map is also different which has also an effect on the intensity of positive segregation towards the right wall of the cavity. Results using the other schemes (analytical integration scheme, discretization using interpolated liquid fraction and harmonic mean scheme) remain in the same range. However, among the three discretization schemes, prediction of channel segregates using analytical integration scheme and interpolated liquid fraction (figures 5(a) and (c)) are closer to each other and channel segregates obtained using harmonic mean scheme (figure 5(b)) are slightly different and are comparatively We can see that with the analytical less pronounced. integration scheme, the extent of some of the channels is more penetrated into the mushy region compared with the harmonic interpolation. A possible reason for this could be the observation made in 1D results regarding the interdendritic velocity (see figure 3). Observing results in figure 3, it seems that more penetrated channels are the direct consequence of the relatively higher velocity obtained with the analytical integration scheme, compared with the harmonic interpolation (see figure 3). For the present 2D simulations, the magnitude of velocity obtained in the channel will be shown subsequently. According to the result shown in figure 3, with interpolated liquid fraction the velocity is higher than that with the harmonic mean scheme, which results in more remelting in the mushy region and thus more intense channel segregates with this scheme. We can also relate this observation with the Flemings criterion for remelting [25], which states that remelting occurs when $\boldsymbol{v} \cdot \nabla T > \boldsymbol{v}_{\mathrm{T}} \cdot \nabla T$, where \boldsymbol{v} is the interdendritic velocity, $v_{\rm T}$ is the velocity of the isotherms and ∇T is the temperature gradient. From figure 5 we note that different discretization of permeabilities in the mushy region results in different predictions of channel segregates.

Figure 6 shows maps of liquid fraction distribution in the cavity for the different discretization schemes. As seen from this figure, the liquid fraction contours are penetrating into the mushy region, which is caused by instability in the interdendritic fluid flow, resulting in channel segregates as observed in figure 5. We can see that with analytical discretization (figure 5(a)) the extent of this penetration in the mushy zone is greater compared with the harmonic interpolation (figure 6(b)) which results in more penetrating channels (see figure 5(a)). This can be again explained by referring to the results shown in figure 3 where higher velocity was obtained with the analytical discretization compared with the harmonic interpolation. Similar observation can be made for results with interpolated liquid fraction and linear interpolation. The higher interdendritic velocity results in more remelting in the mushy region and thus more intense channel segregates with these schemes.

Figure 7(a) shows variations of liquid fraction and velocity with time at some selected location in one channel. We plot these variations for two schemes, namely, interpolated liquid fraction where the channels are more penetrating and with harmonic interpolation where the channels are less penetrating. With discretization using interpolated liquid fraction, this location experiences remelting whereas no



Figure 5. Macrosegregation map in the solidifying cavity at t = 400 s (60 × 60 mesh): (*a*) analytical discretization of permeability; (*b*) harmonic interpolation of permeability; (*c*) permeability evaluation using interpolated liquid fraction; (*d*) linear interpolation of permeability.



Figure 6. Liquid fraction map in the solidifying cavity at t = 400 s (60 × 60 mesh): (*a*) analytical discretization of permeability; (*b*) harmonic interpolation of permeability; (*c*) permeability evaluation using interpolated liquid fraction; (*d*) linear interpolation of permeability.

remelting is observed with harmonic mean interpolation. There are also large differences in liquid fraction values for the two schemes. We also observe that discretization using interpolated liquid fraction leads to higher velocity at this location in the channel compared with the harmonic mean interpolation. The higher velocity results in remelting at this location. The nature of velocity obtained using different discretization schemes in the 2D simulation is in line with the similar observation made in 1D result (see figure 3). In figure 7(b) we plot variation of liquid fraction with time at two selected locations; one inside the channel and the other outside the channel for the two schemes. No remelting occurs at the



Figure 7. (*a*) Variation of liquid fraction and velocity with time at a selected location inside the channel segregate $(60 \times 60 \text{ mesh})$; (*b*) Variation of liquid fraction with time at a selected location inside and outside the channel segregate.

location outside the channel, however, at the location inside the channel remelting occurs with interpolated liquid fraction scheme. As mentioned earlier, this is due to the higher velocity obtained using this scheme. In the present simulations, the Flemings criterion for remelting [25] is satisfied for one case where higher velocity is obtained (i.e. interpolated liquid fraction scheme) and not for the other case.

Table 3 shows the global macrosegregation obtained in the computational domain using various discretization schemes. The global macrosegregation (GM) can be perceived as a measure of the net macrosegregation of the alloying element in the casting and is defined as [26].

$$GM = \frac{1}{C_0} \left[\frac{1}{V_{\text{domain}}} \int_{V_{\text{domain}}} \int_{V_{\text{domain}}} (C - C_0)^2 \, \mathrm{d}V \right]^{1/2}.$$
 (22)

With harmonic interpolation the global macrosegregation is least compared with other schemes as the lower velocity obtained using this scheme leads to less intense mesosegregation. With linear interpolation the global macrosegregation is much larger compared with other schemes because of much larger velocity obtained using this scheme.

The role of discretization schemes on channel segregates in the mushy zone is found to be significant. Like 1D results which showed variation in interdendritic velocity obtained using different schemes, 2D simulations also confirm that different discretization schemes give rise to different velocities in the mushy region and hence different nature of segregated channels. For coarser mesh (say 60×60 nodes) discretization of permeability using interpolated liquid fraction or analytical integration seems to produce similar results. However, results with harmonic mean interpolation differ from these two and linear interpolation gives completely different results.

3.4. Mesosegregation: effect of mesh size

For 60×60 mesh we saw that the prediction of channel segregates using linear interpolation is far different from the analytical integration and interpolated liquid fraction scheme. For that, the linear interpolation scheme is completely discarded for discretizing the permeability term. Predictions using interpolated liquid fraction and analytical integration schemes are closer to each other: however, predictions using harmonic mean are again slightly different from prediction using these two. To study the sensitivity of such differences with mesh size used in computations, we performed simulations with finer mesh for two schemes, namely, analytical integration and harmonic interpolation. Figure 8 shows that with the refinement of grids the difference between the predictions using these two schemes vanishes, a similar observation is made in 1D result (see figure 3). Therefore, with finer grids any discretization scheme produces similar results. Figure 9 shows the variation of global macrosegregation (GM) in the cavity for various mesh sizes using these two discretization schemes. With harmonic interpolation the global macrosegregation is relatively lower for all mesh sizes which is in accordance to the lower velocity obtained using this scheme and thus less intense mesosegregation. However, the difference between these schemes decreases with increase in number of nodes, which is again in line with the similar observation made in 1D results.

We note several important observations in predictions with finer grids using any scheme. The dependence on mesh size is far greater than that on discretization schemes (for instance see results with 90×90 mesh, 150×150 mesh and 300×300 mesh in figure 8). A very fine mesh shows a smaller number of channels which are merged with the horizontal channel at the bottom. For fine mesh, mesosegregation is more continuous in the bottom region (i.e. channels connected to the bottom channel). The number and orientation of channels change with the mesh size as these channels are the result of instability occurring in the mushy zone due to variation of local flow conditions. For the same reason, the extent of global macrosegregation increases with number of nodes used for computation as nature of mesosegregates changes with mesh size (see figure 8). The other observation is that with fine mesh, there is disappearance of channels from the middle of the cavity; however, some new channels form towards the bottom left corner of the cavity.

Table 3. Global macrosegregation for different discretization schemes for 60×60 mesh in the cavity.

	Discretization schemes for permeability			
	Analytical integration	Harmonic interpolation	Interpolated liquid fraction	Linear interpolation
Global macrosegregation (%)	34	33	35	42



90×90 mesh - analytical discretization

90×90 mesh - harmonic interpolation





Figure 8. Macrosegregation map in the solidifying cavity at t = 400 s for different mesh sizes.

To illustrate the nature of mesosegregates and fluid flow around it for different grids, we show in figure 10 the flow pattern in the cavity by streamlines. In contrast to channel segregates obtained using finer grids $(150 \times 150 \text{ mesh})$ and 300×300 mesh), the relatively coarse grid solution $(90 \times 90 \text{ mesh})$ shows that the local fluid flow crosses the channel. In finer grid solution (150×150 mesh and 300×300 mesh), most of the flow enters the channel from above and due to the smaller flow resistance follows the channel, which drives its growth. As seen in figure 9, with finer grids the channels merge with the horizontal channel at the bottom. This is due to a new organization of local fluid flow with a preferential path along the channel (see figure 10) which drives its growth and merges the channels to the bottom channel making them more continuous in the bottom region. For the same new organization of fluid flow along some preferential

path, channels from the middle of the cavity disappear and some new channels form towards the lower left corner of the cavity. This can be clearly seen in figure 10 (for 300×300 mesh) where the local fluid flow in the middle of the cavity is across the cavity, however, in the channels and lower left corner it has a preferential path.

To further illustrate the above observation, we show in figure 11 zoomed portions of channel segregates obtained using various mesh sizes. It may be noted that the location of these zoomed portions in the cavity are not the same as the position of channels obtained using various nodes are different. As explained earlier, with relatively coarse grid most of the flow crosses the channel trying to tilt the channel towards bottom. On the other hand, with finer grids most of the flow is within the channel which drives its growth. This explains the different inclinations of channels obtained using various grid


Figure 9. Global macrosegregation in the cavity for different numbers of nodes in the computational domain.

sizes. With finer grids we observe greater number of points within a channel which contributes to the observation of new phenomena such as continuity of the channels in the bottom region, i.e. more penetration of these channels into the melt and their merging with the channel at the bottom. This also results in more global segregation (GM) as shown in figure 9. With finer grids since the channels have been captured with more than one point along their width, we start to resolve the flow within the channel. Also, this allows the determination of the channel width. In this study, for the first time, the size of the channel has been determined. The width of the channel for various mesh sizes, namely, 90×90 mesh, 150×150 mesh and 300×300 mesh, are $1685 \,\mu$ m, $1550 \,\mu$ m and $1000 \,\mu$ m, respectively.

We see that the difference between various discretization schemes reduces with increase in number of nodes; however, the mesh size used in computation plays a significant role on the nature and orientation of channel segregates. We have to emphasize that although relatively coarse meshes are able to predict the occurrence of mesosegregates, only very fine meshes give a level of detail that enables us to resolve the flow along the channels. The fine-mesh solutions enable new observations. They reveal a completely different reorganization of the flow that preferentially takes the lowresistance passages along the channels in the channel zone.

As we have seen, coarse meshes can also predict the channel segregates; however, the choice of mesh size depends on the computational power available. Moreover, for large ingot, very fine meshes are not computationally viable. For simulating solidification of an industrial ingot, discretization of permeability using interpolated liquid fraction or analytical integration is advisable as these schemes produce similar results. However, the question of how many nodes are required to predict the channel segregates accurately may need comparison of predicted results with those obtained from controlled experiments. Such comparison with experiments will serve as model validation. This work, as well as the literature, shows that even model verification, which is a purely numerical exercise, is still lacking for solidification problems [27, 28]. Towards this effort, a reference solution for the problem of melting of pure tin in a square cavity



300×300 mesh

Figure 10. Flow field at t = 400 s (shown by streamlines) for different mesh sizes in the cavity. The scale shows the concentration distribution.

heated from the side was undertaken [27]. Extensive numerical computations were performed and data values and plots were provided for use as a reference solution. The present problem, of macro- and mesosegregation prediction during alloy solidification, is a much more complex problem, for which no benchmark solution exists. It additionally includes the problem of predominantly advective solute transport, porous media flow and a tight coupling via phase change. For such problems Založnik *et al* [28] proposed a gradual methodology of numerical verification, where the model is decomposed into several physical 'subproblems' in order to more easily approach a benchmark solution of the full solidification problem.

4. Conclusions

Four different ways of finite-volume discretization of the permeability term in the average momentum balance equation and its effects on resulting macro- and mesosegregation have been investigated: (a) linear interpolation of the permeability



300×300 mesh

Figure 11. Zoomed view of flow field around selected channel segregates for different mesh sizes (harmonic interpolation scheme, t = 400 s). Fluid flow is shown by streamlines and concentration distribution by the scale. The dimension of the zoomed area is $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$. The locations ($X \times Y$) of the zoomed areas in the cavity are $90 \times 90 \text{ mesh}$ —28.5 mm $\times 11.5 \text{ mm}$; $150 \times 150 \text{ mesh}$ —32.5 mm $\times 14.5 \text{ mm}$; $300 \times 300 \text{ mesh}$ —46.5 mm $\times 19.0 \text{ mm}$.

between two adjacent cells, (b) harmonic mean of the permeability between two adjacent cells, (c) volume weighted interpolation of the liquid fraction between two adjacent cells and computation of the permeability with the interpolated value of the liquid fraction and (d) analytical integration of the Darcy term assuming a linear variation of liquid fraction between the adjacent pressure points. In general, we have noticed little sensitivity of the predicted macrosegregation to the various schemes; however, their influence on the prediction of mesosegregations (channel segregates) in the mushy zone is found to be significant when using coarse computational grids, customary in the simulation of industrial castings.

In the case of a 1D flow in a porous mushy zone we observed that the harmonic mean conduces to an underestimation of the velocity while the others overestimate the velocity. When the mesh is refined, all the schemes converge towards the exact solution, the linear interpolation scheme being by far the least accurate. The application to a 2D problem shows a similar behaviour of the results as observed in 1D. Results with the interpolated liquid fraction scheme and the analytical integration scheme are similar. For the simulation with relatively coarser mesh, say for industrial ingots, discretization of permeability using the interpolated liquid fraction scheme and the analytical integration scheme is advisable.

It has also been found that mesh refinement is crucial for capturing the complex phenomena occurring in the case of formation of channel segregates. An important conclusion is that a coarse mesh can capture rather well the risk of forming mesosegregations, but only a fine mesh is able to resolve the complex phenomena involved in more detail. With coarse meshes the spatial discretization of the channel encompasses only one CV in the channel width, which gives inadequate accuracy of the solution of the transport within the channel. Only by using very fine meshes, we were able to attain a resolution of up to three CVs in the channel width, and start to resolve the flow in the channel in detail. With a very fine mesh, channels have been captured with more than one point along their width, allowing the determination of the channel width. In this study, for the first time, the size of the channel has been determined. Nevertheless, these predictions need comparison with the results obtained from controlled experiments. Of course, even such a mesh resolution is far from being sufficient to hope to attain a very accurate numerical solution with respect to the formation of channel segregates even on a small casting. For large industrial castings where the use of such extremely fine meshes is computationally certainly not viable, we can, however, still detect the risk of forming mesosegregations if a sufficiently fine grid is used. If more detail is required, methods such as adaptive remeshing, multigrids or parallel computing should be well adopted to capture mesosegregation efficiently.

Acknowledgments

This work has been performed in the framework of the project 'SMACS' No BLAN07-2_193017 financed by ANR.

References

- Prakash C and Voller V R 1989 On the Numerical solution of continuum mixture equations describing binary solid–liquid phase change *Numer. Heat Transfer* B 15 171–89
- [2] Bennon W D and Incropera F P 1987 A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid–liquid phase change systems: I. Model formulation *Int. J. Heat Mass Transfer* **30** 2161–70
- [3] Bennon W D and Incropera F P 1988 Numerical analysis of binary solid–liquid phase change using a continuum model *Numer. Heat Transfer* 13 277–96
- [4] Vannier I, Combeau H and Lesoult G 1993 Numerical model for prediction of the final segregation pattern of bearing steel ingots *Mater. Sci. Eng.* A 173 317–21
- [5] Chakraborty S and Dutta P 2003 Three dimensional double-diffusive convection and macrosegregation during non-equilibrium solidification of binary mixtures *Int. J. Heat Mass Transfer* 46 2115–34
- [6] Ahmad N, Combeau H, Desbiolles J-L, Jalanti T, Lesoult G, Rappaz J, Rappaz M and Stomp C 1998 Numerical simulation of macrosegregation: a comparison between finite volume method and finite element method predictions and a confrontation with experiments *Metall. Mater. Trans.* A 29 617–30
- [7] Jain J, Kumar A and Dutta P 2007 Numerical studies on channel formation and growth during solidification: effect of process parameters *J. Heat Transfer-Trans. ASME* 129 548–58
- [8] Jain J, Kumar A and Dutta P 2007 Role of plume convection and remelting on the mushy layer structure during directional solidification *J. Phys. D: Appl. Phys.* 40 1150–60
- [9] Combeau H, Založnik M, Hans S and Richy P E 2009 Prediction of macrosegregation in steel ingots: influence of the motion and the morphology of equiaxed grains *Metall. Mater. Trans.* B at press doi:10.1007/s11663-008-9178-y
- [10] Ni J and Beckermann C 1991 A volume-averaged two-phase model for transport phenomena during solidification *Metall. Mater. Trans.* B 22 349–61
- [11] Rappaz M and Voller V R 1990 Modeling of micro-macrosegregation in solidification processes *Metall*. *Trans.* A 21 749–53
- [12] Nandapurkar P, Poirier D R, Heinrich J C and Felicelli S 1989 Thermosolutal convection during dendritic solidification of

alloys: I. Linear stability analysis *Metall. Trans.* B **20** 711–21

- [13] Mo A, Rusten T, Thevik H J, Henriksen B R and Jensen E K 1997 Modelling of surface segregation development during DC casting of rolling slab ingots *Proc. 126th Annual TMS Meeting (Light Metals) (Orlando, FL)* (Warrendale, PA: TMS) pp 667–74
- Poirier D R, Nandapurkar P and Ganesan S 1991 Energy and solute conservation equations for dendritic solidification *Metall. Trans.* B 22 889–900
- [15] Gouttebroze S, Bellet M and Combeau H 2007 3D macrosegregation simulation with anisotropic remeshing *C. R. Mec.* **335** 269–79
- [16] Katz R F and Worster M G 2008 Simulation of directional solidification, thermochemical convection, and chimney formation in a Hele–Shaw cell J. Comput. Phys. 227 9823–40
- [17] Scheidegger A E 1974 The Physics of Flow Through Porous Media 3rd edn (Toronto, Canada: University of Toronto Press)
- [18] Heinrich J C and Poirier D R 2004 Convection modeling in directional solidification C. R. Mec. 332 429–45
- [19] Kumar A, Walker M J, Sundarraj S and Dutta P 2007 Remelting of solid and its effect on macrosegregation during solidification *Numer. Heat Transfer* A 51 59–83
- [20] Ganesan S and Poirier D R 1990 Conservation of mass and momentum for the flow of interdendritic liquid during solidification *Metall. Trans.* B 21 173–81
- [21] Patankar S V 1980 Numerical Heat Transfer and Fluid Flow (Washington, DC: Hemisphere)
- [22] van Doormaal J P and Raithby G D 1984 Enhancements of the SIMPLE method for predicting incompressible fluid flows *Numer. Heat Transfer* 7 147–63
- [23] Hebditch D and Hunt J 1974 Observation of ingot macrosegregation on model systems *Metall. Trans.* 5 1557–64
- [24] Fredriksson H and Nilsson S O 1978 On the formation of macrosegregations in ingots *Metall. Trans.* B 9 111–20
- [25] Mehrabian R, Keane M and Flemings M C 1970 Interdendritic fluid flow and macrosegregation: influence of gravity *Metall. Trans.* 1 1209–20
- [26] Schneider M and Beckermann C 1995 Formation of macrosegregation by multicomponent thermosolutal convection during the solidification of steel *Metall. Metall. Trans.* A 26 2373–88
- [27] Hannoun N, Alexiades V and Mai T Z 2005 A reference solution for phase change with convection Int. J. Numer. Methods Fluids 48 1283–308
- [28] Založnik M, Xin S and Šarler B 2008 Verification of a numerical model of macrosegregation in direct chill casting *Int. J. Numer. Methods Heat and Fluid Flow* 18 308–24

D. Conclusion – Synthèse de mes activités de recherche

Les études présentées dans les parties A, B et C précédentes, si elles recouvrent des domaines de recherche variés, s'inscrivent toutes dans un ensemble portant sur la simulation numérique des procédés à haute température. Elles partagent un certain nombre de caractéristiques communes :

- Elles concernent des procédés d'élaboration à haute température, du revêtement de surface au matériau massif,
- Elles sont en lien avec les matériaux, céramiques ou métalliques ; ces deux caractéristiques les placent à l'interface entre les sections 10 et 15 du CNRS, et 33 et 62 du CNU,
- Elles impliquent une large part de simulation numérique, utilisée comme un outil et non un objet de recherche, i.e. des résultats scientifiques sont obtenus au moyen de simulations à façon, et on n'applique pas un modèle à un domaine scientifique. Ceci explique le type de revues dans lesquelles je publie,
- Elles se nourrissent, autant que faire se peut, de résultats expérimentaux pour les corroborer,
- Elles correspondent toutes à une problématique industrielle forte, et visent à comprendre, améliorer et optimiser un procédé industriel, tout en générant des résultats valorisables tant scientifiquement qu'industriellement (d'où le sous-titre, mêlant deux idées apparemment contradictoires). Les intérêts de chaque partie ne me paraissent pas du tout opposés, mais bien au contraire complémentaires,
- Elles ne peuvent jamais être résolues par l'usage d'un outil « presse-bouton ». Au contraire, qu'il s'agisse de codes « maison » ou de codes clé en main (libres ou commerciaux), il est nécessaire de largement les adapter pour refléter autant que possible la complexité des procédés mis en jeu.

D'ailleurs nos partenaires industriels ne s'y trompent pas : nous établissons en général des relations de long terme avec eux, ce qui montre que nous sommes loin d'être de simples prestataires pour une étude destinée à répondre à une problématique précise. Le meilleur exemple de ce mode de fonctionnement est le Club SOLAR que j'ai déjà évoqué dans la partie C.

Mes activités de recherche et développement, depuis le DEA, m'ont permis de monter en compétences et de gagner en autonomie. À partir d'une formation initiale dans le domaine des procédés et des matériaux, j'ai acquis lors de mon stage de DEA la compétence numérique que j'ai toujours développée par la suite. La thèse m'a permis de porter un projet de recherche et de développer un code de calcul basé sur un logiciel commercial et généraliste. J'ai également commencé à co-encadrer des étudiants de DEA/DESS. J'ai pu aussi, via le monitorat et un poste d'ATER, me confronter à l'enseignement.

Dans le cadre de mon stage post-doctoral, j'ai montré une capacité d'adaptation en changeant de thématique de recherche, en acquérant des compétences aussi bien en génie des procédés qu'en simulation, puisque cette fois j'ai développé un code « maison » adapté à un réacteur industriel. Cette collaboration avec le secteur aval m'a également permis de me confronter aux besoins de l'entreprise dans le cadre d'une collaboration, et à la nécessité de faire coexister l'intérêt scientifique (progrès en termes de recherche, publications, etc.) et l'intérêt industriel (meilleure connaissance de l'outil industriel, gains de production, etc.).

En basculant sur un poste d'ingénieur de recherche en calcul scientifique « double compétence », je n'ai jamais abandonné les aspects recherche. Bien au contraire, les logiciels développés au laboratoire sont destinés à un usage précis et s'appuient sur une recherche en matériaux et procédés fine. Le Club SOLAR, où depuis 20 ans cohabitent et se nourrissent de leurs compétences respectives les industriels et les chercheurs / ingénieurs comme moi, en est le parfait exemple.

Aujourd'hui, je porte certaines thématiques en forte autonomie, par exemple dans le cadre de la simulation du procédé ESR (en co-encadrant les 3 dernières thèses sur le sujet).

Par ailleurs, les différents projets de recherche que j'ai menés ont fait ressortir plusieurs éléments clés :

- Mon intérêt pour développer des codes de calcul appliqués à des problématiques industrielles. Ceci permet de confronter le logiciel à des problèmes en « grandeur réelle », dans des réacteurs souvent mal instrumentés et avec des grandeurs difficilement mesurables. Pouvoir expliquer scientifiquement ce qui est depuis longtemps constaté par les opérateurs est pour moi une grande fierté. Cela démontre aussi tout l'intérêt de l'activité de recherche et développement dans le domaine des procédés industriels, qui, en métallurgie, sont loin d'avoir livré tous leurs secrets,
- L'importance de corroborer les résultats numériques par des expériences. Un résultat de calcul ne vaut que s'il est vérifié par une mesure ! Il ne faut pas opposer le calcul et l'expérience, mais bien au contraire les associer. Si nos simulations sont de plus en plus fines et sont effectuées sur des machines de plus en plus puissantes, c'est parce que nous disposons d'instruments de mesure de plus en plus fins et précis,
- La nécessité de progresser dans la simulation des phénomènes à différentes échelles : le comportement à l'échelle macroscopique, celle du procédé, est la résultante de ceux aux échelles plus basses. Il faut obligatoirement modéliser ces derniers (par exemple, tenir compte du comportement des boulets individuels dans un four LC composé de milliers de ceux-ci à des stades de transformation plus ou moins avancés). Le développement d'un modèle externe est une solution, mais l'appel à de multiples instances de celui-ci dans le modèle macroscopique n'est pas possible pour conserver des temps de calcul raisonnables. À contrario, considérer un seul comportement « moyen » aux petites échelles n'est pas assez précis à l'échelle macroscopique. Il existe encore de grandes voies de progrès dans le cadre de ce couplage,
- Dans le même cadre, les phénomènes aléatoires associés à la turbulence ne sont pas encore bien intégrés dans les modèles macroscopiques. Le traitement de particules ou de grains solides, ainsi que de gouttes liquides ou bulles gazeuses dans un écoulement métallurgique, est toujours imparfaitement décrit, d'autant que nous tâchons de représenter en deux dimensions un phénomène essentiellement tridimensionnel. Là encore, des progrès peuvent être attendus pour mieux simuler ces phénomènes.

Sur la base de ces constats, je proposerai dans le prochain chapitre quelques pistes à court et moyen terme qui permettront de bâtir mon projet de recherche.

E. Principaux projets, développements de codes et de méthodes numériques

NB : certaines des actions ci-dessous ont été présentées plus en détails dans le chapitre « Bilan de mes activités de recherche » et sont rappelées pour mémoire. Je mentionne succinctement d'autres projets dans lesquels j'ai été impliqué.

- Développement d'un modèle de solidification d'une particule cylindrique posée sur un substrat lors de la projection par plasma thermique (1995).
- Développement de la simulation 3D du procédé de projection plasma atmosphérique, avec prise en compte des particules et détermination de leur répartition sur un substrat placé dans l'écoulement (1995-1998).
- Développement d'un logiciel pour la modélisation du procédé d'hydrofluoration de l'oxyde d'uranium en tétrafluorure d'uranium dans un four à lit coulant, en collaboration avec la société COMURHEX Malvési (désormais FRAMATOME) dans le cadre de la thèse de J. Jourde (1999-2002;2010-2011).
- Optimisation, maintenance, test et industrialisation de logiciels simulant les procédés de refusion à l'arc sous vide ou sous laitier électroconducteur (2000-aujourd'hui).
- Simulation du fonctionnement d'une thermobalance à l'aide de Fluent dans le cadre de la thèse d'A. Genin (2003).
- Couplage d'un code de suivi lagrangien de particules et d'un code de simulation de la croissance de cristaux équiaxes au cours du procédé de coulée semi-continue de l'aluminium dans le cadre de la thèse de N. Houti (2003).
- Développement de fonctions utilisateurs (UDF) pour modéliser le procédé de refusion par bombardement électronique à l'aide du logiciel Fluent (2004-2006).
- Implantation de lois de transformation de phase dans le logiciel de mécanique du solide Zebulon lors de la trempe et du revenu des aciers (2003-2010).
- Passage du code Solid (pré-processeur et post-processeur graphiques, ainsi que partie exécutable) de HP-UX à Linux (2005).
- Développement de fonctions utilisateurs (UDF) pour modéliser et simuler le comportement des inclusions solides dans les réacteurs métallurgiques, notamment lors de la coulée en poche de l'aluminium (2008-2012). Co-signataire du dépôt logiciel auprès de l'APP (Autorité de Protection des Programmes).
- Mise au point d'un benchmark numérique et expérimental afin de valider et compléter les modèles utilisés dans la simulation numérique de la solidification d'alliages métalliques (2008-2012).
- Mise au point d'un code "boîte à outils" pour la simulation tridimensionnelle des procédés d'élaboration et de solidification (2009-2012).
- Parallélisation d'un code fortran 90 de calcul trajectographique dans le traitement des alliages métalliques (2011-2012).
- Développement d'un code fortran pour la simulation du procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur : prise en compte du passage de courant dans la lingotière (en collaboration avec Aubert et Duval) (2011-2014).
- Développement d'un code fortran pour la simulation du procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur : prise en compte des gouttes de métal et couplage avec la fusion de l'électrode (en collaboration avec Aubert et Duval) (2017-2021).

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

PROJET DE RECHERCHE

Il n'y avait plus autour de lui qu'un vide éclatant, une réverbération éblouissante annonciatrice de cet épiphénomène auquel on donne le nom de « réalité ».

Philip K. Dick, Le Dieu venu du Centaure, 1965

NB : Les références citées ci-dessous sont spécifiques à la partie projet et regroupées à la fin de celle-ci.

Mes activités actuelles d'ingénieur de recherche double compétence *science des matériaux / procédés* et *simulation numérique / développement de code* s'organisent autour d'une partie recherche et d'une partie ingénierie (dans le cadre des développements de codes et méthodes liés à mon cœur de métier, mais également dans la partie administration de la recherche et portage de projets structurants). Mon activité future, une fois l'HDR obtenue, maintiendra cet équilibre, mais les proportions consacrées à chaque facette seront amenées à évoluer. Si aujourd'hui 30% de mon activité correspond au soutien aux équipes « Procédés d'élaboration » et « Solidification » du département SI2M de l'IJL, je compte réorienter, en relation avec les chercheurs de ces équipes, mes missions afin que la recherche y prenne une place plus importante (a minima 50%).

L'obtention de l'HDR me permettra d'exercer une réelle autonomie pour porter certains thèmes de recherche plus « amont » dans les thématiques numériques avant leur application « aval » dans les activités scientifiques du laboratoire. Par ailleurs, les réflexions en cours au sein du Département SI2M, en lien avec les départs de chercheurs et enseignants-chercheurs prévus au début du prochain projet quinquennal, visent à créer un axe transversal dédié à la modélisation des procédés. Des besoins en compétences liées aux procédés d'élaboration et à leur modélisation se font jour, et mon profil ainsi que les projets de recherche que je compte mener sont en complète adéquation avec ces besoins.

Mes activités de recherche continueront donc à porter sur la simulation numérique des procédés, notamment dans le domaine de la métallurgie d'élaboration et de la solidification des alliages. J'envisage de développer des études portant sur 3 thématiques principales :

- La simulation fine des procédés d'élaboration des alliages par refusion VAR ou ESR à l'échelle industrielle,
- Le développement de modèles de changements d'échelle / de dimension dans ces procédés,
- La simulation du mouvement de particules (solides, liquides, gaz) dans un écoulement turbulent.

Je terminerai par quelques perspectives plus lointaines, qui restent encore à mûrir, mais pourraient ouvrir un champ d'exploration très vaste.

A. Simulation fine des procédés d'élaboration des alliages par ESR (ou VAR)

Les études déjà menées dans le cadre des thèses sur le procédé ESR ont levé un certain nombre de verrous. Elles ont ainsi permis d'intégrer dans le modèle de simulation numérique SOLECS des spécificités que partagent peu voire pas d'autres logiciels dans le monde :

- Prise en compte du passage du courant dans la lingotière [1],
- Prise en compte de l'influence des gouttes sur l'hydrodynamique et la thermique du laitier et du lingot [2],
- Couplage entre la fusion de l'électrode et la croissance du lingot [1,2].

Ces avancées sont significatives, mais peuvent être encore affinées. Par ailleurs, d'autres ajouts sont à prévoir :

- La prise en compte du passage du courant dans la lingotière (qui peut avoir un effet important sur la qualité de peau du lingot) est très gourmande en ressources de calcul, ce qui rend difficilement exploitable cette version du logiciel à l'échelle industrielle. Un travail doit être mené à la fois pour améliorer les algorithmes (méthodes de résolution de type gradients conjugués ou GMRES), optimiser les calculs (méthodes d'interpolation de la conductivité électrique à l'interface laitier/lingotière, amortissement des variations brutales lors d'un changement de milieu), mais on pourrait également réfléchir à un autre traitement du problème physique (résoudre une variable différente ? ne pas travailler avec la méthode des volumes finis pour cette dernière ?). Cette piste peut faire l'objet d'une (partie d'une) nouvelle thèse, ou être le sujet d'un stage de master pour un étudiant de formation mathématique ou numérique.
- La prise en compte de l'influence des gouttes sur l'hydrodynamique et la thermique du laitier et du lingot est une avancée mais l'étude doit être poursuivie. Afin de rendre le modèle 2D diphasique du bain de laitier plus précis et prédictif, la description du comportement du film liquide devra être complétée, notamment en prenant en compte l'effet de la tension interfaciale. On pourra également enrichir le système de génération de gouttes en estimant plus précisément la valeur de l'épaisseur critique en fonction des propriétés physico-chimiques et de la température. Le profil de répartition des gouttes dans le lingot, leur profondeur d'impact, feront l'objet d'une étude paramétrique, potentiellement renforcée par un modèle dédié (en 2 voire 3 dimensions). À titre illustratif, la figure 27 montre une simulation 3D de la formation de gouttes et de leur évolution au cours du temps jusqu'au détachement. On voit bien la complexité des phénomènes mis en jeu, qu'il faudra « traduire » au mieux dans un modèle 2D.



Figure 27 : Formation au cours du temps de gouttelettes au bas de l'électrode lors de la refusion ESR. La couleur correspond à l'intensité de la densité de courant électrique [4].

Une autre piste d'étude concerne la caractérisation et la modélisation de la pénétration des gouttes dans le puits liquide, puis de leur dissolution et de leur mélangeage dans ce dernier, puisqu'aujourd'hui notre modèle considère que les particules cessent d'interagir à une certaine profondeur mais sans changer de forme, de taille ou de vitesse au cours de leur trajet. Il faudra étudier (aussi bien sur le plan numérique qu'expérimentalement) les effets thermo-hydrodynamiques de l'impact de gouttes dans un bain liquide de même nature. Une modification du modèle de turbulence k-ε de SOLECS, et la prise en compte de la turbulence induite par les gouttes dans le puits liquide devront être envisagés. La figure 28 qui présente la pénétration et la fragmentation de gouttes d'un liquide dans un autre, montre quelques phénomènes mis en jeu. Des lois de comportement pourraient être dégagées par la réalisation d'expériences (via des fluides modèles aux propriétés similaires à celles du métal liquide) et / ou des simulations 3D VOF.



Figure 28 : Expériences sur la dynamique des fluides et la fragmentation d'un mélange métal-silice.
(a) Croissance avec entraînement turbulent pour un nombre de Reynolds de 2.10³.
(b) Fragmentation d'un volume de solution aqueuse de sel de NaI (colorée en bleu) libérée dans de l'huile de silicone, pour un nombre de Weber de 3.10³ et un nombre de Reynolds de 2.10⁴.
(c) Gros plans correspondant aux carrés de (b). Des instabilités de Rayleigh – Taylor à petite échelle sont

c) Gros plans correspondant aux carres de (b). Des instabilites de Rayleigh – Taylor à petite échelle s apparentes dans le premier [5].

- À plus long terme, il pourrait être envisagé d'intégrer dans le modèle SOLECS une description des phénomènes électrochimiques et des transferts de matière entre le métal liquide et le laitier.
- Le couplage entre le modèle de fusion de l'électrode et celui de croissance du lingot permet aujourd'hui de déterminer, entre autres résultats, une vitesse de fusion de l'électrode. Cette valeur n'est pas celle utilisée dans le modèle de croissance du lingot, qui est doté en entrée d'un profil de vitesse de fusion donné par l'utilisateur (puissance électrique apportée et vitesse de fusion de l'électrode au cours du temps). Les deux valeurs de vitesse de fusion sont en bon accord mais pas nécessairement identiques. On constate en général une divergence grandissante au cours de la fusion.

En effet, dans la pratique industrielle de la fusion ESR, on procède régulièrement à vitesse de fusion constante. On constate expérimentalement que pour cela, il faut en fin de fusion réduire la puissance fournie au système, comme l'illustre la figure 29.



Figure 29 : Évolution de la vitesse de fusion, du courant, de la résistance et de la puissance dans une fusion ESR pilotée à vitesse de fusion constante.

Or si nous utilisons notre modèle couplé avec un tel profil de puissance, la vitesse de fusion déterminée par le modèle de fusion de l'électrode va suivre le profil de puissance, et décroître en fin de fusion, s'éloignant ainsi de la vitesse de fusion mesurée.

Plusieurs pistes peuvent expliquer cet écart :

- Le laitier est susceptible d'évoluer en composition au cours de la fusion, ce qui n'est pas pris en compte dans le modèle. Une (faible) partie se solidifie en paroi, et certaines observations montrent qu'une structure colonnaire peut naitre dans le solide. Comme le métal, le laitier peut donc voir sa composition varier du fait d'un rejet de soluté, ce qui pourrait avoir pour effet de modifier sa conductivité électrique. Par ailleurs, une fraction de laitier est consommée pour former la peau de laitier autour du lingot, conduisant à une variation de sa hauteur et possiblement à une variation de la profondeur d'immersion de l'électrode dans ce laitier.
- La conductivité thermique de l'électrode peut varier avec la température, ce que nous ne prenons peut-être pas correctement en compte dans le modèle actuel.
- Le modèle de fusion de l'électrode est monodimensionnel. Un passage en 2D de ce code permettra de tenir compte des échanges thermiques entre l'électrode et le gaz ambiant (dont on calculerait précisément la température), ce qui peut générer dans l'électrode des gradients radiaux de température, et réduire la puissance nécessaire pour fondre le bas de celle-ci, affectant donc la vitesse de fusion. On pourrait également de cette façon envisager de modéliser l'évolution de la pointe de l'électrode en fusion qu'on suppose plane alors que des observations et simulations 3D montrent qu'elle peut prendre des formes convexes ou concaves selon les paramètres opératoires (conduisant là aussi à des variations de surface de contact et d'immersion de l'électrode dans le laitier, et donc affectant potentiellement la vitesse de fusion). Ces études pourront être menées en poursuivant nos collaborations avec A. Kharicha au Département métallurgie de la Montanuniversität Leoben (Autriche).
- Par un couplage entre les deux modèles ci-dessus, il s'agirait d'utiliser pour la croissance du lingot la vitesse de fusion donnée par le modèle de l'électrode, elle-même conditionnée par les résultats du modèle du lingot lui servant de conditions aux limites en entrée. Ainsi, une seule valeur piloterait l'ensemble du procédé et évoluerait librement comme un résultat du modèle global. Ce point est d'ailleurs commun aux procédés VAR et ESR.
- L'immersion de l'électrode au sein du laitier est fixe pour toute la durée de la fusion dans le code actuel. On peut imaginer modifier cette immersion au cours du temps, une fois le couplage réalisé, afin de l'asservir à la vitesse de fusion (on se rapproche ainsi de la pratique

industrielle qui consiste à piloter l'opération par la tension ou par la résistance du laitier qui est liée à la distance électrode – puits liquide).

- En termes de solidification, un modèle plus complet de la formation et de l'éventuelle refusion de la peau de laitier pourrait être développé et implémenté dans SOLECS.
- Enfin, un modèle tridimensionnel du procédé VAR est en cours de développement au laboratoire, en collaboration avec la startup O2M Solutions, basé sur le logiciel de CFD OpenFOAM dans lequel les spécificités de nos propres logiciels sont intégrées [3]. En effet, les modèles bidimensionnels ne suffisent pas à capturer finement certains phénomènes qui se développent selon 3 dimensions (mouvements de l'arc dans le cas du VAR, formation des mésoségrégations par exemple). Cette démarche est à poursuivre, voire appliquer également au modèle ESR, selon deux axes de travail : d'une part, implémenter toute la connaissance dont nous disposons dans nos codes 2D, dans la version 3D, ce qui n'a rien de trivial. D'autre part, tirer de l'exploitation du code 3D des améliorations que l'on pourrait reporter dans le code 2D, ou définir en parallèle de la version 3D une version 2D équivalente, mais dont le temps de calcul serait compatible avec une exploitation industrielle des logiciels. Nos partenaires industriels au sein du Club Solar sont d'ailleurs favorables à cette démarche. Le code tridimensionnel restera un outil de laboratoire, mais si des modèles microscopiques et/ou mésoscopiques doivent être développés et couplés avec les modèles macroscopiques 3D, il faudra bien conserver des temps de calcul raisonnables, même pour un code de recherche. Nous ne pourrons donc pas faire abstraction de l'amélioration algorithmique/numérique des codes que nous développons.
- Sur le plan expérimental, il serait nécessaire d'effectuer des mesures de température au sein d'une électrode de dimension industrielle afin de valider le modèle thermique. La réalisation de refusions d'essai complémentaires permettrait de conforter les conclusions. L'ensemble de ces études continuera à être mené dans le cadre du Club Solar qui nous associe à nos partenaires industriels, cette structure ayant prouvé son intérêt, son efficacité et sa souplesse. Tous les membres actuels tiennent à la faire perdurer dans des conditions relativement proches ou identiques à ce qu'elles sont aujourd'hui. Je dois prendre la suite d'Alain Jardy en tant que responsable du Club après son départ (à l'horizon 2023).

B. Développement de modèles de changements d'échelle / de dimension

La simulation des procédés à l'échelle macroscopique implique la prise en compte d'effets à différentes échelles, souvent microscopiques. Ainsi, la ségrégation des éléments mesurée à l'échelle des lingots métalliques dépend directement du comportement de chaque grain à l'échelle microscopique, puis des interactions entre un certain nombre de grains à l'échelle mésoscopique. Si des modèles peuvent rendre compte du comportement d'un grain ou de plusieurs grains en interaction, il est impossible de simuler le lingot sur la base d'un modèle de grains, car la puissance de calcul nécessaire n'existe tout simplement pas !

Il est donc nécessaire de développer des lois de changement d'échelle qui soient suffisamment précises pour rendre compte des phénomènes aux sous-échelles dans un modèle macroscopique, mais suffisamment peu gourmandes en temps de calcul afin de permettre une modélisation à l'échelle du procédé dans un temps restant raisonnable (un bon ordre de grandeur étant que le temps de la simulation soit identique à celui de l'élaboration de l'alliage, i.e. quelques heures).

Une initiative mondiale a d'ailleurs vu le jour pour développer une stratégie multi-échelles de simulation des matériaux, l'ICME (Integrated Computational Materials Engineering) [6,7].

Les approches de type prise de moyenne volumique permettent d'incorporer les résultats à des échelles inférieures dans un modèle macroscopique via des termes sources ajoutés aux équations moyennées. Ces termes peuvent certes être complexes, mais restent basés sur des simplifications [8].

Dans le cadre des changements de dimension, on va en général partir d'un modèle 3D, gourmand en temps de calcul et souvent utilisé sur un domaine de calcul réduit par rapport à l'échelle du procédé complet, et tirer des lois constitutives à incorporer dans le modèle 2D. Là aussi, des simplifications sont nécessaires. Ces réductions (de taille de population prise en compte / de dimension) vont non seulement conduire à des approximations dans le modèle du procédé, mais vont également lui faire perdre en généralité. On peut parfaitement imaginer qu'une loi qui représente bien le phénomène microscopique dans des conditions opératoires et pour une composition donnée ne fonctionne plus pour d'autres compositions sous d'autres conditions opératoires !

Comment dans ces conditions obtenir des lois à la fois précises et générales, sans être trop complexes en terme d'implémentation et de temps de calcul ? On peut envisager plusieurs scenarii :

- Ne plus se baser sur des lois moyennées, mais tenir compte de fluctuations autour de ces moyennes, par exemple en déterminant la densité de probabilité d'une variable d'avoir une valeur donnée : ainsi le même calcul macroscopique effectué plusieurs fois dans les mêmes conditions ne se baserait plus forcément sur le même résultat microscopique,
- Rendre plus généralistes les modèles en se basant sur la fouille de données appliquée à de grands jeux de résultats obtenus à l'échelle microscopique. Ceci permettrait d'ajouter aux lois d'échelles la composante d'effet de composition et des conditions opératoires, mais au prix de quelle complexification ?
- Envisager d'opérer les calculs différemment afin qu'un modèle microscopique puisse s'exécuter un grand nombre de fois dans un modèle macroscopique sans grever le temps de calcul : par exemple imaginer des calculs hybrides où n instances du modèle microscopique seraient exécutées sur des cœurs de processeurs graphiques (GPU), pendant que le modèle macroscopique les appelant fonctionnerait sur processeur classique (CPU), au sein d'un code potentiellement parallélisé. Cela revient à écrire des programmes avec des paradigmes totalement différents de ceux que nous pratiquons aujourd'hui.

C. Simulation du mouvement des grains / gouttes dans un écoulement turbulent

Un certain nombre de projets dans lesquels je me suis impliqué font intervenir la simulation du mouvement de grains (ou de gouttes) dans un écoulement turbulent gazeux ou liquide (potentiellement poreux) : c'est le cas dans la projection thermique, dans les procédés VAR et ESR, dans la solidification des alliages. Ce cas peut aussi se présenter dans les réactions gazsolide.

A priori, ce problème est bien connu et se simule classiquement avec des hypothèses simplificatrices (cf. [9,10] en particulier) :

- On considère une particule sphérique et on résout sa trajectoire avec une méthode de type lagrangien (bilan de forces sur celle-ci en intégrant gravité, traînée, portance, masse ajoutée, etc.),
- Ceci nécessite de déterminer un coefficient de trainée en fonction du nombre de Reynolds associé à la particule. Ce dernier fait intervenir entre autres la vitesse du fluide à l'endroit où la particule se trouve et le diamètre de celle-ci (ainsi que la viscosité du fluide),
- On peut alors adapter le coefficient de traînée en fonction du diamètre de la particule (fixe, ou évoluant avec le temps), de sa forme (sa traînée change pour tenir compte du fait qu'elle ne demeure pas sphérique), de la turbulence du fluide (plusieurs particules lâchées en un même point dans les mêmes conditions initiales « voient » localement une vitesse fluide à laquelle se superpose une composante aléatoire et peuvent ainsi acquérir des trajectoires différentes). La prise en compte d'un milieu poreux nécessite d'adapter la viscosité du fluide équivalent,
- En calculant les trajectoires de nombreuses particules on peut déterminer à une certaine distance du point d'émission une distribution de ces dernières, ou calculer une trajectoire moyenne pour une particule « représentative », etc.

Ce type de modélisation donne certes des résultats satisfaisants, mais ne permet pas de prendre en compte certains phénomènes, et on pourrait imaginer des pistes d'amélioration :

 La turbulence du fluide est classiquement simulée par des modèles à 2 équations, notamment le modèle k-ε. On sait que ce modèle est valide pour une turbulence établie, ce qui est rarement le cas dans les écoulements de métal liquide. Il faudrait a minima ajouter une modélisation à bas nombre de Reynolds, voire envisager des modèles différents (k-ω plus adapté au faibles nombre de Reynolds, SST – pour Shear Stress Transport – qui combine k-ω et k-ε selon la zone de l'écoulement, voire modèles plus complexes) [11,12],

- La modélisation d'un groupe de particules fait classiquement l'hypothèse d'absence d'interactions entre celles-ci. Toutefois, dans certains cas, on ne peut plus les ignorer : lors de la sédimentation de grains équiaxes en solidification, ou en cas de précipitation, agglomération, coalescence de particules dans des écoulements métalliques. Des traitements spécifiques sont alors nécessaires [13,14], comme modéliser un groupe de grains de grande taille mais simplifier l'influence du fluide les environnant dans une approche par la méthode des éléments discrets (DEM), méthode récemment développée à l'IJL [15],
- Dans le cas où les particules peuvent agir en retour sur le fluide, une approche lagrangienne n'est plus possible. On doit passer à un modèle à deux fluides, dans une approche Euler-Euler : la phase dispersée (voire plusieurs si on a des raisons de considérer que les particules forment différentes populations) et la phase continue qui la / les porte sont traitées comme des fluides. Le modèle complet nécessite la résolution de deux (ou plus) couples d'équations de Navier-Stokes et deux (ou plus) équations de continuité. Cette méthode est précise mais coûteuse en temps de calcul, surtout à l'échelle d'un réacteur industriel et / ou si on multiplie les phases.

D. À moyen terme...

Dans ce qui précède, je n'ai abordé que les méthodes de résolution « directes », qui partent d'un alliage aux propriétés bien définies pour aller vers le matériau élaboré avec une certaine histoire thermique et des conditions de solidification qui lui confèrent ses propriétés d'usage. Mais l'utilisateur de code, qui connait les propriétés d'usage qu'il souhaite, aimerait plutôt connaître le matériau à refondre et la voie d'élaboration à choisir [16] ! Pour lui répondre aujourd'hui, nous avons à disposition les connaissances scientifiques qui peuvent nous conduire à sérier des catégories de « candidats » avec les bonnes propriétés, et l'essai-erreur numérique, qui nous permet de trouver, parmi un certain nombre de voies possibles, lesquelles sont les plus prometteuses et méritent des essais expérimentaux. La simulation inverse, qui partirait du résultat pour aller vers la donnée, est une voie extrêmement prometteuse. Si une telle approche est encore loin d'être au point aujourd'hui, la fouille de données et l'intelligence artificielle, qui permettent de cribler un ensemble énorme de résultats dont nous disposons (numériques et / ou expérimentaux) sont sans doute une voie d'avenir à explorer. J'ai d'ailleurs co-organisé avec E. Gaudry (désormais Directrice du mésocentre EXPLOR) une journée sur cette thématique en 2019 pour présenter certaines méthodes aux chercheurs, ingénieurs et doctorants du laboratoire. Par ailleurs, c'est entre autres à mon initiative que le rapport de prospective de la section 15 du Comité National du CNRS, dans laquelle je suis élu, a introduit en conclusion la nécessité de faire appel aux outils de l'intelligence artificielle.

Il est toutefois peu probable que nous abandonnions nos modèles et méthodes de travail pour passer à des outils qui ne se baseraient que sur les données disponibles pour établir des modèles, sans tenir compte des contraintes physiques ! En revanche, l'intelligence artificielle (on devrait surtout parler d'apprentissage automatique) peut être associée à la simulation numérique « classique », par exemple sous forme d'émulateurs de paramétrisation, pour élaborer des modèles hybrides.

Ceci permettrait une nouvelle approche dans le cadre des changements d'échelle que j'aborde au chapitre B ci-dessus : dans un domaine à l'échelle macroscopique doté d'un maillage trop grossier pour résoudre tous les phénomènes aux échelles inférieures, les données nécessaires au modèle au plus haut niveau sont issues d'une base de données générées par des modèles à plus faible résolution. Des grandeurs sont « résolues » sur le maillage principal (vitesse, température, pression, composition, etc.) et on leur associe des sous-modèles qui représentent statistiquement l'effet de processus d'échelles plus petites que la taille de maille (turbulence, ségrégation, cinétique chimique, etc.). Interviennent à ce niveau des techniques de « Machine Learning » (ML), par exemple des réseaux de neurones profonds.

Plusieurs approches sont envisageables :

- Établir des modèles aux échelles les plus basses, où on peut se permettre un maillage très fin, puis rendre celui-ci plus grossier et comparer les résultats dans les deux cas. On sait alors déterminer ce qui a été « perdu » avec le passage à un maillage grossier. En entraînant un modèle sur de nombreux cas de ce type, on peut tenter de lui faire traiter le cas inverse : quel résultat sur un maillage fin conduirait à ce que j'obtiens sur le maillage grossier ?
- Développer par la même approche de nouveaux schémas numériques qui diffuseraient moins et permettraient de retenir l'effet des structures fines sur un maillage grossier,

Travailler à l'optimisation du pas de temps, par exemple en améliorant la correction de pression lors de la résolution des équations de Navier-Stockes afin que les itérations ne soient pas trop nombreuses : le réseau de neurones peut apprendre à fournir une solution initiale suffisamment proche de la valeur finale pour qu'on n'ait pas besoin d'itérer, ou très peu. Ceci peut aussi s'appliquer à des modèles sous-jacents comme des modèles d'équilibre chimique, de solidification, etc. qui nécessitent une résolution avec un sous-pas de temps.

La figure 30 [17] illustre un exemple de ce type d'approche : il s'agit de déterminer de nouveaux alliages à haute entropie (HEA) dont la résistance mécanique serait la plus forte possible, et la composition homogène. Un algorithme de type génétique est utilisé en fonction d'un certain nombre de critères :

- La CSSR (Contribution de la Solution Solide au Renforcement), en ordonnée à gauche,
- La masse volumique, en abscisse.

Il peut être important d'augmenter la résistance mécanique spécifique, i.e. le rapport CSSR / masse volumique. Les alliages doivent donc se trouver le plus à gauche possible, et le plus haut possible sur la carte. Mais d'autres critères existent : si pour des applications comme l'aéronautique, une masse volumique plus faible est un bon critère, cette dernière peut être un frein à l'incorporation d'éléments denses comme les réfractaires. Il faut donc trouver un compromis.

Une fois qu'on a joué sur ces deux critères, le travail n'est pas fini car le fait de créer des alliages contenant les mêmes éléments qu'un HEA ne fait pas forcément de l'alliage obtenu un HEA lui-même. Et quand bien même, il faudrait que ce dernier soit aussi homogène que possible. Un autre critère (P_{IF}) est donc défini (échelle de couleur à droite) : il caractérise la probabilité qu'un alliage ainsi défini soit un HEA de constitution monophasée. Les meilleurs candidats précédents sont donc ceux donc la couleur est la plus claire sur la carte...



Figure 30 : Résultats de l'optimisation obtenue pour définir des HEA : la contribution de la solution solide (CSSR) est tracée en fonction de la masse volumique ; en couleur est symbolisé le critère P_{IF}. Les histogrammes présentent la répartition des alliages optimaux selon les trois objectifs, suivant l'axe auquel ils sont adossés (de gauche à droite : CSSR, masse volumique, critère PIF). À chaque barre correspond un nombre d'alliages [17].

Dans toutes ces démarches, il faut bien tenir compte des contraintes liées à la physique et à la conservation des extensités, ce qui est un problème ouvert à ce jour.

Ces approches bénéficient aujourd'hui d'un soutien fort au niveau de l'État, et notamment du CNRS, par exemple dans le cadre de son défi « Nouveaux Matériaux » visant à soutenir des projets de développement de nouveaux matériaux dans une démarche descendante « définition des propriétés visées - conception du matériau – élaboration – validation des propriétés ciblées – modélisation, optimisation et contrôle ». Parmi les démarches envisagées, on notera celles mettant en œuvre des méthodes innovantes de conception : concepts issus de la fouille de texte et de données (TDM) ou de l'intelligence artificielle, optimisation mathématique et numérique, etc.

Il faut souligner également que dans le cadre de l'appel à projet PEPR (Programmes et Équipements Prioritaires de Recherche exploratoire), lancé en mai 2021, le CNRS a ouvert un volet Matériaux comportant des aspects facilitation et aide au franchissement de pas vers l'IA. Un des projets retenus s'appelle DIADEME (Dispositifs Intégrés pour l'Accélération du DÉploiement de Matériaux Émergents). Il est porté côté CNRS par Mario Maglione, dont j'ai été collègue au Comité National du CNRS en section 15. Il vise à accélérer la conception et l'arrivée sur le marché de matériaux plus performants, durables et issus de matières premières non critiques et non toxiques. Il combine de façon intégrée modélisation, simulation numérique, méthodologies associées à l'intelligence artificielle, technologies de synthèse / criblage et caractérisation à haut débit pour identifier des matériaux candidats en réponse à des spécifications données. Sur un plan numérique, il nécessite des outils numériques de modélisation multi-échelle, de fouille de données et d'apprentissage supervisé. Des outils d'IA spécifiques devront être développés pour améliorer l'exploitation des données expérimentales aussi bien que simulées. Il fera également appel à des outils de simulation multiéchelles des matériaux, de l'ab initio à l'échelle mésoscopique, qui devront être interopérables entre eux. Je souhaite m'impliquer dans ce projet et lancer des études sur ces thématiques, mon positionnement transversal me rendant à même de les mener / faire mener. Des collaborations avec des chercheurs de laboratoires déjà engagés dans ces démarches seront nécessaires (C. Goyhenex à l'IPCMS Strasbourg, F. Tancret à l'Institut des Matériaux Jean Rouxel de Nantes entre autres).

E. Références du projet de recherche

- [1] M. Hugo : Modélisation de la Refusion ESR d'Aciers Spéciaux et Superalliages Base Nickel, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 25 juin 2014.
- [2] J. Chaulet, Modélisation du Procédé de Refusion sous Laitier Electroconducteur : Représentation des transferts énergétiques métal-laitier, Thèse de Doctorat de l'Université de Lorraine, 11 mai 2021.
- [3] A. Matveichev, A. Jardy : Modélisation tridimensionnelle du procédé de refusion à l'arc sous vide, Journée *La Métallurgie, quel avenir* !, avril 2019, Nancy, France (hal-02401016).
- [4] H.Shi, M. Tu, Q. Chen, H. Shen : Insight into droplet formation in electroslag remelting process by numerical simulation, International Journal of Heat and Mass Transfer, 158, 119713 (2020)
- [5] R. Deguen, M. Landeau, P. Olson : Turbulent metal-silicate mixing, fragmentation, and equilibration in magma oceans, *Earth and Planetary Science Letters*, *391*, *274-287* (2014).
- [6] Committee on Integrated Computational Materials Engineering, National Materials Advisory Board, Division on Engineering and Physical Sciences, National Research Council : Integrated Computational Materials Engineering: A Transformational Discipline for Improved Competitiveness and National Security, National Academies Press. p. 132. ISBN 9780309178211 (2008).
- [7] J.H. Panchal, S.R. Kalidindi, D.L. McDowell : Key Computational Modeling Issues in Integrated Computational Materials Engineering", *Computer-Aided Design.* 45 (1), pp 4–25. doi:10.1016/j.cad.2012.06.006 (2013).
- [8] M. Torabi Rad, M. Založnik, H. Combeau, C. Beckermann : Upscaling Mesoscopic Simulation Results to Develop Constitutive Relations for Macroscopic Modeling of Equiaxed Dendritic Solidification, *Materialia 5, 100231* (2019).
- [9] B. Dussoubs, A. Vardelle, G. Mariaux, N.J. Themelis, P. Fauchais : Modeling of Plasma Spraying of Two Powders, *Journal of Thermal Spray Technology 10 (1), 105-110* (2001).
- [10] J. Chaulet, A. Kharicha, S. Charmond, B. Dussoubs, S. Hans, M. Wu, A. Ludwig, A. Jardy : A 2D Multiphase Model of Drop Behavior during Electroslag Remelting, *Metals*, 10, 490 ; https://doi.org/10.3390/met10040490 (2020).
- [11] F.R. Menter : Zonal Two Equation k/omega, Turbulence Models for Aerodynamic Flows, AIAA Journal: 1993–2906. doi:10.2514/6.1993-2906 (1993).
- [12] F.R. Menter : Two-Equation Eddy-Viscosity Turbulence Models for Engineering Applications, *AIAA Journal. 32 (8): 1598–1605, doi:10.2514/3.12149* (1994).
- [13] G.A. Bird : Molecular Gas Dynamics and the Direct Simulation of Gas Flows, *Oxford Science Publications*, 1976.

- [14] R. Clift, J.R. Grace, M.E. Weber, Bubbles, Drops and Particles, Academic Press, 1978.
- [15] A. Olmedilla, M. Založnik, T. Messmer, B. Rouat, H. Combeau : Packing Dynamics of Spherical and Nonconvex Grains Sedimenting at Low Stokes Number, *Phys. Rev. E 99, 012907* (2019).
- [16] G.B. Olson : Designing a New Material World, *Science. 288 (5468): 993–998. doi:10.1126/science.288.5468.993* (2000).
- [17] E. Menou : Conception d'alliages par optimisation combinatoire multiobjectifs : thermodynamique prédictive, fouille de données, algorithmes génétiques et analyse décisionnelle, Thèse de Doctorat de l'Université de Nantes, 19 octobre 2016.

PIÈCES JOINTES

- Autorisation d'inscription à l'HDR de l'Université de Lorraine



Direction de la Recherche et de la Valorisation

Sous-Direction de l'Administration de la Recherche

91 avenue de la Libération BP 50454 54 001 NANCY Cedex

Personne chargée du dossier : Isabelle VAILLANT -MARECHAL Ligne directe : 03.72.74.04.55 <u>drv-hdr@univ-lorraine.fr</u>

Monsieur,

J'ai l'honneur de vous faire connaître que sur avis favorable du Conseil Scientifique réuni le 30 mars 2021, je vous accorde l'autorisation de vous inscrire à l'Habilitation à Diriger des Recherches (HDR) en Sciences des Matériaux.

A compter de la date de réception de ce courrier, vous disposez d'un an pour soutenir votre HDR.

Sept semaines au minimum avant la date prévue pour votre soutenance, je vous remercie de bien vouloir :

- Procéder au paiement de votre inscription auprès du service d'inscription administrative voulu (cf. annexe 2 de la procédure HDR jointe à ce courrier envoyé par email).
- Transmettre à l'adresse suivante : <u>drv-hdr@univ-lorraine.fr</u> :
 - Le formulaire de demande de soutenance de l'HDR (joint à ce courrier envoyé par email) dûment complété.
 - Votre manuscrit final.

Je vous prie d'agréer, Monsieur, l'expression de mes salutations distinguées.

Le Président de l'Université de Lorraine, Pour le Président et par délégation, Le Vice-Président du Conseil Scientifique Frédér **WILLIÉRAS**

Monsieur DUSSOUBS Bernard Université de Lorraine Institut Jean Lamour Campus Artem 2 allée André Guinier BP 50840 54011 Nancy Cedex 31/03/2021

Habilitation à Diriger des Recherches – B. Dussoubs

[...] C'était compliqué, alors j'ai essayé d'expliquer ce qu'était le Graal, pour que tout le monde comprenne.

C'était difficile, alors j'ai essayé de rigoler pour que personne ne s'ennuie.

J'ai raté... mais je veux pas qu'on dise que j'ai rien foutu, parce que c'est pas vrai.

Arthur, Kaamelott, Livre V, 2007.

Contribution à la simulation numérique des procédés à haute température : développer des outils de recherche pour des applications industrielles

Les projets présentés dans ce manuscrit s'inscrivent dans le cadre de la simulation des procédés d'élaboration des matériaux à haute température, aussi bien les céramiques que les métaux. Ils ont en commun l'utilisation des outils numériques, codes « maison » ou commerciaux (toujours avec adaptation à nos problématiques) pour simuler, à l'échelle macroscopique ou mésoscopique, un procédé industriel au sein duquel les mesures sont limitées par les conditions environnementales. La simulation numérique est alors une voie privilégiée pour comprendre le procédé et optimiser la conduite des réacteurs. Sont abordés tour à tour : la projection par plasma thermique, la conversion d'oxyde d'uranium en tétrafluorure, des procédés de traitement du métal liquide (fusion BE, élaboration sous laitier électroconducteur – ESR) et la solidification des alliages métalliques.

Des articles publiés dans des revues internationales illustrent les principaux aspects des modèles et leur utilisation dans un cadre de recherche appliquée.

Les perspectives portent à la fois sur la continuation de mes recherches actuelles (procédé ESR), sur certains verrous à lever (modèles de changements d'échelle et/ou de dimension, simulation du mouvement de grains ou de gouttes et leurs interactions dans un écoulement turbulent), et s'ouvre sur les nouveaux horizons que peuvent apporter la fouille de données et l'intelligence artificielle dans le cadre de la conception de nouveaux matériaux.

<u>Mots-clés</u> : simulation numérique, calcul scientifique, procédés d'élaboration, matériaux, recherche appliquée.

Contribution to the numerical simulation of high temperature processes: developing research tools for industrial applications

The projects presented in this manuscript are embedded in the numerical simulation of the elaboration processes of materials at high temperature, both ceramics and metals. They have in common the use of numerical tools, in-house or commercial codes (always with adaptation to our problems) in order to simulate, at a macroscopic or mesoscopic scale, an industrial process in which measurements are limited by environmental conditions. Numerical simulation is thus a privileged way to understand the process and optimize the operation of reactors. The following topics are discussed in turn: thermal plasma spraying, the conversion of uranium oxide to tetrafluoride, liquid metal processes (EB melting, ElectroSlag Refining - ESR) and the solidification of metallic alloys.

Different papers published in international journals illustrate the main aspects of the models and their use in the context of applied research.

The perspectives relate both to the continuation of my current research activities (ESR process), to certain obstacles to be overcome (models of scale and / or dimension change, simulation of the movement of grains or drops and their interactions in a turbulent flow), and opens up new horizons that data mining and artificial intelligence can bring to the design of new materials.

<u>Keywords</u>: numerical simulation, scientific computing, elaboration processes, materials, applied research