



**HAL**  
open science

# Développement d'un modèle 3D Automate Cellulaire-Éléments Finis (CAFE) parallèle pour la prédiction de structures de grains lors de la solidification d'alliages métalliques

Tommy Carozzani

► **To cite this version:**

Tommy Carozzani. Développement d'un modèle 3D Automate Cellulaire-Éléments Finis (CAFE) parallèle pour la prédiction de structures de grains lors de la solidification d'alliages métalliques. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012. Français. NNT : 2012ENMP0061 . pastel-00803282

**HAL Id: pastel-00803282**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00803282>**

Submitted on 21 Mar 2013

**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 n°364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

**Doctorat ParisTech**

**T H È S E**

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**l'École nationale supérieure des mines de Paris**

**Spécialité « Science des Matériaux »**

*présentée et soutenue publiquement par*

**Tommy CAROZZANI**

le 04 décembre 2012

**Développement d'un modèle 3D Automate Cellulaire-Éléments Finis (CAFE)  
parallèle pour la prédiction de structures de grains lors de la solidification  
d'alliages métalliques**

Directeur de thèse : **Charles-André GANDIN**

Co-encadrement de la thèse : **Hugues DIGONNET**

**Jury**

**M. Michel RAPPAZ**, Professeur, EPFL

**M. Thierry DUFFAR**, Professeur, INPG

**Mme Nathalie MANGELINCK-NOËL**, Chargée de recherche CNRS, Université Aix-Marseille

**M. Charles-André GANDIN**, Directeur de recherche CNRS, MINES ParisTech

**M. Hugues DIGONNET**, Chargé de recherche, MINES ParisTech

Rapporteur

Rapporteur

Examinateur

Examinateur

Examinateur

**MINES ParisTech**

**CEMEF - UMR CNRS 7635**

1, rue Claude Daunesse - CS 10207

06904 Sophia Antipolis Cedex, France

**T  
H  
È  
S  
E**



## Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu mes deux directeurs de thèse, Charles-André Gandin et Hugues Digonnet, qui peuvent légitimement être considérés comme des co-auteurs de ce document, au vu du temps qu'ils y ont eux-même consacré. Bien que, je l'espère, l'outil que j'ai développé durant ces trois années leur sera utile à l'avenir, ce n'est rien en comparaison de la formation qu'ils m'ont octroyée, tant en science des matériaux qu'en méthodes numériques. A ceci s'ajoute une disponibilité et une patience à toute épreuve, ainsi qu'une bonne humeur constante : ce fut donc toujours un plaisir de venir discuter avec eux devant un ☕ café.

Je souhaite également remercier les membres du jury, Michel Rappaz, Thierry Duffar et Nathalie Mangelinck, pour avoir accepté de lire avec attention ce manuscrit (malgré les notations qu'il contient), pour leur sens critique et leurs remarques pertinentes, ainsi que pour les nouvelles perspectives qu'ils ont ouvertes.

Ma gratitude va ensuite à toute l'équipe d'ACCESS pour leur accueil chaleureux, et en particulier à Markus Apel, Janin Eikein, Laszlo Sturz, et Alexandre Viardin. En plus de m'avoir consacré beaucoup de temps et d'énergie, ils ont rendu mon séjour à Aix-la-Chapelle très sympathique !

Je voudrais remercier Michel Bellet, pour ses précieux conseils et sa collaboration à ces recherches, ainsi que les membres des projets ANR HABISOL-SiX et ANR SMACS.

Je remercie chaleureusement Frédéric Costes d'avoir accepté de se pencher sur les quelques milliers de lignes de code, souvent obscures, qui ont émergé de ce travail, afin de porter le modèle sous TherCast.

Je souhaite remercier toutes les personnes du Cemef, et plus généralement des Mines à Sophia, avec qui j'ai pu m'entretenir et qui ont fait notablement avancer mes recherches, ou plus simplement qui ont rendu mon passage plus agréable : Benjamin Rivaux, pour ses innombrables conseils et ses randonnées, Gildas Guillemot, Ali, Ana-Laura, Takao, Siham, Alice, et tous les autres...

Et qu'aurait été ma vie sur la côte d'azur sans des colocataires aussi incroyables qu'Alexis, Manue, Stéph, BenJ, Vincent, Anne, Clément, Théo, Camille, Raph?... Certainement beaucoup moins drôle ! Merci donc pour toute cette bonne humeur et ces repas incomparables.

Je remercie Violaine de me réchauffer le cœur, même en plein été.

Enfin, à la base de l'édifice, mes parents et ma famille ont eu un rôle irremplaçable au long de toutes ces années d'étude, et je leur suis éternellement reconnaissant de m'avoir soutenu et encouragé sans relâche.



# Table des matières

Liste des principaux symboles	ix
Introduction générale	1
<b>I Solidification : notions fondamentales et modèles numériques</b>	<b>7</b>
1 Phénomènes physiques liés à la formation des structures de grains dans les métaux . . . . .	9
1.1 Germination . . . . .	9
1.2 Description de l'interface solide-liquide . . . . .	9
1.3 Structures de grains . . . . .	10
1.4 Compétition de croissance . . . . .	12
1.5 Ségrégation . . . . .	13
2 Modèles de solidification . . . . .	17
2.1 Modélisation directe de la microstructure . . . . .	17
2.2 Modélisation indirecte de la microstructure . . . . .	22
2.3 Modélisation indirecte de la structure de grains . . . . .	23
2.4 Modélisation directe de la structure de grains . . . . .	26
2.5 Conclusion sur les modèles de solidification . . . . .	28
3 Calcul parallèle . . . . .	28
4 Objectifs et plan de l'étude . . . . .	32
<b>II Modèle CAFE : implémentations numériques et couplages</b>	<b>33</b>
1 Présentation du modèle . . . . .	35
2 Modèle FE . . . . .	37
2.1 Énergie . . . . .	37
2.2 Soluté . . . . .	38
2.3 Navier-Stokes . . . . .	39
3 Modèle CA . . . . .	39
3.1 Germination . . . . .	41
3.2 Croissance et capture . . . . .	42
3.3 Fractions d'enveloppes et de zones . . . . .	44
4 Modèles cinétiques . . . . .	48
4.1 Germination . . . . .	48
4.2 Croissance . . . . .	49
4.3 Ségrégation . . . . .	54
5 Couplages Macro-Méso-Micro . . . . .	61
5.1 Transport FE→CA . . . . .	61
5.2 Transport CA→FE . . . . .	61

5.3	Micro pas de temps . . . . .	62
5.4	Couplage itératif . . . . .	63
6	Implémentation parallèle . . . . .	67
6.1	Allocation dynamique . . . . .	68
6.2	Calcul parallèle . . . . .	70
6.3	Partitionnement . . . . .	72
6.4	Gestion de la mémoire . . . . .	75
6.5	Algorithme général . . . . .	78
<b>III</b>	<b>Validation du modèle</b>	<b>81</b>
1	Croissance et capture . . . . .	83
1.1	Monograin analytique . . . . .	83
1.2	Compétition de croissance . . . . .	87
2	Couplage . . . . .	89
2.1	Lingot 1D Al-7%pds Si : suivi de front . . . . .	89
2.2	Transition colonnaire-équiaxe expérimentale . . . . .	96
2.3	Micro et macroségrégation . . . . .	100
2.4	Comparaison avec un modèle macroscopique indirect . . . . .	104
3	Performances et calcul parallèle . . . . .	107
3.1	Efficacité des différentes approches . . . . .	107
3.2	Scalabilité parallèle et limitations mémoire . . . . .	111
4	Conclusion sur le modèle implémenté . . . . .	118
<b>IV</b>	<b>Applications</b>	<b>121</b>
1	Comparaison avec un modèle Champ de Phase . . . . .	123
1.1	Définition du cas-test . . . . .	123
1.2	Convergence . . . . .	124
1.3	Microstructure . . . . .	128
1.4	Calibrage du modèle CAFE . . . . .	130
1.5	Comparaisons supplémentaires . . . . .	140
1.6	Conclusion et domaines de validité . . . . .	146
2	Benchmark expérimental de macroségrégation . . . . .	148
2.1	Cas expérimental . . . . .	148
2.2	Mise en données . . . . .	149
2.3	Comparaison . . . . .	154
2.4	Conclusion de l'étude . . . . .	163
3	Application au silicium photovoltaïque . . . . .	165
3.1	Procédé EMIX . . . . .	165
3.2	Modélisation . . . . .	167
3.3	Résultats . . . . .	171
	<b>Conclusion</b>	<b>177</b>
	<b>Annexe A Structure du code du modèle CAFE</b>	<b>181</b>
	<b>Annexe B Capture octaédrique en 3D</b>	<b>187</b>
	<b>Annexe C Interpolation des valeurs tabulées</b>	<b>189</b>

---

<b>Annexe D</b>	<b>Approches alternatives de gestion de la mémoire</b>	<b>191</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>195</b>



# Liste des principaux symboles

## Alphabet romain

$A$	aire	$\text{m}^2$
$a_i$	coefficient de la loi puissance	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-k_i}$
$Acc$	accélération parallèle	-
$C$	centre	
$C_\nu^0$	centre de la cellule $\nu$	
$C_i$	cœur $i$	
$C_p$	capacité calorifique massique	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
$D$	coefficient de diffusion solutale	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$E$	élément	
$E_1$	fonction exponentielle intégrale	
$Eff$	efficacité parallèle	-
$F_0^{(j)}$	frontière définie par $g^{(j)*} = 0$	
$F_1^{(j)}$	frontière définie par $g^{(j)*} = 1$	
$F_H$	énergie libre de Helmholtz	$\text{J}$
$f_H$	énergie libre de Helmholtz volumique	$\text{J m}^{-3}$
$f_{seq}$	proportion séquentielle d'un code	-
$f_{TAB}$	fonction tabulée	
$Fo$	nombre de Fourier	-
$G$	gradient thermique	$\text{K m}^{-1}$
$g$	fraction volumique	-
$g$	champ de gravité	$\text{m s}^{-2}$
$H$	enthalpie massique	$\text{J kg}^{-1}$
$h_{ext}$	coefficient d'échange thermique	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-2}$
$I$	état cellulaire	
$I_v$	fonction d'Ivantsov	
$J$	flux thermique	$\text{J m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$(j)$	zone	
$(j)^*$	enveloppe locale de grain	
$J_{vol}$	flux thermique volumique	$\text{J m}^{-3} \text{s}^{-1}$
$K$	courbure de l'interface	$\text{m}^{-1}$
$k$	coefficient de partage	-
$k_b$	constante de Boltzmann	$\text{J K}^{-1}$
$k_i$	exposant de la loi puissance	-
$K_{perm}$	perméabilité	$\text{m}^2$
$L$	chaleur latente massique	$\text{J kg}^{-1}$
$l$	longueur de diffusion	$\text{m}$
$L_{at}$	chaleur latente atomique	$\text{J}$

$l_{CA}$	taille de cellule	m
$l_{FE}$	taille de maille	m
$l_i$	structure liquide	
$M$	maillage	
$m$	penne du liquidus	K %pds <sup>-1</sup>
$M^\phi$	mobilité du champ de phase	m <sup>4</sup> J <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>
$Mem$	mémoire normalisée	-
$N$	densité de grains	m <sup>-3</sup>
$n$	densité de sites de germination	m <sup>-3</sup>
$\vec{n}$	normale à l'interface	-
$P$	partitionnement	
$p$	nombre d'unités de calcul	-
$Pe_v$	nombre de Péclet solutal	-
$Pe_{v,l}$	nombre de Péclet du fluide	-
$Q$	énergie d'activation	J mol <sup>-1</sup>
$R$	rayon	m
$r$	rayon de la pointe de dendrite	m
$\mathfrak{R}$	constante des gaz parfaits	J mol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
$R_c$	rayon critique pour un embryon stable	m
$R_e$	rayon actuel de croissance	m
$R_f$	rayon de croissance maximale	m
$R_E$	résidu	-
$Re$	nombre de Reynolds	-
$S$	densité de surface	m <sup>-2</sup>
$s$	structure de solidification	
$s_i$	structure solide	
$Sc$	nombre de Schmidt	-
$T$	température	K
$t$	temps	s
$T_m$	température de fusion de l'élément	K
$t_m$	temps microscopique	s
$t_{CPU}$	temps de calcul	s
$u$	réel aléatoire entre 0 et 1	-
$V$	volume	m <sup>3</sup>
$v$	vitesse de croissance	m s <sup>-1</sup>
$v^l$	vitesse du liquide	m s <sup>-1</sup>
$v_{LGK}$	vitesse donnée par le modèle LGK	m s <sup>-1</sup>
$v_{LS}$	vitesse de la level-set	m s <sup>-1</sup>
$W$	épaisseur de la frontière	m
$w$	composition massique	%pds
$w'$	longueur de la ligne eutectique	%pds
$x$	position	-
$Z$	nombre de plus proches voisins	-

### Alphabet grec

$\alpha$	critère de transition d'une interface rugueuse à facettée	-
$\beta_T$	coefficient de dilatation thermique	K <sup>-1</sup>
$\beta_w$	coefficient de dilatation solutale	%pds <sup>-1</sup>

$\Delta G$	barrière d'énergie libre	J
$\Delta S$	entropie massique de fusion	$\text{J K}^{-1} \text{kg}^{-1}$
$\Delta s$	entropie volumique de fusion	$\text{J K}^{-1} \text{m}^{-3}$
$\Delta T$	surfusion	K
$\Delta t$	macro pas de temps	s
$\delta t$	micro pas de temps	s
$\Delta T_C$	surfusion chimique	K
$\Delta T_K$	surfusion cinétique	K
$\Delta T_R$	surfusion due à la courbure	K
$\Delta T_T$	surfusion thermique	K
$\Delta T_\sigma$	écart-type de la surfusion de germination	K
$\Delta T_N$	surfusion de germination moyenne	K
$\delta$	fonction de Dirac	-
$\varepsilon$	critère de convergence	-
$\varepsilon^x$	coefficient d'anisotropie sur $x$	-
$\eta_1$	nombre de plus proches voisins sur l'interface	-
$\Gamma$	coefficient de Gibbs-Thomson	$\text{K m}$
$\kappa$	conductivité thermique	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
$\lambda_1$	espacement interdendritique primaire	m
$\lambda_2$	espacement interdendritique secondaire	m
$\lambda_{eut}$	espacement interlamellaire	m
$\mu$	coefficient de mobilité	$\text{m}^4 \text{J}^{-1} \text{s}^{-1}$
$\mu^l$	viscosité dynamique du liquide	Pa s
$\Omega$	sursaturation chimique	%pds
$\phi$	fonction champ de phase	-
$\phi_i, \phi_j$	fonctions d'interpolation et de poids FE	-
$\phi_{LS}$	fonction level-set	-
$(\psi, \theta, \phi)$	angles d'Euler	°
$\psi^k$	fonction de présence	-
$\rho$	densité	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma$	énergie d'interface	$\text{J m}^{-2}$
$\sigma^r$	rigidité de l'interface	$\text{J m}^{-2}$
$\sigma^*$	constante de stabilité marginale	-
$\tau$	taux de remplissage	-
$\tau_s$	paramètre de stabilisation SUPG	-
$\theta^\alpha$	angle de contact de $\alpha$ avec le liquide	°
$\theta_d$	angle du joint de grain	°
$\varphi$	phase thermodynamique	-
$\varphi^l$	flux macroscopique de soluté dans $l$	%pds $\text{s}^{-1}$

## Indices

$x_0$	valeur initiale
$x_\nu, x_\mu$	valeur à la cellule
$x_{alloc}$	alloué en mémoire
$x_{capt}$	valeur au moment de la capture
$x_{CA}$	relatif à l'automate cellulaire
$x_{eq}$	à l'équilibre thermodynamique
$x_{eut}$	de l'eutectique

---

$x_{ext}$	à l'extérieur du domaine
$x_{FE}$	relatif aux éléments finis
$x_{fin}$	fin de la simulation
$x_f$	de l'interface
$x_{(j)}$	dans la zone $(j)$
$x_{max}$	valeur maximale
$x_{min}$	valeur minimale
$x_{nucl}$	de germination
$x_n$	valeur au noeud
$x_{\vec{n}}$	valeur normale à l'interface
$x_{PF}$	relatif au champ de phase
$x_{ref}$	de référence
$x_s$	dans la structure $s$

### Exposants

$x^-$	valeur précédente
$x^{\alpha/\beta}$	à l'interface $\alpha/\beta$
$x^\infty$	dans le liquide loin de l'interface
$x^\varphi$	phase
$x^{eff}$	effectif
$x^{(j)*}$	enveloppe
$x^{(j)}$	zone
$^{(k)}x$	itération de Newton-Raphson
$x^l$	du liquide
$x^m$	mère
$x^{s_i}$	structure
$x^s$	du solide
$x^t$	valeur au temps $t$

### Opérateurs

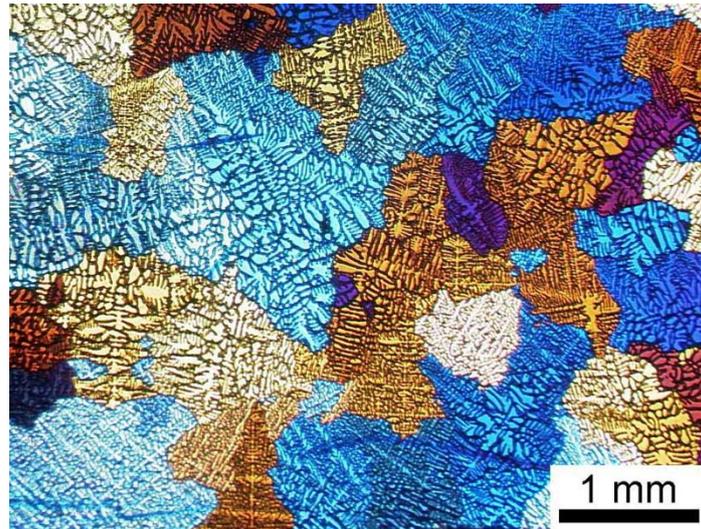
$\dot{x}$	dérivée temporelle
$\langle x \rangle$	moyenne sur un VER
$\langle x^\alpha \rangle^\alpha$	moyenne intrinsèque à $\alpha$
$\nabla \cdot$	divergence
$\nabla$	gradient
$\bar{x}$	moyenne
$x^T$	transposée

# Introduction générale

La formation de la structure de grains est d'intérêt pour quasiment tous les procédés de fabrication de pièces métalliques. La raison en est que cette structure influence grandement les propriétés du matériau, mécaniques en particulier. Aussi, la compréhension de la formation de structures de grains a fait l'objet de nombreuses recherches en métallurgie, depuis environ un siècle. Les outils de modélisation à disposition restent cependant encore très limités. Avant d'aborder le contexte et la problématique de ce travail, nous revenons brièvement sur l'histoire de l'observation des grains cristallins.

Les cristaux, du grec *krýstallos* (glace), ont été pour la première fois observés par les Grecs anciens dans des matériaux transparents : glace, cristal de roche (quartz), diamant... Leur compréhension de la formation de ces cristaux était toutefois très limitée, et les écrits se bornent à des analogies de formes angulaires. La description de Pline l'Ancien montre d'ailleurs que les Grecs imaginaient que les cristaux de roche n'étaient rien d'autre qu'une sorte d'eau congelée, dont la formation n'était possible que dans des conditions de froid "extrême" (c'est-à-dire dans les montagnes) (cité par [l'I72]). Par la suite, les nombreuses observations de formes géométriques régulières dans d'autres matériaux obligèrent à reconsidérer cette théorie. Les premiers écrits posant les bases de la science de la cristallographie sont ceux de Conrad Gessner, au 16<sup>e</sup> siècle, mais il faut attendre Hottinger deux siècles plus tard pour les premières études et observations par microscope sur des minéraux (quartz). Par la suite, l'observation de cristaux a pu se généraliser aux métaux (bien que la structure cristalline des métaux ait été connue auparavant) avec la diffraction par rayons X, inventée par Max von Laue en 1912. Aujourd'hui, ces observations peuvent se faire *post mortem*, par microscopie électronique par exemple, ou *in situ* lors de la solidification, avec des appareillages tels les synchrotrons.

La structure de grains, c'est-à-dire la forme, l'orientation et l'agencement des cristaux, est déterminante pour de nombreuses propriétés du matériau. Tout d'abord au niveau mécanique, puisque les dislocations se concentrent au niveau des joints de grains. Selon les applications, on cherchera à obtenir des densités de grains élevées, en particulier pour augmenter la limite d'élasticité. Au contraire, d'autres applications requièrent des pièces monocristallines, qui présentent de bonnes propriétés à haute température, par exemple pour les aubes de turbine des avions à réaction. Mais les propriétés mécaniques ne sont pas les seules affectées : dans les semiconducteurs, les joints de grains ont des effets néfastes sur les mécanismes quantiques, et sont pour cette raison bannis de tous les composants électroniques. La structure de grains doit donc être très contrôlée : c'est pour cela, entre autres, que d'une manière générale, quasiment aucune pièce n'est produite "brute de fonderie", c'est-à-dire sans traitements particuliers après la solidification du matériau. Par exemple, le recuit (maintien à une température élevée), qui permet d'homogénéiser et d'augmenter la taille des grains, est très utilisé dans les procédés de laminage et de forgeage. Cependant, la structure de grains initiale provient uniquement de l'étape de



**FIGURE 1** Structure de grains dans un aluminium métallurgique, observée en lumière polarisée [Que03]. Les ramifications dendritiques de chaque grain sont particulièrement visibles.

solidification, que ce soit dans des lingots ou dans des pièces moulées. Si la structure de grains initiale est éloignée de la structure souhaitée, les différents traitements post solidification seront d'autant plus longs et coûteux. De plus, certains défauts ne pourront pas être corrigés (par exemple lors de la production de pièces monocristallines).

Enfin, c'est lors de la solidification que se forment les diverses phases, les inhomogénéités en composition d'éléments d'alliages, les porosités, les contraintes thermomécaniques, etc., qui seront autant de défauts éventuels à prendre en compte afin d'atteindre la mise en forme finale de la pièce. Or, une bonne description de la solidification et de la croissance des phases ne peut se faire sans considérer la structure de grains. Aussi de nombreuses recherches ont été menées pour tenter de comprendre ces phénomènes, les modéliser et les prédire.

Parallèlement à ces avancées dans la représentation théorique des phénomènes de solidification, se sont développées des méthodes numériques, avec lesquelles les modèles sont intimement liés. Bien que les approches numériques de résolution d'équations existent depuis des siècles, par exemple les méthodes de Newton ou d'Euler, elles ont pris leur plein essor dans les années 80 avec l'avènement de l'informatique. Depuis, les capacités de calcul (mémoire, puissance) n'ont eu de cesse d'augmenter, repoussant les limites et permettant aux modèles de se complexifier toujours plus. Cependant, depuis moins d'une dizaine d'années, l'évolution des performances s'est trouvée en partie bloquée par les limites physiques dans la fabrication de composants électroniques (transistors, etc.) et du design des puces. Étant devenu difficile d'augmenter la puissance individuelle de ces puces, les développements se tournent aujourd'hui vers le calcul parallèle, c'est-à-dire l'association de plusieurs unités de calcul pour combiner leur capacité. Tous les microprocesseurs neufs produits actuellement pour les ordinateurs sont composés de plusieurs de ces unités. Les supercalculateurs les plus puissants intègrent quant à eux de l'ordre d'un million d'unités de calcul (p.ex. figure 2), et ont une capacité de plusieurs Pflops, soit  $10^{15}$  opérations sur flottants par seconde (cf. <http://www.top500.org>). Mais le calcul parallèle a également apporté ses problématiques propres, car l'exploitation de cette puissance de

calcul ne peut se faire qu'avec des algorithmes extrêmement bien optimisés, ce qui peut se révéler une tâche très ardue en soi.

Malgré ces avancées technologiques, les modèles, scientifiques en général et de solidification en particulier, sont toujours cantonnés à un certain domaine d'échelles de temps et de taille. Si le choix est fait de représenter des phénomènes à très petite échelle, par exemple au niveau atomique, alors les calculs seront limités en termes de volume et de temps, même sur des calculateurs très puissants. Si au contraire l'objectif est de prendre en compte des échelles importantes, par exemple au niveau d'un procédé industriel, alors des approximations doivent être faites aux petites échelles pour mener le calcul. Certains phénomènes physiques seront alors approchés par des lois plus ou moins complexes, ou tout simplement ignorés.



**FIGURE 2** Le plus grand supercalculateur à ce jour, *Sequoia*, du laboratoire Lawrence Livermore (USA), comptabilise 1,5 M d'unités de calcul pour une puissance de 16 Pflops.

Le problème de la solidification concerne, comme beaucoup d'autres domaines, une grande variété d'échelles. La structure de grains est généralement beaucoup plus fine que la taille caractéristique du procédé. Les grains eux-mêmes sont formés d'une microstructure de dimension plus réduite : un exemple est donné à la figure 1, où on aperçoit la microstructure dendritique ramifiée à l'intérieur de chaque grain coloré. Autant de modèles que d'échelles ont été développés en solidification. L'objectif de cette étude est de mettre en place un modèle 3D, capable de prédire directement la formation de la structure de grains, mais pas leur microstructure dendritique interne, à l'échelle d'une pièce industrielle.

L'approximation consistant à ne pas représenter la structure interne des grains en suivant tout de même le développement de leur enveloppe est typique d'un modèle mésoscopique, couplant les approches dites d'automate cellulaire (CA) et d'éléments finis (FE). Le modèle CAFE entre dans la catégorie des modèles dits "macroscopiques directs". Il est certain que la non-description de la microstructure dendritique interne empêche la représentation directe de certains phénomènes physiques à cette échelle : courbure de l'interface entre le solide et le liquide, champs de composition précis dans les phases solides et liquide, etc. Ces phénomènes sont donc pris en compte à travers des lois simples, analytiques ou phénoménologiques. Le problème posé par l'utilisation de ces lois est double : d'une part, leur domaine de validité est rarement connu précisément ; d'autre part, des données d'entrée sont souvent nécessaires, et pas toujours disponibles expérimentalement. C'est pourquoi une partie de cette étude est dédiée à la comparaison du modèle CAFE avec un modèle champ de phase "microscopique direct", permettant de suivre directement l'interface solide-liquide à l'échelle dendritique pendant la solidification. Cette comparaison aura pour objectif de vérifier la validité des lois physiques et des hypothèses utilisées

dans la construction du modèle CAFE. Un second objectif sera de voir dans quelle mesure les modèles microscopiques directs, comme le champ de phase, peuvent permettre de calibrer les paramètres physiques et numériques des modèles mésoscopiques, comme le modèle CAFE. Enfin, les limitations des deux modèles en termes d'échelle seront évaluées, ainsi que leurs intérêts complémentaires.

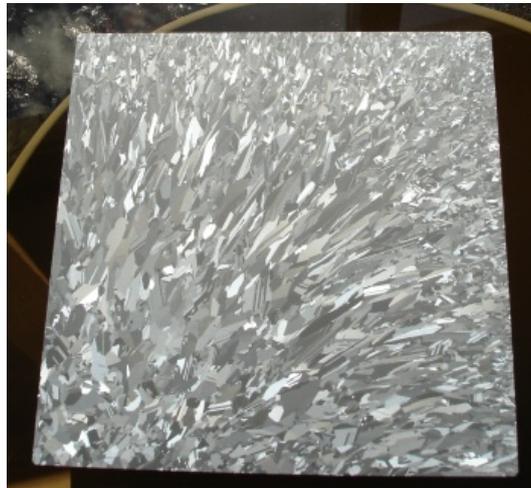
À l'échelle du procédé, un des phénomènes les plus néfastes pour les propriétés des pièces produites est la ségrégation macroscopique des espèces chimiques, ou macroségrégation. Cette dernière est fortement liée à l'étape de solidification. Aussi, le deuxième objectif principal de ce travail sera de prendre en compte ce phénomène de manière couplée avec le développement de la structure de grains. Il sera ainsi possible de montrer l'influence de l'un sur l'autre. Pour cela, une expérience spécialement conçue pour servir de référence sur la macroségrégation induite par convection naturelle sera modélisée [Hac12a]. La grande quantité de données mesurées en fait une expérience de choix pour la validation du modèle et de son implémentation.

En termes d'échelle, le but visé est la modélisation d'un procédé industriel de coulée semi-continue de lingots de silicium polycristallin, utilisé ensuite comme composant actif dans les panneaux solaires photovoltaïques. Dans ce procédé, la structure de grains (visible sur la figure 3.b) est primordiale, car déterminante pour le rendement des panneaux. De plus, on le verra, ce procédé met en jeu des phénomènes représentables en 3D uniquement. Les lingots produits ont des dimensions de l'ordre de 0,4 x 0,4 x 5 m (cf. figure 3.a), et les grains observés ont une taille de l'ordre du millimètre. Ces conditions rendent clairement le calcul parallèle indispensable. D'ailleurs, les versions précédentes de ce modèle mésoscopique, qui n'utilisaient pas le calcul parallèle, étaient limitées à des calculs sur de petites dimensions. Le troisième objectif sera donc d'implémenter un algorithme de résolution du modèle CAFE parallèle et optimisé, et de mener un calcul démonstratif sur un lingot de silicium industriel.

(a)



(b)



**FIGURE 3** (a) Lingot de silicium polycristallin et (b) plaquette de silicium avant son conditionnement dans un panneau solaire, produits par la société EMIX (St-Maurice-la-Souterraine, France).



# Chapitre I

## Solidification : notions fondamentales et modèles numériques

*Dans ce chapitre est présentée une brève revue de littérature sur la solidification des métaux, ainsi que les différents modèles de solidification et leurs approches en calcul parallèle. Une partie est dédiée aux objectifs et enjeux de la thèse.*

### Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Phénomènes physiques liés à la formation des structures de grains dans les métaux . . . . .</b>	<b>9</b>
1.1	Germination . . . . .	9
1.2	Description de l'interface solide-liquide . . . . .	9
1.3	Structures de grains . . . . .	10
1.4	Compétition de croissance . . . . .	12
1.5	Ségrégation . . . . .	13
<b>2</b>	<b>Modèles de solidification . . . . .</b>	<b>17</b>
2.1	Modélisation directe de la microstructure . . . . .	17
2.2	Modélisation indirecte de la microstructure . . . . .	22
2.3	Modélisation indirecte de la structure de grains . . . . .	23
2.4	Modélisation directe de la structure de grains . . . . .	26
2.5	Conclusion sur les modèles de solidification . . . . .	28
<b>3</b>	<b>Calcul parallèle . . . . .</b>	<b>28</b>
<b>4</b>	<b>Objectifs et plan de l'étude . . . . .</b>	<b>32</b>

---



# 1 Phénomènes physiques liés à la formation des structures de grains dans les métaux

La structure de grains, telle qu'observée sur un lingot, résulte de l'interaction de nombreux phénomènes physiques pendant la solidification. Nous donnons ici les clés pour comprendre les principaux aspects en jeu, et les différents paramètres susceptibles d'influencer la formation de cette structure. Nous présenterons donc brièvement l'importance de l'interface solide-liquide, les structures dendritiques et eutectiques qui seront par la suite étudiées, la compétition de croissance entre grains, et enfin le phénomène de macroségrégation.

## 1.1 Germination

La germination dans un liquide résulte de la formation d'une grappe d'atomes formant une structure solide qui, si elle est suffisamment stable, grossit assez pour devenir un germe. En croissant, ce germe formera un grain. L'étude de ce phénomène est basée sur des concepts thermodynamiques, et en particulier considère l'énergie de l'interface solide/liquide de l'embryon,  $\sigma$ . En approchant l'embryon par une sphère, on peut définir une barrière d'énergie de germination  $\Delta G_{nucl}$  :

$$\Delta G_{nucl} = \frac{\sigma 4\pi R_c^2}{3} \quad (\text{I.1})$$

Dans cette équation apparaît le rayon critique  $R_c$  au-delà duquel l'embryon est stable et forme un germe. Ce rayon pourra être atteint par des fluctuations thermiques en dessous de la température de fusion. Cependant la surfusion nécessaire peut atteindre plusieurs centaines de Kelvins, ce qui n'est pas cohérent avec les observations expérimentales [Dan09].

Par opposition à ce modèle de germination homogène, de nombreuses recherches ont été menées sur la germination hétérogène, c'est-à-dire la formation de germes sur des substrats (particules, moule), qui nécessite une surfusion de quelques Kelvins seulement. Mais, la germination étant un phénomène à l'échelle atomique sensible aux fluctuations thermiques, il est impossible de prédire à l'échelle macroscopique la position et l'orientation du premier cristal à se former. Pour ces raisons, un modèle statistique a été développé [Rap89] afin de donner une distribution de sites de germination dont la surfusion critique,  $\Delta T_{nucl}$ , suit une loi gaussienne. Quand la surfusion locale  $\Delta T$ , définie par l'équation I.2, devient supérieure à cette surfusion critique, alors le site germe et forme un nouveau grain :

$$\Delta T = T_{eq} - T \quad (\text{I.2})$$

où  $T$  est la température locale et  $T_{eq}$  la température de la transformation à l'équilibre, par exemple la température de liquidus. En pratique, il sera donc nécessaire de déterminer par l'expérience les paramètres de la loi gaussienne, c'est-à-dire la surfusion critique moyenne,  $\Delta T_N$ , son écart-type,  $\Delta T_\sigma$ , et la densité maximale de sites de germination,  $n_{max}$ .

## 1.2 Description de l'interface solide-liquide

La nature et le comportement de l'interface entre la phase solide est la phase liquide pendant la solidification sont d'une manière générale déterminants dans le processus de

formation de cristaux, et donc de structures de grains. L'interface peut être classée selon trois catégories [Kur98] :

- Les fronts plans correspondent à une interface stable, au sens où les perturbations se résorbent avec le temps. Ces fronts sont essentiellement obtenus lors de la croissance colonnaire de substances pures.
- Les morphologies cellulaires se développent quant à elles à la limite de l'instabilité de l'interface lors de la croissance colonnaire. Ces morphologies se caractérisent par la croissance de cellules alignées sur le gradient thermique.
- Enfin, la morphologie dendritique, la plus courante dans les alliages métalliques, correspond à une interface instable, où les perturbations ont tendance à s'amplifier avec le temps.

En plus de la description précédente, une interface peut être rugueuse, comme dans la plupart des métaux, ou facettée, par exemple pour certains intermétalliques ou des semi-conducteurs comme le silicium. Elle présente alors une interface dentelée à l'échelle microscopique, chaque facette étant en fait un plan à l'échelle atomique. Ces plans sont la conséquence d'une cinétique d'attachement plus lente des atomes, et va généralement de pair avec une surfusion plus importante [Kur98]. Pour le silicium, dans le procédé Czochralski où la vitesse de tirage est très lente, l'interface solide-liquide est plane et non facettée, bien que des facettes puissent apparaître. La fabrication de silicium polycristallin est plus complexe de par la vitesse de croissance plus importante.

Selon le critère de Jackson [Jac84], la transition d'une interface rugueuse à facettée peut être déterminée par le paramètre  $\alpha$  :

$$\alpha = \frac{\eta_1 L_{at}}{Z k_b T_m} \quad (\text{I.3})$$

avec  $\eta_1$  le nombre de plus proches voisins sur l'interface,  $Z$  le nombre de plus proches voisins total,  $k_b$  la constante de Boltzmann,  $L_{at}$  l'enthalpie de fusion atomique et  $T_m$  la température de fusion. Si  $\alpha$  est supérieur à 2, l'interface sera facettée. Le tableau I.1 donne le paramètre  $\alpha$  pour les plans à bas indices dans le silicium, l'aluminium et l'étain, matériaux qui seront étudiés par la suite.

## 1.3 Structures de grains

### Structure dendritique

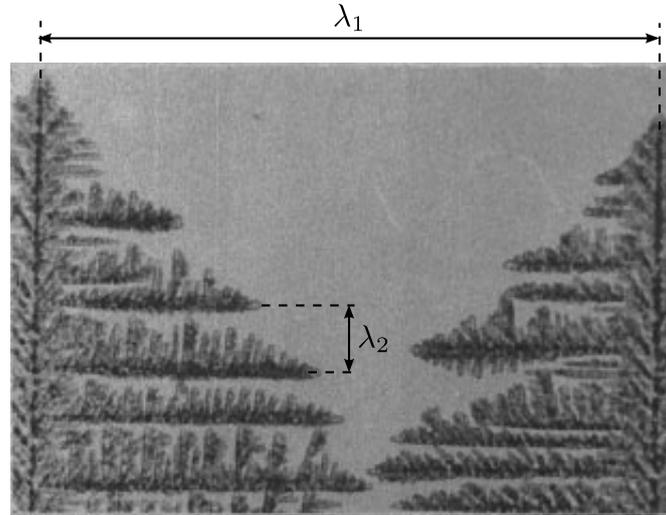
Un grain dendritique est constitué d'un réseau de ramifications issues du même germe initial. Après une courte phase de croissance sphérique, le grain se développe selon des directions préférentielles liées à l'anisotropie de l'énergie interfaciale et à la cinétique d'attachement des atomes. Des bras de dendrite primaires se forment selon ces directions, puis des bras secondaires apparaissent par ramification. Ce réseau dendritique peut être caractérisé par l'espacement interdendritique primaire,  $\lambda_1$ , et secondaire,  $\lambda_2$  (figure I.1). Ces valeurs sont en particulier dépendantes de la vitesse de refroidissement et du gradient de température, et sont donc susceptibles de changer d'un point à l'autre du lingot. De plus, elles évoluent fortement après la phase de croissance initiale par maturation et dissolution des bras secondaires. Les propriétés finales du matériau dépendent en particulier de  $\lambda_2$ .

La croissance initiale des bras de dendrites est gouvernée par les pointes de dendrite.

	Si	Al	Sn
Structure	Diamant	CFC	TC <sup>a</sup>
Dendrites	<100>	<100>	<110>
$L_{at}$ (eV)	0,525	0,111	0,075
$T_m$ (K)	1683	933,5	505,1
(100) $\eta_1/Z$	1/4	4/12	2/2
$\alpha$	0,91	0,46	1,7
(110) $\eta_1/Z$	2/4	2/12	2/2
$\alpha$	1,8	0,23	1,7
(111) $\eta_1/Z$	3/4	6/12	0/2
$\alpha$	2,7	0,69	0,0

a. Tétraogonal centré, avec les dimensions de la maille :  $a = b = 583 \cdot 10^{-12}$  m et  $c = 318 \cdot 10^{-12}$  m

**TABLE I.1** Critère de Jackson pour la transition d'une interface rugueuse ( $\alpha < 2$ ) à facettée ( $\alpha \geq 2$ ) pour le silicium, l'aluminium et l'étain. Les seules facettes pouvant apparaître selon ce critère sont les plans (111) du silicium [Nag05].



**FIGURE I.1** Illustration de l'espacement interdendritique primaire,  $\lambda_1$ , et secondaire,  $\lambda_2$ , dans du camphène [Cad00].

La surfusion au niveau de la pointe est donnée par :

$$\Delta T = \Delta T_T + \Delta T_C + \Delta T_R + \Delta T_K \quad (\text{I.4})$$

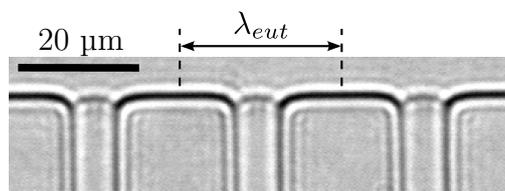
avec  $\Delta T_T$  la surfusion thermique,  $\Delta T_C$  la surfusion chimique,  $\Delta T_R$  la surfusion due à la courbure de l'interface et  $\Delta T_K$  la surfusion cinétique d'attachement des atomes. Il a été noté que la surfusion de courbure  $\Delta T_R$  joue un rôle important : d'une part, la courbure à l'extrémité de la pointe est maximale, d'autre part, la courbure varie fortement au niveau de la pointe.  $\Delta T_R$  varie donc également et la pointe ne peut en toute rigueur être considérée isotherme. La diffusion de la chaleur dans le solide et le liquide doit donc être prise en compte, ce qui complexifie notablement le problème. Notons finalement que dans la plupart des cas, hormis en solidification rapide et pour des interfaces facettées, la surfusion cinétique  $\Delta T_K$  peut être négligée.

Plusieurs modèles analytiques ont été développés pour calculer vitesse de croissance

et rayon de courbure des pointes de dendrites, en partant de plusieurs approximations. La principale est que la pointe de dendrite est assimilable à un parabolôïde de révolution. À partir de cette géométrie simplifiée, et en supposant la pointe isotherme, les équations de conduction thermique ou solutale peuvent être résolues de manière analytique, comme cela a été introduit par Ivantsov [Iva47]. Cependant, cette solution ne permet pas de trouver un point de fonctionnement unique entre la vitesse de la pointe,  $v$ , et son rayon,  $r$ . Par la suite, un critère de stabilité marginale a été développé [Lan77] pour pallier ce problème et lier  $r$  et  $v$  à travers une constante de stabilité,  $\sigma^*$ . Un modèle reprenant cette analyse sera présenté en détail dans le chapitre II, notons ici le modèle de Lipton *et al.* (LGK) [Lip87] pour la croissance équiaxe et le modèle de Kurz *et al.* (KGT) [Kur86] pour la croissance directionnelle, ces deux modèles étant aujourd'hui très répandus dans la littérature.

### Structure eutectique

Les grains eutectiques se définissent par la croissance simultanée de deux phases solides ou plus. Par la suite, nous traiterons uniquement des alliages binaires, et donc des eutectiques à deux phases. De plus, seuls les eutectiques réguliers lamellaires seront abordés ici. Ils sont caractérisés par une morphologie en lamelles de deux phases alternées, qui forment au niveau macroscopique un front plan avec le liquide. La croissance simultanée de ces deux phases est rendue possible par l'échange de soluté dans le liquide à l'interface entre les lamelles des deux phases. Les transformations eutectiques binaires sont souvent considérées isothermes, et à composition fixe  $w_{eut}$ . La croissance eutectique a en particulier été étudiée par Jackson et Hunt, leur analyse étant aujourd'hui reprise très régulièrement [Jac66].



**FIGURE I.2** Eutectique lamellaire régulier dans du  $CBr_4 - C_2Cl_6$ , tiré de Akamatsu *et al.* [Aka12]. Les deux phases sont aisément distinguables de par leur taille de lamelle.  $\lambda_{eut}$  est ici environ 20 fois plus grand que dans les alliages métalliques standards.

Une grande différence avec les grains dendritiques vient de la taille de ces lamelles, et donc de l'espacement interlamellaire  $\lambda_{eut}$ , qui est de un à deux ordres de grandeur inférieurs à  $\lambda_2$ . Il en résulte une difficulté numérique pour traiter de la croissance simultanée de grains dendritiques et eutectiques. Pour ces raisons, les deux phases constituant l'eutectique sont souvent regroupées et considérées comme une unique structure, dont la vitesse de croissance  $v$  est unique.

## 1.4 Compétition de croissance

### Croissance colonnaire

Les grains dits colonnaires se caractérisent par une taille plus importante dans une direction. Un exemple est donné par la figure I.3, dans la partie basse du lingot. Ces grains se forment lors d'une croissance contrainte, par exemple dans un gradient de température.

Il a été observé à de multiples reprises que les grains colonnaires dont les directions préférentielles étaient orientées selon le gradient thermique se développent au détriment des autres [Gan94], menant à une sélection de grains.

Pour les grains dendritiques, la sélection des directions préférentielles est basée sur la minimisation de l'énergie de surface, mais, de par leur morphologie, la sélection des grains elle-même est uniquement due à la cinétique de croissance et aux conditions locales de refroidissement. Il résulte de cette sélection une diminution du nombre de grains et la formation d'une texture, c'est-à-dire d'une microstructure dont les grains sont tous orientés selon la même direction. Le lingot pourra ainsi avoir des propriétés (p.ex. mécaniques) anisotropes, et différentes d'un endroit à l'autre. Une application directe de ce phénomène est le sélecteur de grains qui, en imposant une certaine géométrie, permet de sélectionner un seul grain et de réaliser ainsi des pièces monocristallines [Ree06].

Dans le cas de grains non dendritiques, la minimisation de l'énergie de surface peut devenir prépondérante dans la compétition de croissance entre grains si la vitesse de refroidissement est faible. C'est par exemple le cas pour le silicium pur (voir section IV.3).

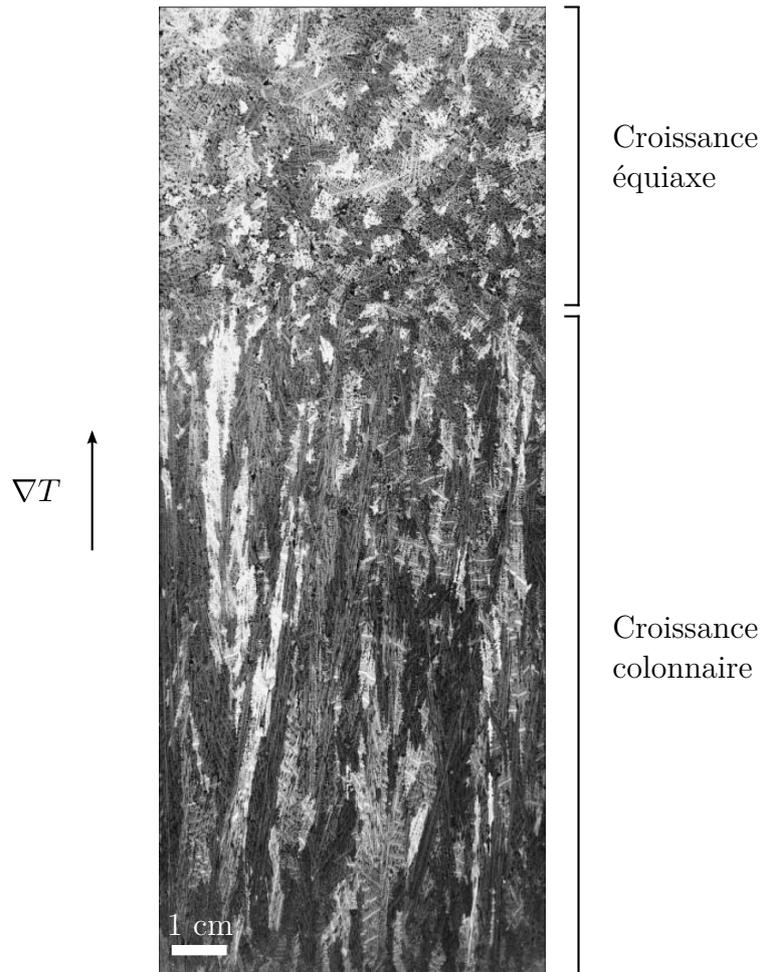
### Grains équiaxes et transition colonnaire-équiaxe

Les grains dits équiaxes sont caractérisés par une taille semblable dans toutes les directions, par opposition aux grains colonnaires. On peut distinguer deux zones de grains équiaxes dans un lingot : d'une part, en surface du lingot, où la vitesse de refroidissement est maximale et les sites de germination hétérogène nombreux, d'autre part au centre du lingot, où le gradient de température est proche de zéro. Dans ce deuxième cas, la germination de grains équiaxes dans le liquide libre peut entièrement bloquer la croissance du front colonnaire. Le blocage en lui-même se fait à la fois mécaniquement et par interaction solutale [Mar03]. Ce phénomène, appelé transition colonnaire-équiaxe (*Columnar-to-Equiaxed Transition*, CET), est fréquemment observé en solidification. Un exemple est donné à la figure I.3. Les propriétés très différentes des structures équiaxes et colonnaires font que selon les applications, on cherchera à maximiser la germination équiaxe, par exemple pour des propriétés mécaniques plus isotropes, ou à la minimiser, par exemple pour des pièces monocristallines ou le silicium photovoltaïque.

L'origine de la CET est encore discutée pour les raisons évoquées plus haut concernant la germination homogène. D'ailleurs, les observations de germination équiaxe *in situ* se font souvent avec l'ajout d'agents de germination, agissant comme des substrats pour la germination hétérogène. Dans le silicium photovoltaïque, il a été émis comme hypothèse que la germination équiaxe prenait place sur des précipités de carbone ou d'azote, présents en plus ou moins grande quantité selon la pureté du matériau [MN08]. Une autre hypothèse est que le faible gradient de température et l'enrichissement en soluté au niveau du front lors de la CET entraîne des refusions locales des dendrites colonnaires, et facilite ainsi la fragmentation des bras de dendrites, chaque fragment pouvant à terme former un nouveau grain équiaxe [Gan00a]. Cependant, bien que ce phénomène ait pu être observé expérimentalement, par exemple sur la figure I.4, il n'a pu être confirmé sans convection.

## 1.5 Ségrégation

La ségrégation est un phénomène qui entraîne une répartition non homogène des espèces chimiques. Elle peut-être liée à une accumulation ou une déplétion de soluté à



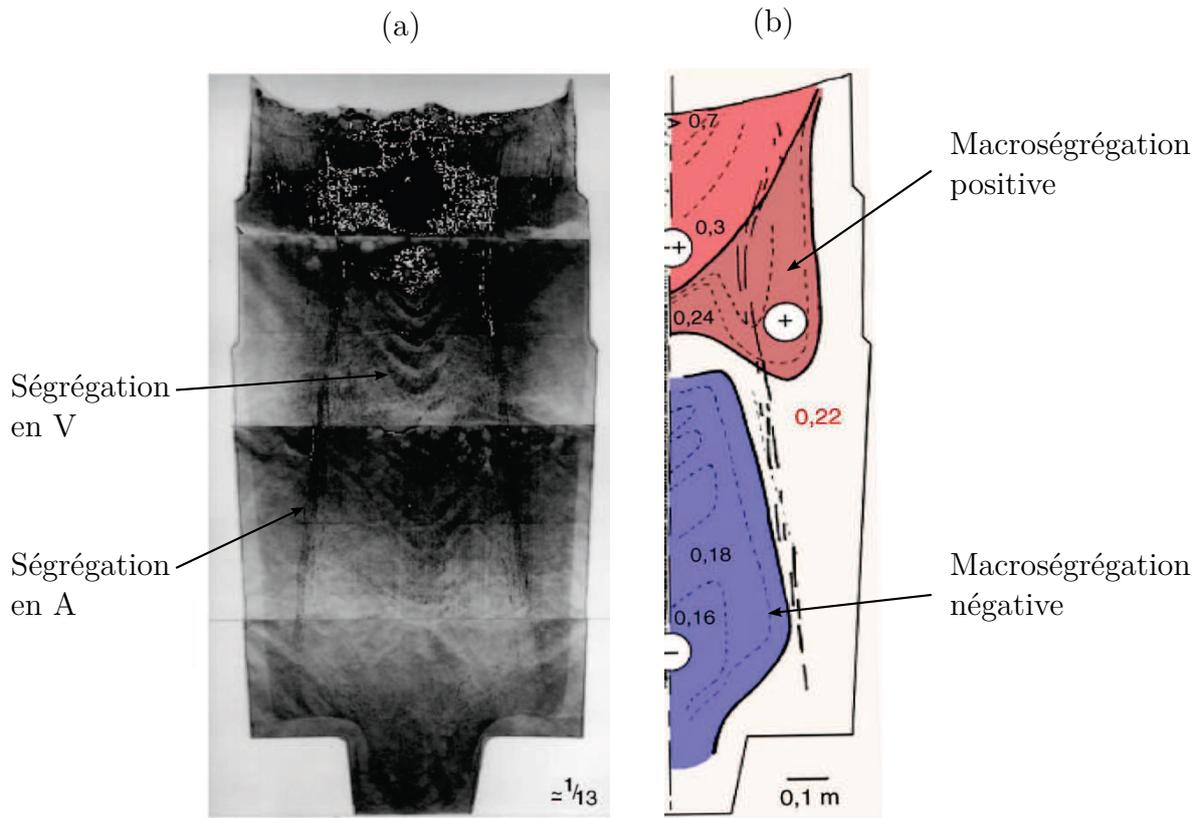
**FIGURE I.3** Coupe centrale d'un lingot cylindrique d'Al-7%pds Si [Gan00a]. La solidification se fait de bas en haut, et on observe clairement la transition de grains colonnaires dans la partie inférieure à des grains équiaxes dans la partie supérieure.



**FIGURE I.4** Observation in-situ de la fragmentation de dendrites en présence de convection naturelle, dans un alliage d'Al-20pds%Cu [Ruv07].

l'échelle de la microstructure, par exemple entre les bras de dendrites, auquel cas on parle de microségrégation, ou à l'échelle du lingot, auquel cas on parle de macroségrégation. Parfois des "mésoségrégations" peuvent également apparaître à une échelle intermédiaire, de l'ordre de quelques grains.

Les macroségrégations sont des défauts de fonderie très fréquents : on pourra ainsi observer une macroségrégation positive dans les zones de la pièce avec une composition



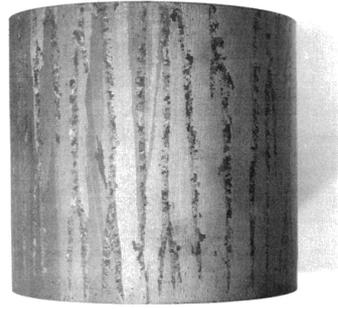
**FIGURE I.5** Coupe d'un lingot de 65 t d'acier 0,22% pds C, avec (a) l'empreinte sulfureuse révélant la concentration en carbone et (b) la carte de concentration correspondante [Les05].

plus élevée que la composition nominale de l'alliage, ou négative dans le cas contraire. Un exemple d'observation expérimentale sur un lingot d'acier est donné à la figure I.5. La macroségrégation est un phénomène très étudié industriellement, car d'une part il entraîne des inhomogénéités des propriétés du matériau (p.ex. mécaniques) à l'échelle de la pièce, et d'autre part ces défauts sont très difficilement corrigibles avec des traitements thermiques ou mécaniques. Ils résultent de nombreux phénomènes lors de la solidification [Riv11] :

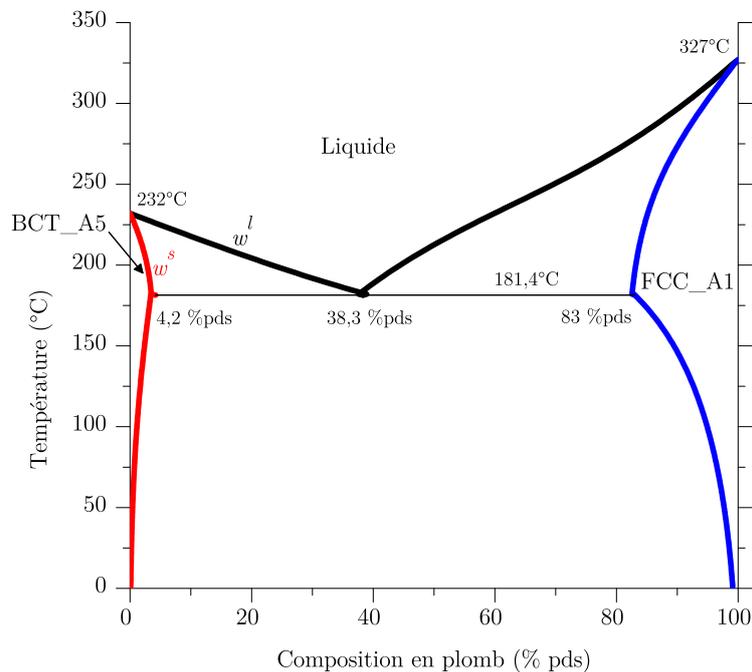
- la contraction ou dilatation thermique, due à l'évolution de la masse volumique en fonction de la température,
- le retrait à la solidification, qui correspond au changement de masse volumique entre le liquide et le solide,
- les mouvements de convection, qu'elle soit naturelle ou forcée,
- la déformation de la zone pâteuse par des forces extérieures,
- le mouvement des grains équiaxes, dû à la gravité et/ou à la convection,
- la diffusion des espèces chimiques.

Tous ces phénomènes, hormis la diffusion chimique, correspondent à un mouvement relatif du solide et du liquide. L'accumulation de soluté aura pour conséquence de diminuer localement la surfusion, et donc de ralentir voire stopper la croissance des grains, de changer les fractions de phases, leur composition, ou même de former de nouvelles phases en fin de solidification.

Les mésoségrégations sont des ségrégations à une échelle intermédiaire formant des



**FIGURE I.6** Mésoségrégations (*freckles*) verticales dans un superalliage base nickel (MAR-M200), pour un lingot cylindrique de 10 cm de diamètre [Gia70].



**FIGURE I.7** Diagramme de phase du système étain-plomb, tiré de la base de données PBIN avec le logiciel Thermo-Calc.

canaux fortement concentrés en soluté. La formation de ces canaux est liée à la vitesse du liquide dans la zone pâteuse (et donc à sa perméabilité) et à la vitesse de refroidissement. Ces défauts apparaissent notamment dans les alliages base fer et nickel, comme illustré sur la figure I.6. Les phénomènes physiques en jeu sont les mêmes que pour la macroségrégation, avec éventuellement des déformations dues au procédé.

Enfin, la microségrégation désigne la distribution des espèces chimiques à l'échelle de la microstructure, typiquement  $\lambda_2$ . La microségrégation est due au fait que, lors de la formation d'une phase solide, cette phase n'a pas la même composition que la phase liquide dans laquelle elle se forme. À l'équilibre thermodynamique, la composition des phases est donnée en fonction de la température et de la pression par le diagramme de phase, dont un exemple est donné à la figure I.7 pour le système Sn-Pb. Considérons un alliage hypoeutectique riche en Sn : pour une température donnée, le solide (phase BCT\_A5) a une composition  $w^s$  inférieure à celle du liquide,  $w^l$ . Le rapport entre ces deux compo-

sitions est nommé coefficient de partage et noté  $k = w^s/w^l$ . Dans les métaux, le liquide est généralement plus riche en soluté que le solide, et  $k < 1$ . Cette différence implique qu'au cours de la solidification, le liquide va progressivement s'enrichir en soluté : c'est la microségrégation. De plus, si on prend en compte les phénomènes de diffusion, de retrait, etc., on ne peut considérer le liquide et le solide uniformes en concentration : d'après le diagramme de phases, le dernier solide formé sera plus riche qu'au début. Il apparaît donc des profils de composition dans les deux phases, et on ne peut pas dire que les compositions moyennes du liquide et du solide sont données par l'équilibre thermodynamique. Les différentes approximations (ou modèles de microségrégation) seront décrites dans la section 2.2.

## 2 Modèles de solidification

Plus que la nature des modèles, c'est leurs échelles de longueur et de temps qui les caractérisent. La figure I.8 est une représentation simplifiée des différentes échelles en jeu lors de la solidification. L'interface solide-liquide  $y$  est représentée de l'échelle macroscopique jusqu'à l'atome. À chaque image expérimentale est associée un modèle, dont l'objectif est de représenter les phénomènes physiques à cette échelle. Ces modèles sont présentés ci-après.

### 2.1 Modélisation directe de la microstructure

La première idée est de suivre l'interface solide-liquide à l'échelle de la dendrite. Pour les métaux, cette échelle se situe à l'ordre de  $\lambda_2$ , c'est-à-dire moins de 100  $\mu\text{m}$ .

#### Modélisation atomique

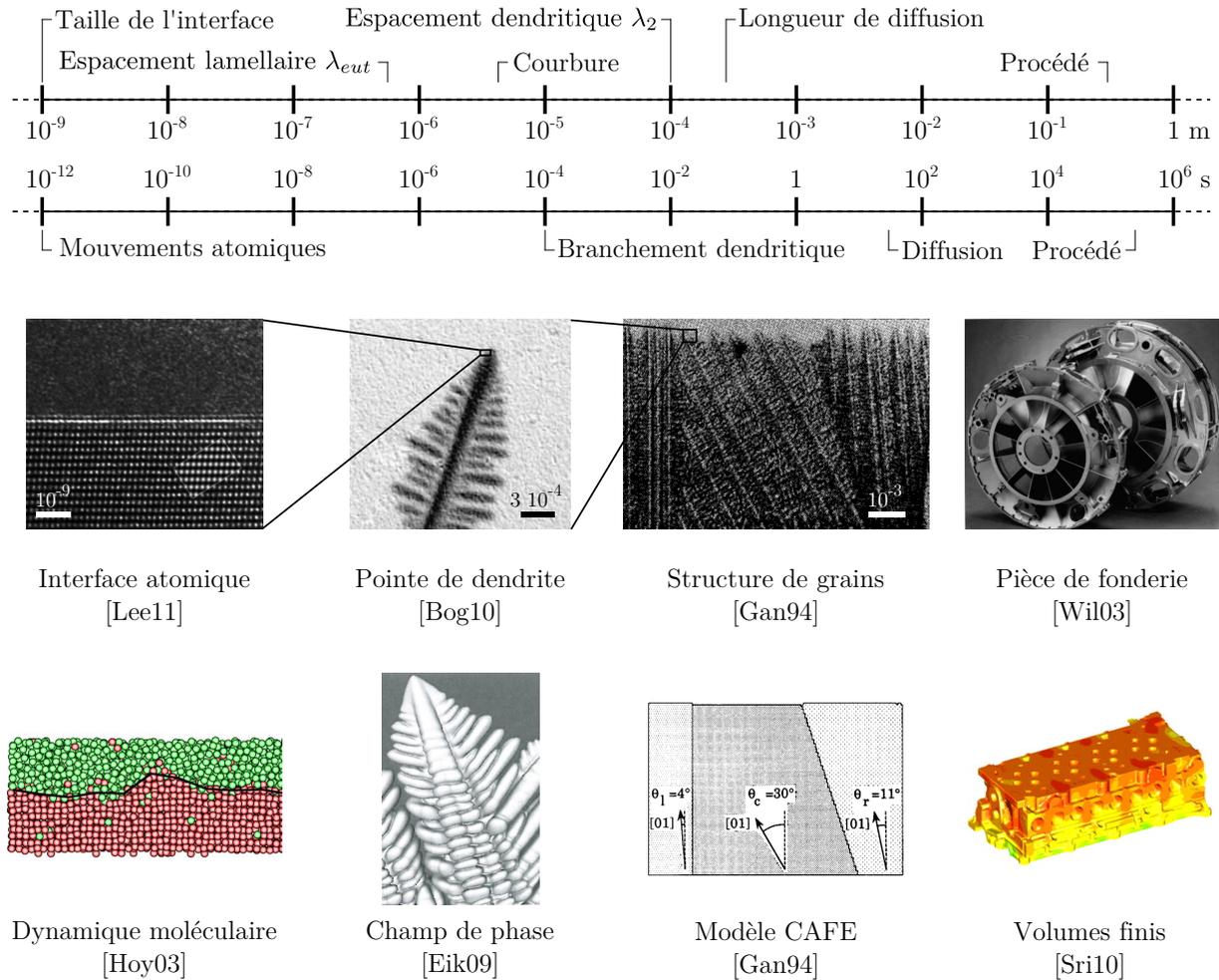
L'épaisseur de l'interface solide-liquide est de l'ordre de  $10^{-9}$  m, c'est-à-dire quelques atomes. La modélisation de cette interface à cette échelle a pour avantage de nécessiter peu de paramètres en entrée. Les plus gros problèmes posés sont le temps de calcul sur des domaines importants, et les phénomènes de diffusion de chaleur et/ou de soluté, qui prennent place à une échelle de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-4}$  m.

Avec l'augmentation des capacités de calcul, ces modèles se sont fortement développés ces dernières années. Aujourd'hui, les plus largement utilisées sont les modèles de dynamique moléculaire (DM), de Monte-Carlo, les dérivés de la théorie de la fonctionnelle de la densité (*Density Functional Theory*, DFT) et le champ de phase cristallin. Ils sont décrits très brièvement ici :

- Les modèles de dynamique moléculaire considèrent les atomes comme des sphères. Le calcul de leur mouvement est effectué à partir de leur potentiel, qui est soit donné soit déduit par des méthodes *ab initio*<sup>1</sup>. Comme ces modèles suivent les mouvements atomiques, ils sont limités par leur pas de temps (typiquement  $10^{-12}$  s) à des phénomènes très courts, de l'ordre de  $10^{-6}$  secondes. Bien que les dernières avancées permettent de réduire ce problème [Mir04], les temps de calcul restent prohibitifs sur des échelles de temps classiques.

---

1. Ces méthodes se basent sur la mécanique quantique pour calculer l'état électronique des atomes pour chaque configuration. Malheureusement, les temps de calcul additionnels réduisent encore l'échelle de temps des phénomènes modélisables.



**FIGURE I.8** Différentes échelles de l'interface solide-liquide, vue expérimentalement (haut) et par des modèles numériques (bas). Les échelles expérimentales ne sont pas directement comparables, car toutes ces grandeurs varient selon le matériau, et d'autant plus entre métaux et alliages organiques.

- Les modèles de Monte-Carlo se basent sur un tirage aléatoire qui se veut assez important pour être fidèle. Dans le cas de la transformation liquide-solide, il s'agit de faire évoluer l'interface par transitions stochastiques, dépendantes de l'état initial, vers un état final. Il est possible avec ces modèles de simuler des phénomènes plus lents qu'avec la dynamique moléculaire. Cependant, la nature du modèle implique que tous les phénomènes physiques soient explicitement décrits dans la loi statistique, et c'est essentiellement pour cela que les résultats obtenus sont souvent qualitatifs. De plus, le pas de temps numérique ne peut pas être directement relié au pas de temps physique : l'évolution temporelle est donc purement qualitative. Pour des exemples, on se référera aux travaux de Das *et al.* [Das00, Das02].
- Les modèles basés sur la DFT, initialement développée par Thomas et Fermi [Tho27, Fer27], décrivent l'interaction entre atomes par leur densité électronique (plutôt que par leur fonction d'onde). La théorie de la DFT a été reprise dans de nombreux domaines, avant d'être appliquée à la solidification [Mik91]. Ces méthodes, qui permettaient auparavant d'atteindre des échelles plus fines, ont été délaissées en faveur de la dynamique moléculaire.

- Plus récemment, le champ de phase cristallin (*Phase Field Crystal*, PFC), a été développé en remplaçant les atomes de la dynamique moléculaire par un champ continu périodique, rendant compte du réseau cristallin [Eld07, Emm11]. Ces modèles ont pour avantages de pouvoir modéliser le comportement du matériau à l'échelle atomique, mais sur des temps beaucoup plus longs que la dynamique moléculaire.

Outre le comportement général à cette échelle, ces méthodes sont utilisées pour obtenir des paramètres clés du matériau : l'énergie de surface solide-liquide et le coefficient cinétique.

Concernant l'énergie de surface, bien que plusieurs méthodes expérimentales soient disponibles [Kel91, Gün85], les modèles atomistiques se sont imposés depuis quelques années de par leur facilité de mise en œuvre et leur capacité à calculer le caractère anisotrope de l'énergie de surface. Celui-ci, bien que faible, se doit d'être connu précisément. En effet, cette anisotropie est responsable de la sélection des directions de croissance préférentielles des structures cristallines, et influence fortement la vitesse de croissance et la germination hétérogène [Rap10]. Or, les rares mesures dans les métaux ont montré que l'anisotropie était de l'ordre de 1 à 2% [Liu01, Nap02], ce qui est en deçà de l'incertitude atteignable par les modèles atomistiques. Pour pallier ce défaut, plusieurs techniques numériques ont été développées, qui ont montré un bon accord avec les valeurs expérimentales [Hoy03].

De manière similaire, le coefficient cinétique et son anisotropie n'ont pu être mesurés expérimentalement jusqu'à présent, aussi les simulations atomistiques ont peu à peu remplacé les approximations habituelles pour déterminer ces paramètres. Pour plus de détails, on se référera à [Hoy03]. Notons que ces méthodes ont été employées pour déterminer l'énergie d'interface et le coefficient cinétique de substances pures, hormis quelques rares exceptions [Ast02].

## Modélisation par milieux continus

La nécessité de suivre l'interface solide-liquide à l'échelle des branchements dendritiques a lancé le développement de modélisation par milieux continus, c'est-à-dire où les phases ont des propriétés variant continûment et ne sont plus considérées comme un ensemble de particules. Cette approche permet de simplifier considérablement les modèles et de les résoudre sur des domaines et des temps de solidification bien plus importants. En contrepartie, des paramètres additionnels doivent être fournis, tels que l'énergie de surface et le coefficient cinétique.

**Suivi de front** Un des modèles les plus « naturels » est la méthode de suivi de front telle qu'initiée par Tryggvason [Jur96, Try01]. Dans cette approche, la position du front est déterminée de façon explicite en intégrant un terme source  $J$  sur l'interface solide-liquide dans l'équation de conservation de l'énergie, par exemple en diffusion pure :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho C_p T) = \nabla \cdot \kappa \nabla T + J \quad (\text{I.5})$$

$$J = \int_{\Omega} j \delta(x - x_f) dV \quad (\text{I.6})$$

avec  $\delta(x - x_f)$  fonction de Dirac non nulle sur l'interface seulement, et  $j$  terme source de chaleur provenant de la différence d'enthalpie des deux phases. Par exemple :

$$j = \rho L v_{\vec{n}} \quad (\text{I.7})$$

où  $v_{\vec{n}}$  est la vitesse normale à l'interface. À cela s'ajoute la condition de Gibbs-Thomson à l'interface :

$$T_f = T_{eq} - \frac{\sigma^r(\vec{n})}{\Delta s} K - \frac{v}{\mu(\vec{n})} \quad (\text{I.8})$$

avec  $T_f$  la température de l'interface,  $K$  la courbure de l'interface,  $\Delta s$  l'entropie de fusion volumique,  $\mu(\vec{n})$  le coefficient de mobilité anisotrope et  $\sigma^r(\vec{n})$  la rigidité de l'interface anisotrope, définie à partir de l'énergie d'interface [Dan09]. Le terme cinétique a ici été négligé.

La détermination de la courbure et de la normale à l'interface est réalisée par un fit polynomial de la position de l'interface sur un voisinage donné. Cette étape reste un point sensible de ces approches.

Ce modèle s'est peu à peu enrichi pour aboutir à des résultats avancés en termes de physique considérée, on pourra par exemple voir les travaux d'Al-Rawahi *et al.* [AR04] pour des calculs en 3D avec écoulement du liquide. Cependant, ce type de modèle est aujourd'hui peu utilisé. La principale raison réside dans la difficulté à suivre des interfaces complexes, en particulier les changements de topologie tels que la fusion et la fragmentation des bras. Ils restent malgré tout utilisés pour calibrer les paramètres numériques d'autres modèles, par exemple pour les calculs en champ de phase.

**Level-set** Pour dépasser les limitations du suivi de front classique, des modèles basés sur les fonctions level-set ont été développés. Ces fonctions sont utilisées dans de nombreux domaines où il est nécessaire de suivre une interface, car elles permettent de garder simplement une approche eulérienne indépendamment de la complexité de l'interface. Une fonction level-set,  $\phi_{LS}$ , est une fonction signée qui varie continûment d'une valeur positive à l'intérieur du domaine, à une valeur négative à l'extérieur. L'interface elle-même est définie par  $\phi_{LS} = 0$ . On peut assimiler  $\phi_{LS}$  à la distance signée à l'interface.

Cette méthode a été appliquée dans le cadre de la solidification en deux et trois dimensions [Kim00], avec une formulation très proche du suivi de front. La principale différence est que le déplacement de l'interface se fait indépendamment par la résolution de l'équation level-set :

$$\frac{\partial \phi_{LS}}{\partial t} + v_{LS} |\nabla \phi_{LS}| = 0 \quad (\text{I.9})$$

où  $v_{LS}$  est ici le champ de vitesse déterminé à partir de la condition de Gibbs-Thomson (équation I.8). La position du front étant ensuite recalculée, l'équation de conservation de l'énergie peut être résolue.

L'avantage des fonctions level-set est leur habilité à représenter des changements complexes de topologie. De plus, de par leur nature, le calcul de la courbure de l'interface est grandement facilité. Ces modèles ont également donné lieu à des résultats avancés, notamment pour des alliages binaires et multicomposés en 3D, avec écoulement [Zab06].

**Champ de phase** Une approche très similaire dans l'esprit est le champ de phase. Ces modèles introduisent une fonction  $\phi$  qui varie continûment d'une valeur constante dans un domaine à une autre constante dans l'autre domaine. Par exemple, de façon usuelle,  $\phi \in [0,1]$  avec  $\phi = 0$  dans le liquide et  $\phi = 1$  dans le solide. Les valeurs intermédiaires correspondent à l'interface solide-liquide. La différence fondamentale avec la méthode

level-set est qu'une épaisseur  $W_{PF}$  est ainsi donnée à l'interface elle-même, qui devient diffuse. Les phases sont donc ici représentées par un champ continu. Le principe du champ de phase est de minimiser l'énergie libre du système,  $F_H$ , définie par une intégration de type Ginzburg-Landau sur le domaine  $\Omega$  par :

$$F_H = \int_{\Omega} \left( f_H(\phi) + \frac{\varepsilon_{\phi}^2}{2} |\nabla\phi|^2 \right) d\Omega \quad (\text{I.10})$$

avec  $f_H(\phi)$  l'énergie libre de Helmholtz et  $\varepsilon_{\phi}$  un coefficient positif. Le terme du gradient est introduit à cause de la représentation diffuse de l'interface. Le système évolue alors suivant :

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = -M^{\phi} \frac{\partial F_H(\phi)}{\partial t} \quad (\text{I.11})$$

où  $M^{\phi}$  est la mobilité de la phase. La dérivation des équations I.10 et I.11 permet, en choisissant une description de la variation de  $\phi$  à l'interface, de faire évoluer l'interface pour minimiser l'énergie  $F$ . Dans le cas simple de deux phases dans une substance pure, ces équations reviennent à la condition de Gibbs-Thomson.

Le champ de phases présente de nombreux avantages et est devenu le modèle de prédilection à cette échelle pour la solidification. En particulier, il n'est pas nécessaire de calculer *a posteriori* la courbure de l'interface et la normale, car elles sont explicitement calculées dans la résolution des équations. En contrepartie, les résultats sont mauvais avec une interface trop large : il est admis qu'elle doit être inférieure à la longueur capillaire pour converger vers la solution donnée par les modèles d'interface nette [Bec99], ce qui peut être très problématique dans les problèmes avec convection malgré le remaillage et autres optimisations numériques [Pro99]. L'analyse de l'épaisseur d'interface requise est souvent référée comme "analyse asymptotique", et notamment effectuée en comparaison avec des modèles d'interface nette (level-set par exemple).

Notons également que les calculs sont rendus difficiles si l'anisotropie de l'énergie d'interface est grande ou faible [Egg01]. Enfin, le paramètre  $M^{\phi}$  peut être problématique dans le sens où sa valeur est supposée assez grande pour ne pas avoir d'influence, ce qui n'est pas toujours réalisable numériquement. De plus amples détails sont donnés dans le chapitre IV.

Malgré tout, ces modèles ont beaucoup évolué depuis les premières applications au champ de la solidification [Cag89] pour s'étendre aux alliages [Kar01] et plus récemment aux matériaux multiphasés [Böt06, Eik06, Eik09].

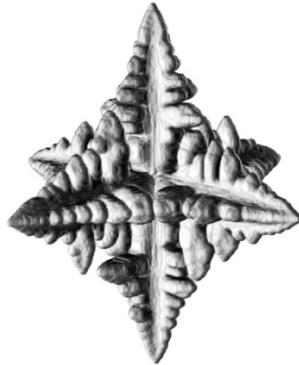
**Automate cellulaire microscopique** Les méthodes d'automate cellulaire ont été, entre autres, appliquées à la prédiction de structures dendritiques pendant la solidification. De par le fait que les champs globaux sur tout le domaine (température, composition) influencent indirectement l'état local des cellules, ces modèles ont été baptisés *Modified Cellular Automata*, MCA. Pour les différencier du modèle CAFE, ils seront ici désignés en tant qu'automate cellulaire microscopique.

Plusieurs versions ont été développées, mais les modèles les plus courants se basent sur le même principe que le champ de phase. La différence est que l'épaisseur d'interface est simplement égale à une rangée de cellules, ce qui permet d'avoir des tailles de cellule plus grande. On pourra voir en particulier [Nas99, Kra09].

Ces méthodes ont été développées pour leur rapidité d'exécution, et donc potentiellement leur habilité à être utilisées sur des domaines plus importants que le champ de

phase. Leur principal inconvénient est l'anisotropie induite par une grille régulière de cellules carrées ou cubiques, peu évidente à effacer [Kra09]. Cependant, ces méthodes ont fait l'objet de nombreux efforts pour arriver à des résultats quantitatifs, notamment en les confrontant avec les modèles champ de phase [Yin11, Cho12] ou suivi de front [Zhu07].

Notons finalement l'existence de modèles automate cellulaire où la cinétique de l'interface est calculée à partir d'équations analytiques, par exemple KGT [Zhu01]. Cette approche permet d'accélérer les temps de résolution, mais le caractère quantitatif des résultats n'est pas clair.



**FIGURE I.9** Croissance d'une dendrite équiaxe 3D d'Al-4%*pds* Cu par une méthode automate cellulaire microscopique [Cho12].

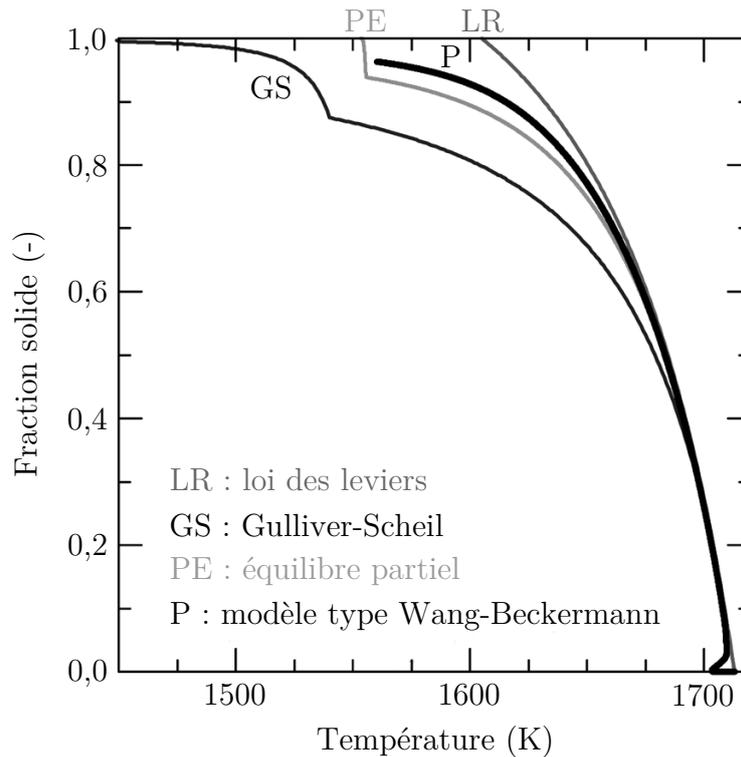
## 2.2 Modélisation indirecte de la microstructure

La modélisation directe de la microstructure trouve vite ses limites en termes de temps de solidification et de volume simulé. Pour dépasser ces limitations, des modèles indirects, n'offrant pas une description morphologique de la structure, ont été proposés. Il peut s'agir de calculer une cinétique de croissance : les modèles KGT ou de Jackson-Hunt évoqués précédemment en sont des exemples. Il peut aussi s'agir de suivre la microségrégation. Le but n'est pas alors de suivre explicitement le déplacement de l'interface solide-liquide mais de calculer des variations de fractions de phases et de compositions en fonction des conditions locales (p.ex. la température). La morphologie interne des grains (ou microstructure) n'est donc pas connue dans ces modèles. Le principal modèle auquel se réfère la littérature aujourd'hui est celui de Wang-Beckermann [Wan93a, Wan93b], basé sur les travaux de Thévoz *et al.* concernant la solidification dendritique équiaxe [Thé89]. Il s'agit d'un modèle semi-analytique dont l'intérêt est double :

- représenter une diffusion finie du soluté dans le liquide et le solide,
- être à même prendre en compte une surfusion de croissance calculée par un modèle cinétique distinct.

Ce modèle distingue un liquide extradendritique, noté  $l$ , et un liquide interdendritique, noté  $d$ , ce dernier étant considéré homogène et à l'équilibre thermodynamique. Les fractions de phases et leur composition sont données par les bilans de masse et de composition entre  $l$ ,  $d$ , et le solide  $s$ , avec l'hypothèse que les échanges de masse et de soluté se font uniquement entre  $l$  et  $d$  et entre  $d$  et  $s$ .

On peut noter que le modèle de Wang-Beckermann permet de retrouver plusieurs autres approximations. D'une part est retrouvée l'approximation de la loi des leviers



**FIGURE I.10** Fraction solide en fonction de la température dans un alliage Fe-1%Cr-10%C, telle que prédite par plusieurs modèles de micro-ségrégation : loi des leviers, Gulliver-Scheil, équilibre partiel ou basé sur le modèle Wang-Beckermann, avec diffusion finie dans le solide et le liquide [Zha10].

(qui suppose l'équilibre thermodynamique complet entre phases) quand les coefficients de diffusion tendent vers l'infini. Cette approche n'est acceptable que lorsque le nombre de Fourier dans le solide,  $Fo^s$ , est grand, par exemple pour des solutés interstitiels comme le carbone et l'azote. D'autre part, le modèle tend vers l'approximation de Gulliver-Scheil [Gul09, Sch42] quand  $Fo^s = 0$  et  $Fo^l \rightarrow \infty$ . Cette dernière approche est applicable notamment pour les alliages d'aluminium et de nickel. La figure I.10, tirée de Zhang *et al.* [Zha10], représente la fraction solide en fonction de la température pour différentes approximations : loi des leviers, Gulliver-Scheil, équilibre partiel, et modèle à diffusion finie analogue à celui de Wang-Beckermann. On constate des variations assez importantes entre ces approximations, et que les fractions de phases prédites sont différentes.

Par la suite, plusieurs extensions ont été développées pour prendre en compte la convection [Wan96a, Wan96b, App08], les alliages multicomposés [Rap99, App08, Zha10], les transformations péritectiques et eutectiques [Tou09, Zha10]. L'hypothèse d'un liquide interdendritique uniforme a également été levée [Tou09, Zha10].

## 2.3 Modélisation indirecte de la structure de grains

### Prise de moyenne

Les modèles de micro-ségrégation décrits ci-dessus sont en tant que tels des modèles 1D, donc limités dans leurs applications et les phénomènes physiques pris en compte (maturation des bras secondaires, etc.). Aussi, il est très tôt apparu la nécessité de modéliser

ces phénomènes en 2 ou 3 dimensions, sur des domaines à l'échelle du procédé. Pour cela, Wang et Beckermann ont introduit en même temps que leur modèle de microségrégation l'approche de prise de moyenne des grandeurs physiques sur un Volume Élémentaire Représentatif (VER). Les grandeurs en question sont par exemple les fractions de phases et leur composition. Ce volume doit être suffisamment petit pour représenter les hétérogénéités à l'échelle du procédé, par exemple en composition, mais aussi suffisamment grand pour avoir des grandeurs moyennes correctes. Typiquement, ce volume est de l'ordre de plusieurs  $\lambda_2$ . Définissons l'opérateur de prise de moyenne  $\langle \rangle$  sur le VER  $\Omega$  d'une grandeur  $x$  :

$$\langle x^k \rangle = \frac{1}{V^\Omega} \int_{\Omega} \psi^k x^k d\Omega \quad (\text{I.12})$$

avec  $V^\Omega$  le volume du VER,  $k$  la phase ou la structure étudiée, et  $\psi^k$  la fonction de présence de  $k$ . De même, on définit la prise de moyenne intrinsèque comme :

$$\langle x^k \rangle^k = \frac{1}{V^k} \int_{\Omega} \psi^k x^k d\Omega = \frac{\langle x^k \rangle}{g^k} \quad (\text{I.13})$$

où  $g^k$  est la fraction volumique de  $k$  dans le VER :

$$g^k = \frac{V^k}{V^\Omega} \quad (\text{I.14})$$

Les fonctions de présence doivent respecter les deux théorèmes de la prise de moyenne, à savoir dans le temps :

$$\left\langle \frac{\partial \psi^k}{\partial t} \right\rangle = \frac{\langle \partial \psi^k \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V^\Omega} \sum_{j(j \neq k)} \left( \int_{S^{kj}} \psi^k v^{kj} \cdot \vec{n}^{kj} dS \right) \quad (\text{I.15})$$

et dans l'espace :

$$\langle \nabla \psi^k \rangle = \nabla \langle \psi^k \rangle + \frac{1}{V^\Omega} \sum_{j(j \neq k)} \left( \int_{S^{kj}} \psi^k \vec{n}^{kj} dS \right) \quad (\text{I.16})$$

avec  $S^{kj}$  la surface de l'interface entre  $k$  et  $j$ ,  $\vec{n}$  et  $v$  respectivement normale et vitesse de l'interface. À partir de ces théorèmes, les différentes équations de conservation (masse, mouvement, énergie) peuvent être développées sur le VER [Dan09]. Puis, par exemple en éléments finis, un VER peut être associé à chaque élément du maillage et ces équations résolues sur des domaines macroscopiques, comme des pièces entières de fonderie ou des lingots de coulée. La prise de moyenne permet de cette manière de coupler les équations de microségrégation et les équations globales de transport d'énergie et de soluté.

## Densité de grains

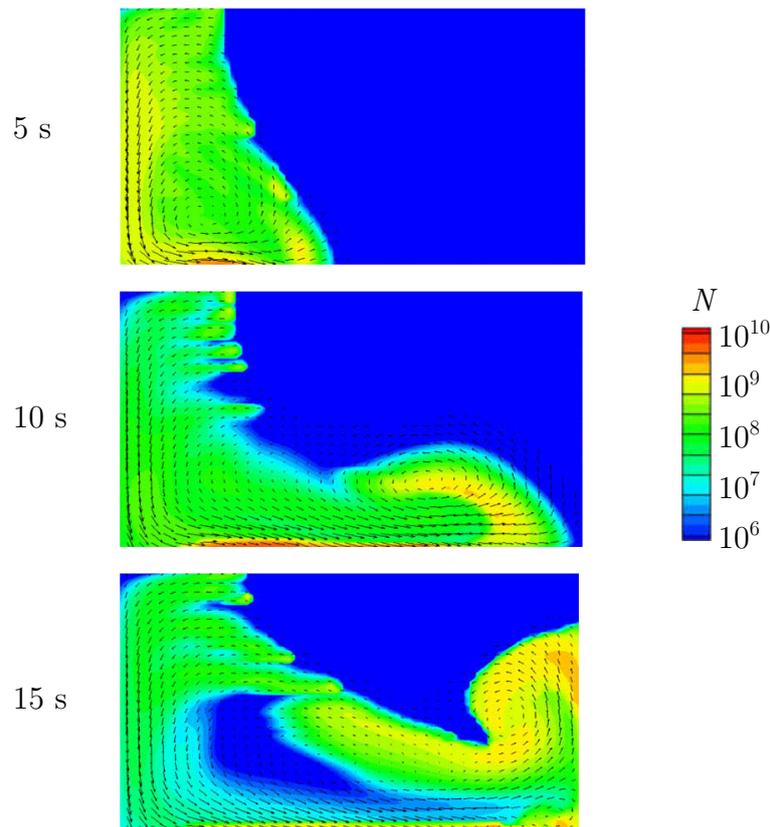
Le fait de ne pas connaître la structure de grains est un problème qui peut être partiellement résolu par des modèles qui prédisent une densité de grains  $N$  sur le VER. Un des premiers modèles de ce type [Thé89] propose une variation de la fraction de solide

basée sur la densité de grains, en supposant une forme sphérique des grains. Il est en ce sens adapté à la solidification équiaxe :

$$g^s = N \frac{4\pi R^3}{3} g_i^s \quad (\text{I.17})$$

où  $R$  est le rayon moyen des grains et  $g_i^s$  la fraction de solide interne au grain moyen représentatif, donnée par un modèle de microségrégation. La densité de grains évolue de par la germination de nouveaux grains, qui est donnée par un modèle de germination instantanée, supposant une distribution gaussienne de la densité de grains pouvant germer en fonction de la surfusion (voir 1.1). Le rayon des grains évolue avec une vitesse de croissance donnée par un modèle de cinétique de pointe, LGK par exemple. Cette approche permet, quand elle est couplée à la résolution macroscopique des équations de transport, de prendre en compte la surfusion de germination et de croissance, et de prédire entre autres des phénomènes de recalescence.

Par la suite, ce modèle a évolué pour être utilisé avec des approches de microségrégation avancées [Com96], puis pour prendre en compte le transport des grains [Wan96a, Zal10a]. Un exemple est donné par la figure I.11, qui est une simulation de l'évolution de la densité de grains en présence d'un écoulement dû à la convection naturelle.



**FIGURE I.11** Densité de grains et vitesse du solide en présence de convection naturelle dans un alliage Sn-5%Pb, simulée sur un lingot 2D de 0,1 x 0,06 m par un modèle indirect et la méthode des volumes finis [Zal10b].

Le problème principal des modélisations indirectes des structures de grains est la difficulté à rendre compte du changement de morphologie des grains. Ces modèles doivent

faire l'hypothèse d'un type de croissance et d'une forme des grains. Généralement, ils s'appliquent aux croissances équiaxes, bien que des critères empiriques de transition colonnaire-équiaxe puissent être aussi utilisés, comme le critère de Hunt [Hun84]. Pour pallier ce défaut, des modèles prédisant directement la structure de grains (mais pas leur microstructure interne) ont été développés et sont présentés dans la section ci-dessous.

## 2.4 Modélisation directe de la structure de grains

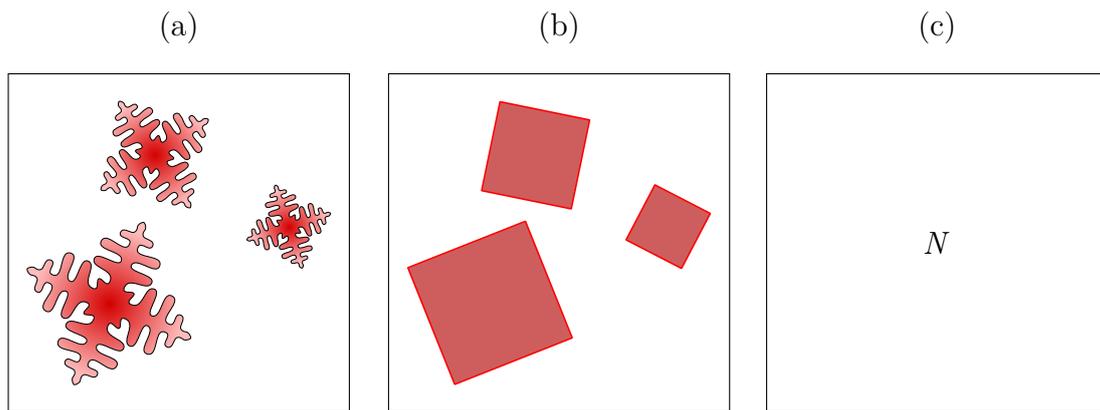
### Modèle CAFE

Le modèle CAFE, ou *C*ellular *A*utomaton-*F*inite *E*lement model, est décrit extensivement dans les chapitres suivants et est abordé ici dans le but de le situer par rapport aux autres modèles de solidification, et de restituer ses diverses évolutions.

Initié par Rappaz et Gandin [Rap93], le modèle automate cellulaire-éléments finis a été un des premiers à chercher à modéliser la structure de grains plutôt que la morphologie interne des grains. Il reprend en ce sens la démarche de Brown et Spittle pour traiter la croissance des grains [Bro89, Spi89]. Il repose sur deux hypothèses fondamentales :

- la forme de l'enveloppe d'un grain est localement donnée par une forme géométrique simple,
- la croissance de cette forme géométrique peut être calculée selon les directions préférentielles par un modèle de cinétique de pointe.

Ces simplifications permettent de modéliser la croissance de grains, mais en perdant la description microscopique des bras de dendrites, ce qui le définit comme un modèle "méso-scopique". Un exemple est donné à la figure I.12.b, en comparaison avec des modèles suivant directement la microstructure (a) ou suivant indirectement la macrostructure (c). Les fractions de phases dans les enveloppes n'étant pas données par l'automate cellulaire, le modèle CAFE doit être utilisé avec un modèle de microségrégation qui permet de calculer des grandeurs moyennes locales, telles que les fractions de phases et leurs compositions.



**FIGURE I.12** Représentation schématique dans un VER (a) d'une croissance dendritique équiaxe, (b) du suivi d'enveloppes correspondant tel qu'introduit dans le modèle CAFE et (c) de grandeurs caractéristiques typiques pour les modèles macroscopiques indirects (p.ex. la densité de grains  $N$ ).

Dans la continuité des travaux initiaux [Rap93, Gan94], plusieurs couplages ont été introduits : d'abord thermique [Gan99], puis avec la macroségrégation [Gui07] et enfin

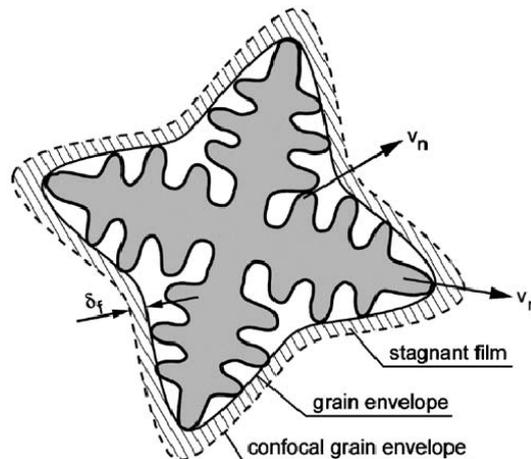
avec le modèle de microségrégation de Wang-Beckermann [Gan08]. Malgré le fait qu’une première description 3D du modèle ait été donnée en 1999 [Gan99], tous les calculs couplés ont par la suite été effectués en 2D uniquement, notamment à cause des ressources requises par les calculs en trois dimensions. Notons également que le code commercial ProCAST implémente le modèle CAFE et est utilisé fréquemment dans les calculs présentés dans la littérature [Car00]. Cependant, ce code ne reprend à ce jour aucun de ces couplages [Gan99, Car12].

### Champ de phase mésoscopique

On trouve dans la littérature très peu de modèles mésoscopiques en solidification. En dehors du modèle CAFE, le plus avancé est certainement le “champ de phase mésoscopique”, basé sur les travaux de Steinbach *et al.* [Ste99, Ste05] et étendu par la suite aux alliages binaires [Del10]. Ce modèle cherche également à calculer l’enveloppe des grains, sous la forme d’une surface continue connectant les pointes de dendrite, telle que schématisée par la figure I.13. Cette enveloppe est doublée d’une enveloppe “confocale” délimitant le champ d’interaction solutal, et dont l’épaisseur critique a été discutée [Ste99, Ste05]. Ces deux enveloppes sont suivies par une unique fonction type level-set  $\phi_{LS}$ . L’évolution de  $\phi_{LS}$  est calculée en tout point selon une vitesse déterminée par la relation :

$$v(\vec{n}) = v_{LGK} |\vec{n}| \cos \theta_{\vec{n}} \quad (\text{I.18})$$

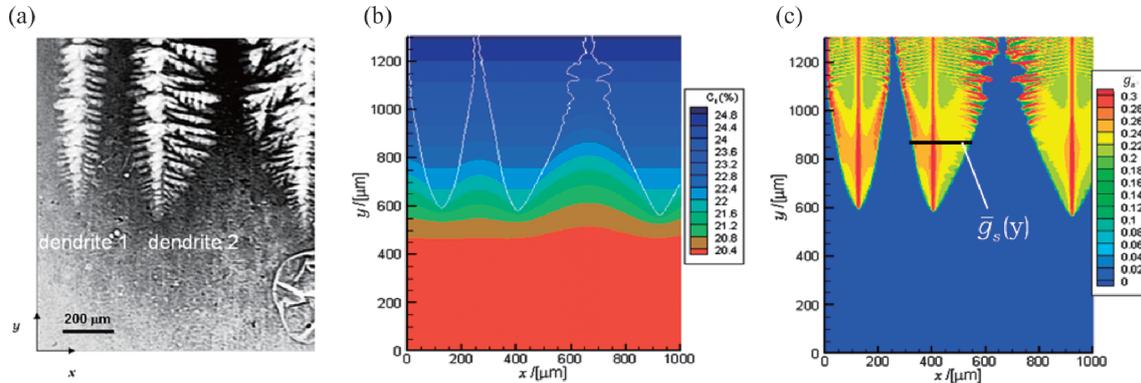
où  $v_{LGK}$  est la vitesse donnée par le modèle de cinétique de pointe LGK,  $\vec{n}$  la normale à l’interface et  $\theta_{\vec{n}}$  l’angle entre cette normale et le bras de dendrite principal le plus proche. Le paramètre critique de ce modèle est l’épaisseur de l’enveloppe confocale, puisque la concentration “loin de l’interface” apparaissant dans le modèle de cinétique de pointe,  $w^{l\infty}$ , est prise au niveau de cette enveloppe. La détermination de ce paramètre n’est pas encore claire, et le recours à des modèles microscopiques (champ de phase, etc.) pour calibrer cette approche sera sans doute nécessaire à l’avenir.



**FIGURE I.13** Illustration de l’enveloppe de grain et de l’enveloppe confocale suivies par le modèle champ de phase mésoscopique [Ste05]. Bien que la structure dendritique des bras secondaires soit schématiquement représentée ici, elle n’est pas prédite par le modèle.

La zone pâteuse à l’intérieur de l’enveloppe de grain est considérée homogène, avec un liquide à l’équilibre thermodynamique. La résolution des équations de conservation de la

masse et du soluté permet de connaître la fraction interne de solide et de liquide. Malgré tout, ce modèle est encore limité à des calculs 2D, sans diffusion dans le solide et sans convection. De plus, il n'a pour l'instant été appliqué qu'à de petits domaines (de l'ordre de  $1 \text{ mm}^2$ ) et avec peu de grains. Il offre cependant une alternative intéressante au modèle CAFE au niveau de la forme des enveloppes de grains.



**FIGURE I.14** Exemple de simulation par champ de phase mésoscopique [Del10] : (a) croissance expérimentale de trois dendrites dans un alliage Al-20%Cu, et prédictions (b) du champ de composition et de l'enveloppe de grain, et (c) de la fraction solide moyenne.

## 2.5 Conclusion sur les modèles de solidification

Il ressort de cette revue bibliographique que l'on peut répertorier les modèles de solidification selon plusieurs caractéristiques, dont les plus importantes sont :

- leur échelle d'application,
- leur habilité à prédire des morphologies dendritiques, des enveloppes de grains ou des fractions moyennes de phase,
- la nature de l'interface solide-liquide, nette ou diffuse,
- la croissance de l'interface, basée sur la résolution d'équations de conservation ou sur des modèles de cinétique de pointe,
- leur support mathématique, qu'il soit champ de phase, level-set, automate cellulaire, etc.

Il apparaît que de nombreuses combinaisons ont été expérimentées, trouvant plus ou moins d'écho dans la littérature. Le tableau I.2 résume les tailles de domaines et les principales entrées et sorties pour les différentes échelles présentées. Bien entendu, ces entrées et sorties sont susceptibles de varier d'une implémentation à l'autre, selon les phénomènes physiques pris en compte. Il est intéressant de noter que de nombreuses entrées peuvent être déduites du modèle à l'échelle inférieure.

## 3 Calcul parallèle

Depuis plusieurs années, un intérêt croissant et multidisciplinaire est porté au calcul parallèle, ce qui s'explique principalement par le coût de plus en plus faible des unités de calcul. La recherche d'une exploitation optimisée de *clusters* pouvant atteindre plusieurs milliers d'unités a cependant mis en avant des problèmes nouveaux, tant au

Modèles	Domaine (m)	Exemple	Entrées	Sorties
Atomiques	$10^{-9}$ $10^{-7}$	Dynamique moléculaire	Potentiel atomique	Énergie de surface Coefficient cinétique
Microscopiques	$10^{-6}$ $10^{-3}$	Champ de phase	Modèle de germination Énergie de surface Coefficient cinétique	Morphologie interne des grains Composition des phases Cinétique de pointe
Mésoscopiques	$10^{-4}$ $10^{-1}$	CAFE	Modèle de germination Cinétique de pointe Microségrégation Longueurs de diffusion Morphologie interne des grains	Structure de grains Fractions de phases Compositions moyennes
Macroscopiques	$10^{-3}$ 1	Prise de moyenne	Modèle de germination Cinétique de pointe Microségrégation Longueurs de diffusion Morphologie interne des grains	Densité de grains Fractions de phases Compositions moyennes

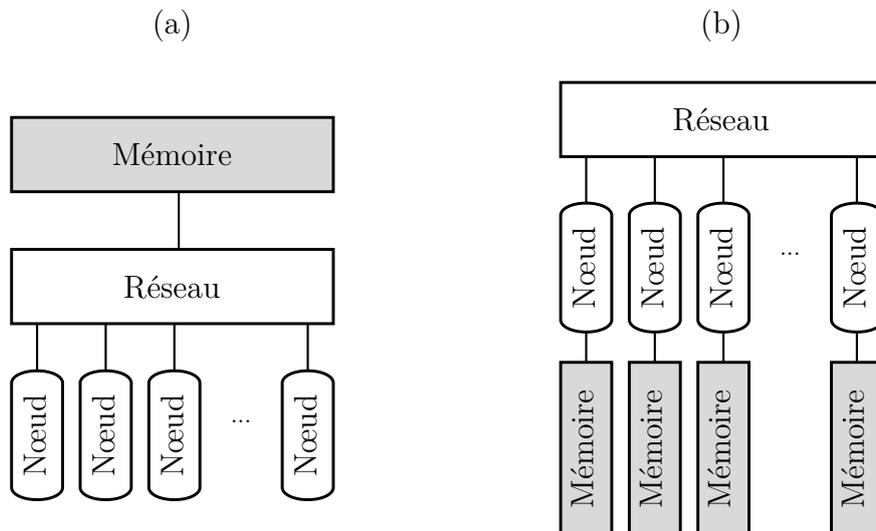
**TABLE I.2** Principales entrées et sorties des modèles de solidification, suivant leur échelle.

niveau matériel et des connexions entre unités de calcul, qu’au niveau de l’implémentation des modèles physiques. Concernant ce dernier point, plusieurs modèles de programmation ont été standardisés avec le temps, notons entre autres :

- un modèle à mémoire partagée, dont le standard est OpenMP,
- un modèle à mémoire distribuée, dont les deux standards sont PVM (*Parallel Virtual Machine*, [Gei94]) et MPI (*Message Passing Interface*, [Sni96, Gro98]).

La gestion de la mémoire partagée, présentée sur la figure I.15.a, permet d’avoir un espace d’adressage unique : chaque unité de calcul, ou “cœur”, peut accéder à une mémoire commune centralisée. Les cœurs sont physiquement regroupés en nœuds. Les nœuds sont analogues à des serveurs classiques, reliés au réseau, et contiennent typiquement quelques dizaines de cœurs. Les modifications d’un cœur dans la mémoire sont donc visibles directement par toutes les autres unités. Il s’agit d’une manière simple de paralléliser un code de calcul, mais qui est restreinte aux machines à mémoire partagée. Ces dernières sont limitées le plus souvent à moins de 32 cœurs. Notons également que le code de calcul est parallélisé de manière semi-automatique par le compilateur, qui ne peut le faire que sur des morceaux de code relativement simples.

La gestion de la mémoire dite distribuée, présentée sur la figure I.15.b, sépare au contraire la mémoire entre les nœuds de calcul. L’espace d’adressage est donc multiple, c’est-à-dire que chaque unité de calcul aura sa mémoire propre qu’il pourra modifier de façon indépendante. Les normes PVM et MPI reposent sur l’échange ponctuel de messages entre les unités de calcul, qui doivent être explicitement indiqués par le programmeur. Ceci laisse beaucoup de flexibilité dans la conception du code, qui peut ainsi être optimisé à souhait. C’est l’approche privilégiée aujourd’hui pour de meilleures performances et pour le calcul massivement parallèle. Elle est cependant plus complexe à mettre en place, car



**FIGURE I.15** Deux modèles de gestion de la mémoire parallèle : (a) partagée, où la mémoire est commune pour tous les nœuds de calcul et (b) distribuée, où la mémoire est gérée indépendamment par chaque nœud. D'après [Dig01].

le programmeur doit lui-même gérer et optimiser les communications entre les cœurs.

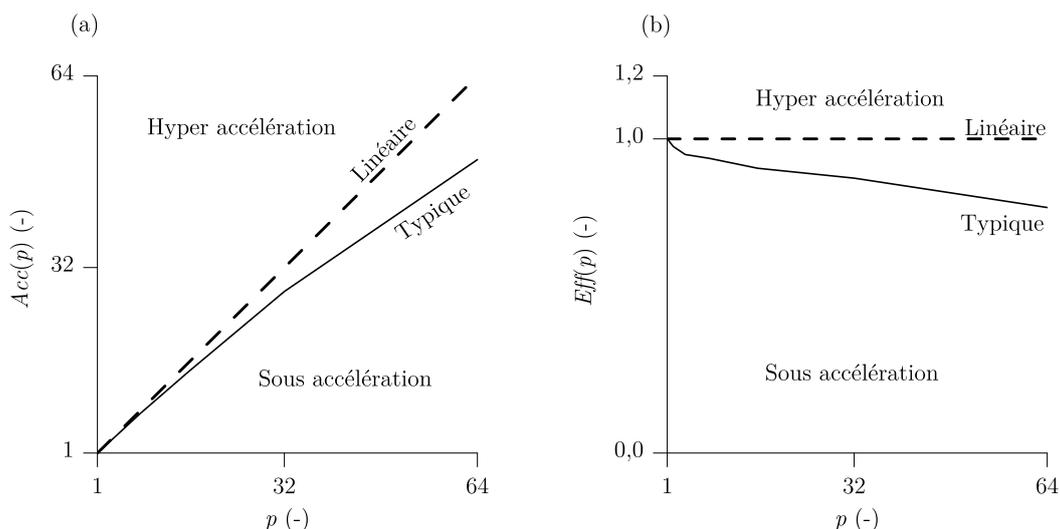
Pour mesurer les performances du calcul parallèle, l'accélération,  $Acc$ , et l'efficacité,  $Eff$ , sont définies :

$$Acc(p) = \frac{t_{CPU}(1)}{t_{CPU}(p)} \quad (\text{I.19})$$

$$Eff(p) = \frac{Acc(p)}{p} \quad (\text{I.20})$$

avec  $p$  le nombre de cœurs utilisés, et  $t_{CPU}$  le temps de résolution. L'accélération,  $Acc(p)$ , représente le gain de temps sur  $p$  cœurs par rapport au temps nécessaire à la résolution sur un seul cœur,  $t_{CPU}(1)$ . Idéalement, l'accélération doit toujours respecter  $Acc(p) = p$ , ce qui signifie qu'utiliser deux fois plus de cœurs permet de résoudre le même problème en deux fois moins de temps. L'efficacité est quant à elle idéalement égale à un. En pratique, si l'implémentation du code n'est pas optimale, l'efficacité sera inférieure à un et  $Acc(p) < p$ , ce qui est un régime de sous accélération. À l'inverse, le fractionnement du problème et les effets de cache peuvent permettre d'atteindre une efficacité supérieure à un, ce qui constitue le régime d'hyper accélération. Les effets de cache sont dus à la mémoire cache des microprocesseurs, très rapide mais de petite capacité. Si les données nécessaires à une opération (parcours de tableau, produit vectoriel, etc.) peuvent être entièrement chargées dans cette mémoire, alors cette opération sera effectuée beaucoup plus rapidement que si les données étaient stockées dans la mémoire vive classique. Le fractionnement du problème entre plusieurs unités de calcul peut permettre de bénéficier de ces effets pendant la résolution, et d'atteindre le régime d'hyper accélération. La figure I.16 présente ces différents régimes et un comportement typique.

L'accélération repose sur la qualité de la répartition des tâches, et sur la parallélisation de l'algorithme lui-même. Sur ce dernier point, la loi d'Amdahl [Amd67] indique que si une fraction  $f_{seq}$  du temps d'exécution est séquentielle, c'est-à-dire qu'il reste une partie du



**FIGURE I.16** Différents régimes de performances en calcul parallèle, en fonction du nombre  $p$  d'unités de calcul : (a) accélération et (b) efficacité telles que définies par les équations I.19 et I.20. Un comportement typiquement rencontré est également représenté.

code qui ne s'exécute que sur une unité de calcul, alors l'accélération maximale atteignable sur un nombre  $p$  d'unités de calcul est donnée par :

$$Acc_{max}(p) = \frac{1}{f_{seq} + \frac{1-f_{seq}}{p}} \quad (\text{I.21})$$

Cette loi indique que même s'il ne reste qu'une petite fraction d'algorithme séquentiel, l'accélération est très vite limitée avec un grand nombre de cœurs. C'est notamment pour cette raison que la parallélisation semi-automatique effectuée avec des standards tels OpenMP n'est généralement pas acceptable au-delà d'une dizaine de cœurs.

Concernant les éléments finis, et plus généralement la résolution de systèmes linéaires, de nouvelles problématiques ont vu le jour avec le calcul parallèle. Par exemple, les nombreuses communications nécessaires aux solveurs directs ont de fait privilégié le développement de solveurs itératifs, qui permettent des gains bien supérieurs en parallèle [Cou97]. Les diverses problématiques sont dans l'esprit semblables à celles posées par le modèle CAFE parallèle, et seront exposées plus en détail dans le chapitre II. De plus amples précisions sur les particularités du calcul parallèle dans un contexte éléments finis sont données dans la littérature [Mar97, Per00, Dig01].

Dans le domaine de la solidification, la tendance est également à une parallélisation générale des codes. Le motif récurrent est l'extension des modèles à trois dimensions, très gourmandes en ressources. Les premiers à être parallélisés ont certainement été les modèles de dynamique moléculaire [Hel90], de par *i*- les ressources importantes nécessitées par les calculs, *ii*- la facilité d'obtenir de bonnes parallélisations sur ce type de modèle, étant donné que l'interaction des atomes est restreinte à un voisinage proche, et *iii*- la variété des domaines où ces modèles sont appliqués. Aujourd'hui, ils sont régulièrement utilisés pour mettre en avant les performances des supercalculateurs [Swa08].

Par la suite, la plupart des modèles présentés dans la section précédente ont été parallélisés, par exemple le suivi de front [AR04], les méthodes level-set [Zab06] et champ de phase [Jeo01, Geo02]. Malheureusement, on pourra regretter que les diverses optimisations nécessaires au calcul parallèle ne soient quasiment jamais explicitées, et soient

même souvent complètement laissées de côté. Ces optimisations sont pourtant critiques pour obtenir des gains corrects en termes de temps de calcul. Notons également que la bibliographie effectuée n'a pas permis d'identifier un effort de parallélisation des modèles d'automates cellulaires appliqués à la solidification.

## 4 Objectifs et plan de l'étude

L'objectif de cette thèse est de mettre au point un modèle automate cellulaire-éléments finis (CAFE) 3D pour la prédiction de structures de grains pendant la solidification d'alliages métalliques. Le but est de prendre en compte la surfusion de germination et de croissance durant la solidification, et de comprendre l'influence de la structure sur divers phénomènes physiques, comme la macroségrégation.

Les calculs 3D étant d'autre part très gourmands en ressources de calcul, le deuxième objectif sera de mettre au point une implémentation parallèle du code, afin de pouvoir mener des simulations sur des domaines importants, à l'échelle du centimètre jusqu'au mètre. De ce point de vue, le but final est de pouvoir numériquement effectuer des calculs sur un lingot de silicium en coulée semi-continue, en 3D et avec une résolution suffisante. Les phénomènes physiques liés à la croissance du silicium n'étant pas encore correctement connus, du moins quantitativement, il ne sera pas ici question de modéliser les phénomènes spécifiques tels que maclage ou facettes.

Le chapitre 2 sera dédié à la description du modèle CAFE et des modèles physiques sur lesquels il se base, aux mises en équations et aux algorithmes de couplage. Une partie sera axée sur la parallélisation du modèle et des algorithmes. Le chapitre 3 présentera plusieurs cas de validation analytiques et expérimentaux. L'efficacité du code parallèle sera également testée. Le modèle CAFE sera ensuite mis en application dans le chapitre 4 sur trois cas. Premièrement, le modèle sera comparé à des résultats donnés par un modèle microscopique champ de phase, sur un problème situé à une échelle intermédiaire. Puis, une partie sera dédiée à la simulation d'un benchmark expérimental de macroségrégation par convection naturelle [Hac12a]. Enfin, un calcul type utilisant intensivement l'algorithme parallèle sera présenté pour la solidification du silicium polycristallin à destination photovoltaïque, sur un lingot de dimensions industrielles.

# Chapitre II

## Modèle CAFE : implémentations numériques et couplages

*Dans ce chapitre sont décrits le modèle CAFE, son algorithme de résolution et l'implémentation des différentes équations physiques. Une partie est consacrée au couplage entre modèle indirect macroscopique (FE), modèle direct mésoscopique (CA) et modèles indirects microscopiques. Enfin, l'optimisation du code et l'implémentation parallèle seront abordées.*

### Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Présentation du modèle</b> . . . . .	<b>35</b>
<b>2</b>	<b>Modèle FE</b> . . . . .	<b>37</b>
2.1	Énergie . . . . .	37
2.2	Soluté . . . . .	38
2.3	Navier-Stokes . . . . .	39
<b>3</b>	<b>Modèle CA</b> . . . . .	<b>39</b>
3.1	Germination . . . . .	41
3.2	Croissance et capture . . . . .	42
3.3	Fractions d'enveloppes et de zones . . . . .	44
<b>4</b>	<b>Modèles cinétiques</b> . . . . .	<b>48</b>
4.1	Germination . . . . .	48
4.2	Croissance . . . . .	49
4.3	Ségrégation . . . . .	54
<b>5</b>	<b>Couplages Macro-Méso-Micro</b> . . . . .	<b>61</b>
5.1	Transport FE→CA . . . . .	61
5.2	Transport CA→FE . . . . .	61
5.3	Micro pas de temps . . . . .	62
5.4	Couplage itératif . . . . .	63
<b>6</b>	<b>Implémentation parallèle</b> . . . . .	<b>67</b>
6.1	Allocation dynamique . . . . .	68
6.2	Calcul parallèle . . . . .	70
6.3	Partitionnement . . . . .	72
6.4	Gestion de la mémoire . . . . .	75
6.5	Algorithme général . . . . .	78

---



# 1 Présentation du modèle

Le modèle CAFE se base sur le couplage entre plusieurs échelles de calcul :

- échelle macroscopique : les équations globales macroscopiques sont résolues sur le maillage éléments finis,
- échelle mésoscopique : le développement de l’enveloppe des grains est suivi sur une grille régulière de cellules carrées en deux dimensions ou cubiques en trois dimensions, de longueur d’arête  $l_{CA}$ . Cette grille dite d’automate cellulaire recouvre tout le domaine du maillage FE,
- échelle microscopique : des modèles indirects d’évolution de la microstructure sont utilisés pour nourrir les échelles supérieures de lois cinétiques.

L’intérêt de ce modèle réside dans la rapidité de résolution de l’automate cellulaire, qui permet de considérer des tailles de cellules d’au moins un ordre inférieur à la taille de maille, et au caractère local de l’algorithme qui est bien adapté à la propagation d’une interface. La figure II.1 donne un aperçu général du modèle développé qui sera détaillé dans la suite de ce chapitre. Plusieurs notions générales sont ici survolées.

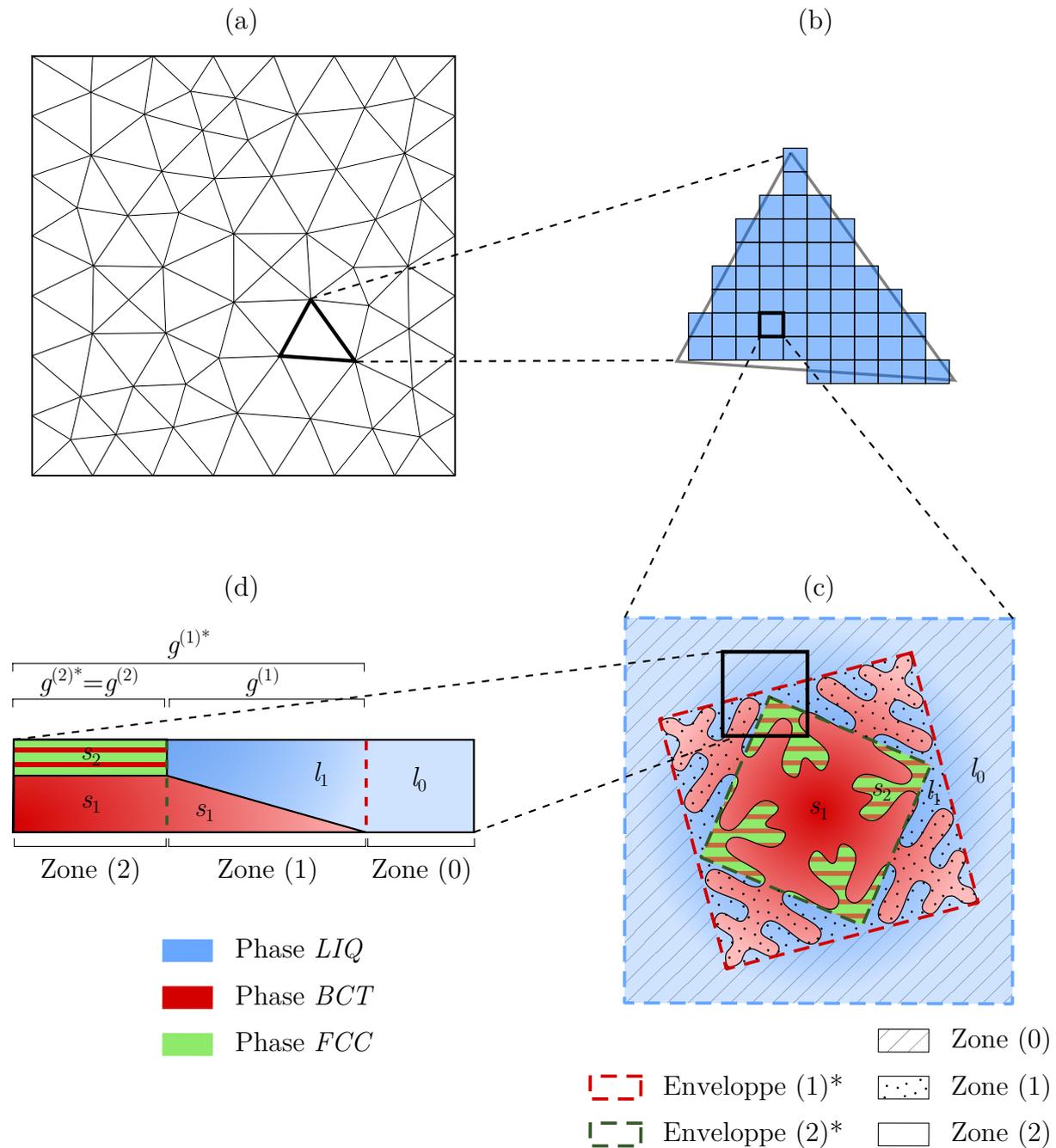
**Phases** Les phases, notées  $\varphi$ , sont bien évidemment les phases thermodynamiques apparaissant lors de la solidification de l’alliage, ainsi que la phase liquide. Les phases seront désignées pour un alliage donné par trois lettres majuscules, qui reprendront le même nom que dans les bases de données thermodynamiques, soit généralement le réseau cristallin pour les phases solides et *LIQ* pour le liquide. Dans l’exemple du système binaire Sn-Pb, dont le diagramme de phases est donné plus haut (fig. I.7), les phases solides sont *BCT* et *FCC*.

**Structures** Les structures, notées  $s_i$  ou  $l_i$ , représentent, comme leur nom l’indique, des structures solides  $s_i$  ou des structures liquides  $l_i$ . Les structures solides apparaissent lors de la solidification. Sur le même exemple d’un alliage Sn-Pb hypoeutectique (fig. I.7), deux structures solides apparaissent lors de la solidification. La structure  $s_1$  dendritique est composée d’une unique phase *BCT* (par la suite, des précipités de la phase secondaire *FCC* pourront éventuellement s’y former). La structure  $s_2$  eutectique est quant à elle biphasée, et contient à la fois les phases *BCT* et *FCC*, dont la proportion évolue avec la température. Les phases thermodynamiques sont donc présentes dans une ou plusieurs structures, et peuvent avoir une composition en éléments d’alliages  $\langle w^{\varphi_{s_i}} \rangle^{\varphi_{s_i}}$  différente pour chaque structure. Les structures liquides  $l_i$  sont définies dans ce but : il est parfois nécessaire de distinguer deux liquides à compositions différentes, par exemple le liquide libre,  $l_0$ , et le liquide interdendritique,  $l_1$ , bien que la phase thermodynamique soit la même.

**Zones** Les zones sont définies par les enveloppes des grains pour chaque structure en train de se développer. Elles peuvent contenir une ou plusieurs structures.

Un exemple de ce formalisme est donné sur les figures II.1.c et d. La figure II.1.c présente le suivi des enveloppes de deux grains, pour deux structures  $s_1$  (dendritique) et  $s_2$  (eutectique). Ces enveloppes définissent trois zones : la zone (0) de liquide libre, en hachuré, la zone (1) pâteuse, en pointillés, et la zone (2) de croissance eutectique.

La figure II.1.d reprend la description des zones, structures et phases pour un volume



**FIGURE II.1** Différentes échelles du modèle CAFE : (a) maillage éléments finis macroscopique, (b) grille de cellules, (c) suivi mésoscopique des enveloppes de grains pour une cellule et (d) évolution 1D de la microstructure.

donné à l'échelle microscopique. La zone (0) contient une unique structure  $l_0$ , composée de liquide de composition  $\langle w^{LIQ_{l_0}} \rangle^{LIQ_{l_0}}$ . De même, le liquide dans la structure  $l_1$  de la zone (1) est de composition  $\langle w^{LIQ_{l_1}} \rangle^{LIQ_{l_1}}$ . La structure dendritique  $s_1$  est présente dans les zones (1) et (2), et contient une unique phase *BCT* de composition  $\langle w^{BCT_{s_1}} \rangle^{BCT_{s_1}}$ . Enfin, la structure eutectique  $s_2$  est présente uniquement dans la zone (2) et contient deux phases *BCT* et *FCC*, de composition  $\langle w^{BCT_{s_2}} \rangle^{BCT_{s_2}}$  et  $\langle w^{FCC_{s_2}} \rangle^{FCC_{s_2}}$ .

## 2 Modèle FE

Le “modèle FE” s’appuie sur une prise de moyenne volumique des équations de conservation et leur résolution par la méthode des éléments finis, qui se base ici sur des éléments triangulaires (2D) ou tétraédriques (3D) de type P1.

### 2.1 Énergie

L’équation de conservation de l’énergie, sous l’hypothèse de densités constantes et égales à  $\rho_0$ , et à solide fixe, se réduit à :

$$\rho_0 \left( \frac{\partial \langle H \rangle}{\partial t} + \langle v^l \rangle \cdot \nabla \langle H \rangle^l \right) - \nabla \cdot (\langle \kappa \rangle \nabla T) = 0 \quad (\text{II.1})$$

où  $\langle H \rangle$  est l’enthalpie massique moyenne,  $\langle H \rangle^l$  l’enthalpie moyenne du liquide,  $\langle v^l \rangle$  la vitesse moyenne du liquide et  $\langle \kappa \rangle$  la conductivité thermique moyenne.

Ce problème classique introduit deux inconnues, l’enthalpie et la température, qui ne sont pas liées par une relation linéaire. En effet, la conversion enthalpie-température dépend fortement du chemin de solidification, autrement dit des transformations de phases, de leur composition et de leur fraction. Cette conversion sera également influencée par la croissance des grains, donc par la résolution de l’automate cellulaire, ce qui constitue un couplage fort CA-FE. Ce couplage sera décrit dans la section 5. En supposant une relation quelconque entre enthalpie et température, l’équation II.1 doit être résolue par un algorithme non linéaire, en l’occurrence une approche itérative Newton-Raphson. Cet algorithme permet de calculer, pour l’itération  $(k+1)$ , la variation d’enthalpie moyenne  $d\langle H \rangle = {}^{(k+1)}\langle H \rangle - {}^{(k)}\langle H \rangle$  à partir des valeurs à l’itération  $(k)$  de l’enthalpie,  ${}^{(k)}\langle H \rangle$ , la température,  ${}^{(k)}T$ , et la dérivée  ${}^{(k)}(dT/d\langle H \rangle)$ . En adoptant une formulation faible du problème, l’équation à résoudre discrétisée en temps s’écrit :

$$\begin{aligned} \left[ [M] + [A] + [K] \right] {}^{(k)} \left( \frac{dT}{d\langle H \rangle} \right) d\langle H \rangle &= - [M] \left\{ {}^{(k)}\langle H \rangle - \langle H \rangle^t \right\} - [A] \left\{ {}^{(k)}\langle H \rangle \right\} \\ &\quad - [K] \left\{ {}^{(k)}T \right\} + \{B\} \end{aligned} \quad (\text{II.2})$$

où  $\langle H \rangle^t$  est l’enthalpie au début du pas de temps, et où les matrices  $[M]$ ,  $[A]$ ,  $[K]$  et le vecteur  $\{B\}$  sont définis par :

$$[M]_{ij} = \int_{\Omega} \frac{\rho_0}{\Delta t} (\phi_i + \tau_s v_c^l \cdot \nabla \phi_i) \phi_j d\Omega \quad (\text{II.3})$$

$$[A]_{ij} = \int_{\Omega} \rho_0 \langle v^l \rangle (\phi_i + \tau_s v_c^l \cdot \nabla \phi_i) \nabla \phi_j d\Omega \quad (\text{II.4})$$

$$[K]_{ij} = \int_{\Omega} \langle \kappa \rangle \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j d\Omega + \int_{S_{ext}} h_{ext} \phi_i \phi_j dS \quad (\text{II.5})$$

$$\{B\}_i = \int_{S_{ext}} h_{ext} T_{ext} \phi_i dS \quad (\text{II.6})$$

avec  $\Delta t$  le pas de temps,  $v_c^l$  la vitesse du liquide au centre de l'élément,  $\phi_i$  et  $\phi_j$  les fonctions d'interpolation et de poids, et  $\tau_s$  le paramètre de stabilisation SUPG défini comme dans la littérature [Riv11]. Ce paramètre stabilise les équations en régime convectif, et dépend notamment de la taille de maille et de  $v_c^l$ . À la première itération, les valeurs  $^{(k=0)}\langle H \rangle$ ,  $^{(k=0)}T$ , et  $^{(k=0)}(dT/d\langle H \rangle)$  sont initialisées aux valeurs calculées au pas de temps précédent,  $\langle H \rangle^t$ ,  $T^t$ , et  $(dT/d\langle H \rangle)^t$ . Puis, à chaque itération, les valeurs sont mises à jour :

- $^{(k+1)}\langle H \rangle$  d'après la résolution de II.2,
- $^{(k+1)}T$  d'après la relation enthalpie-température choisie et  $^{(k+1)}\langle H \rangle$ ,
- $^{(k+1)}(dT/d\langle H \rangle) = (^{(k+1)}\langle H \rangle - ^{(k)}\langle H \rangle) / (^{(k+1)}T - ^{(k)}T)$ .

À partir de ces valeurs, le résidu de l'équation II.2 à l'itération  $(k+1)$  peut être estimé avec :

$$^{(k+1)}R_E = -[M] \left\{ ^{(k+1)}\langle H \rangle - \langle H \rangle^t \right\} - [A] \left\{ ^{(k+1)}\langle H \rangle \right\} - [K] \left\{ ^{(k+1)}T \right\} + \{B\} \quad (\text{II.7})$$

La résolution a convergé après  $(k+1)$  itérations si  $^{(k+1)}R_E$  devient inférieur à une valeur fixée  $\varepsilon$  :

$$^{(k+1)}R_E < \varepsilon ^{(0)}R_E \quad (\text{II.8})$$

où  $^{(0)}R_E$  est le résidu au début du pas de temps, introduit pour pallier le non préconditionnement du calcul des résidus. Si la relation II.8 n'est pas vérifiée, une nouvelle itération a lieu. Quand le critère de convergence est atteint, les valeurs  $^{(k+1)}\langle H \rangle$  et  $^{(k+1)}T$  deviennent les solutions  $\langle H \rangle^{t+\Delta t}$  et  $T^{t+\Delta t}$ . Notons que le système peut diverger au cours d'une itération, c'est-à-dire  $^{(k+1)}R_E > ^{(k)}R_E$ . Dans ce cas, la solution est supposée être contenue entre les deux dernières enthalpies calculées,  $^{(k)}\langle H \rangle$  et  $^{(k+1)}\langle H \rangle$ . Plusieurs solutions intermédiaires  $^{(c)}\langle H \rangle$  sont essayées, telles que  $^{(c)}\langle H \rangle = ^{(k)}\langle H \rangle + c(^{(k+1)}\langle H \rangle - ^{(k)}\langle H \rangle)$ , avec  $0 < c < 1$ . Le résidu est estimé pour chacune de ces enthalpies, et la meilleure solution  $^{(c)}\langle H \rangle$  est utilisée pour la prochaine itération. Cette approche simple permet généralement d'améliorer la vitesse de convergence de la résolution.

## 2.2 Soluté

L'équation de conservation du soluté est classiquement définie comme suit, en négligeant la diffusion dans le solide à l'échelle macroscopique, avec une densité constante et pour un système fermé :

$$\frac{\partial \langle w \rangle}{\partial t} + \langle v^l \rangle \cdot \nabla \langle w^l \rangle^l - \nabla \cdot (D^l g^l \nabla \langle w^l \rangle^l) = 0 \quad (\text{II.9})$$

Ici encore, deux inconnues  $\langle w \rangle$  et  $\langle w^l \rangle^l$  apparaissent. Reprenant l'analyse de séparation de Voller-Prakash [Vol89], donnant  $\langle w^l \rangle^l = \langle w \rangle - \langle w \rangle^t + \langle w^l \rangle^{lt}$  où  $\langle w \rangle^t$  et  $\langle w^l \rangle^{lt}$  sont les valeurs au début du pas de temps, on peut réécrire l'équation de conservation selon une seule inconnue  $\langle w \rangle$  :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle w \rangle}{\partial t} + \langle v^l \rangle \cdot \nabla \langle w \rangle - \nabla \cdot (D^l g^l \nabla \langle w \rangle) &= \langle v^l \rangle \cdot \nabla \left( \langle w \rangle^t - \langle w^l \rangle^{lt} \right) \\ &\quad - \nabla \cdot \left( D^l g^l \nabla \left( \langle w \rangle^t - \langle w^l \rangle^{lt} \right) \right) \quad (\text{II.10}) \end{aligned}$$

Nous verrons dans la section 4.3 comment évolue la composition moyenne du liquide,  $\langle w^l \rangle^l$ , afin de résoudre l'équation II.10. Cette approche n'est bien sûr valide que pour des pas de temps assez petits. Cette équation est résolue avec une formulation faible et une méthode de stabilisation SUPG dont les détails sont donnés ailleurs [Liu05].

### 2.3 Navier-Stokes

Les équations de Navier-Stokes pour le calcul de l'écoulement du liquide, considéré newtonien et incompressible, sont définies comme suit :

$$\nabla \cdot \langle v^l \rangle = 0 \quad (\text{II.11})$$

$$\begin{aligned} \rho_0 \frac{\partial \langle v^l \rangle}{\partial t} + \frac{\rho_0}{g^l} \nabla \cdot (\langle v^l \rangle \times \langle v^l \rangle) &= \nabla \cdot \left( \mu^l \left( \nabla \langle v^l \rangle + \nabla \langle v^l \rangle^T \right) \right) - g^l \nabla p^l \\ &+ g^l \rho^l g - \frac{\mu^l}{K_{perm}} g^l \langle v^l \rangle \end{aligned} \quad (\text{II.12})$$

avec  $g$  le champ de gravité,  $p^l$  la pression,  $K_{perm}$  la perméabilité locale, et  $\mu^l$  la viscosité dynamique du liquide. Cette équation se base sur l'approximation de Boussinesq, qui permet de prendre en compte la convection naturelle avec une densité constante par ailleurs. La densité est donc imposée à  $\rho_0$  sauf dans le terme de gravité, où on définit :

$$\rho^l = \rho_0 \left( 1 - \beta_T (T - T_{ref}) - \beta_w \left( \langle w^l \rangle^l - \langle w^l \rangle_{ref}^l \right) \right) \quad (\text{II.13})$$

avec  $\beta_T$  et  $\beta_w$  les coefficients de dilatation thermique et solutale,  $T_{ref}$  et  $\langle w^l \rangle_{ref}^l$  la température et la composition de référence. Dans la suite de cette étude, la perméabilité sera donnée par la relation de Carman-Kozeny :

$$K_{perm} = \frac{g^{l3} \lambda_2^2}{180 (1 - g^l)^2} \quad (\text{II.14})$$

Cette approche permet de retrouver les équations classiques de Navier-Stokes dans le liquide et la relation de Darcy dans le solide. Cependant, il s'agit d'une approximation des forces de friction dans la zone pâteuse, qui pourra être à l'avenir remplacée par un modèle plus précis.

Ces équations sont résolues avec une formulation faible, et une stabilisation SUPG-PSPG-LSIC. Les détails de cette approche sont donnés ailleurs [Riv11].

## 3 Modèle CA

La méthode automate cellulaire est basée sur la définition :

- d'un voisinage,
- de plusieurs variables par cellule, évoluant selon des modèles physiques et/ou statistiques,
- d'une fonction de transition permettant de changer l'état d'une cellule selon l'état de son voisinage.

Le modèle présenté ici définit un voisinage basé sur les plus proches cellules d'un réseau cubique. Chaque cellule aura 8 voisins en deux dimensions (1<sup>ers</sup> et 2<sup>èmes</sup> plus proches voisins), et 26 voisins en trois dimensions (1<sup>ers</sup>, 2<sup>èmes</sup> et 3<sup>èmes</sup> plus proches voisins). Les différentes variables seront présentées en détail par la suite, notons en particulier le numéro de grain et l'orientation cristallographique.

Pour chaque cellule  $\nu$  est défini un état  $I_\nu$ , qui peut prendre trois valeurs :

- $I_\nu = 0$  si la cellule est complètement liquide,
- $I_\nu = 1$  si la cellule contient une ou plusieurs enveloppes de grains en train de croître localement,
- $I_\nu = 2$  si toutes les enveloppes de grains de la cellule ont atteint leur maximum local de croissance, qui est défini au paragraphe 3.3.

Une enveloppe de grain  $(j)^*$  est définie pour chaque structure solide  $s_i$ <sup>1</sup>. Les cellules doivent donc également rendre compte de l'état local de chaque structure dont on veut suivre la croissance. On définit pour cela un deuxième état pour chaque enveloppe,  $I_\nu^{(j)^*}$ , noté  $I_\nu^{(j)}$  pour simplifier les notations, qui indique de façon analogue au niveau de chaque cellule  $\nu$  :

- $I_\nu^{(j)} = 0$  si la structure  $s_i$  n'est pas présente,
- $I_\nu^{(j)} = 1$  si l'enveloppe de  $s_i$  est en train de croître localement,
- $I_\nu^{(j)} = 2$  si l'enveloppe de  $s_i$  a atteint son maximum local de croissance.

Chaque cellule a donc un état donné, mais l'enveloppe des grains et leur propagation lors de la croissance ne peuvent être représentées uniquement par cet état. Pour représenter les enveloppes de grains de la structure  $s_i$  à l'échelle microscopique, on associe à chaque cellule où  $I_\nu^{(j)} = 1$  une forme géométrique dont certaines frontières coïncident avec les frontières du grain macroscopique. Éventuellement, si plusieurs enveloppes de grains croissent simultanément au niveau d'une même cellule, plusieurs formes géométriques seront définies. Cette forme géométrique élémentaire doit rendre compte des directions préférentielles de croissance du cristal. Dans la suite de cette étude, les cristaux étudiés se développent selon les directions  $\langle 100 \rangle$ , qui sont caractéristiques des cristaux dendritiques CFC et CC [Kur98]. Ceux-ci englobent la plupart des métaux et le silicium, qui adopte une structure diamant. Les troncs et bras de dendrites seront donc supposés alignés avec les directions  $\langle 100 \rangle$ . La forme élémentaire d'enveloppe de grain sera ici le carré en deux dimensions et l'octaèdre en trois dimensions. Les sommets de l'octaèdre seront ainsi assimilés aux pointes de dendrite  $\langle 100 \rangle$ , et la microstructure interne sera supposée développée de façon homogène à l'intérieur de l'enveloppe. Ceci est illustré par la figure II.1.c. La validité de cette hypothèse est plus ou moins vérifiée selon les cas, une étude par comparaison avec un calcul champ de phase sera présentée au chapitre III. Cet octaèdre pourra être par la suite déformé si les directions  $\langle 100 \rangle$  ne croissent pas à la même vitesse. Les octaèdres sont caractérisés pour chaque cellule par un centre,  $C_\nu^{(j)}$ , 6 rayons  $R_{\nu k \in [1,6]}^{(j)}$  (4 en deux dimensions), et une orientation cristallographique sous la forme de trois angles d'Euler (un en deux dimensions).

Les paragraphes suivants présentent l'algorithme de germination et de croissance de ces octaèdres.

---

1. Il a été choisi de prendre des indices différents pour les enveloppes,  $(j)^*$ , et pour les structures,  $s_i$ , bien que dans tous les cas présentés par la suite,  $i = j$ . Ceci est fait dans un souci de souligner le lien entre les indices des enveloppes et des zones,  $(j)$ , qui seront présentées dans la section 3.3.

### 3.1 Germination

Toutes les cellules sont dans un premier temps initialisées à un état liquide  $I_\nu = 0$  et  $I_\nu^{(j)} = 0$  pour toutes les structures  $s_i$ . Des sites de germination sont affectés à chaque structure suivie, et associés à une cellule. Chaque cellule peut potentiellement contenir plusieurs sites pour chaque structure. Une surfusion critique est tirée pour chaque site, grâce à la méthode de Box-Muller [Box58] :

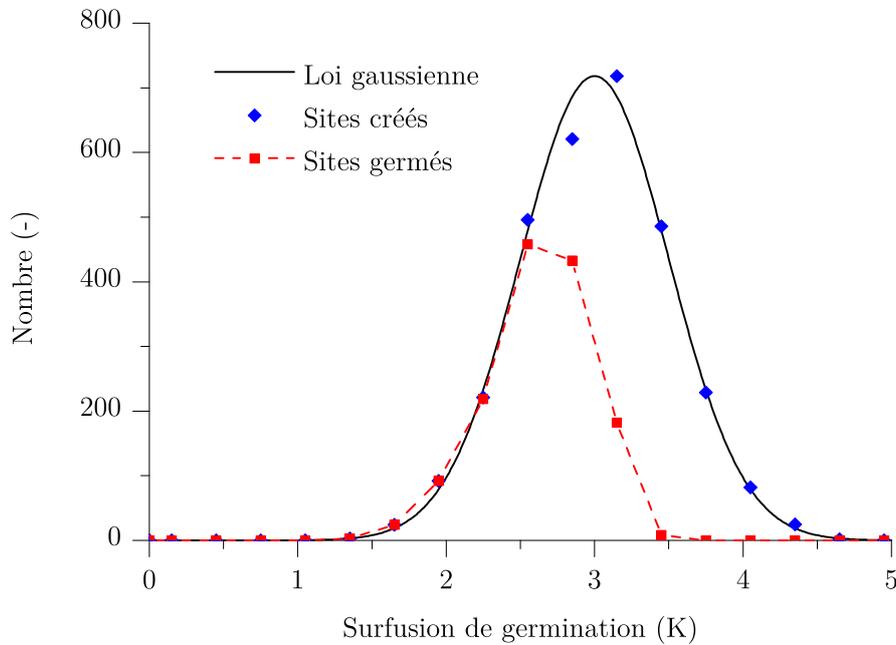
$$\Delta T_{nucl} = \sqrt{-2 \ln u_1} \cos(2\pi u_2) \Delta T_\sigma + \Delta T_N \quad (\text{II.15})$$

$u_1$  et  $u_2$  étant deux réels aléatoires entre 0 et 1. Ce tirage génère une loi gaussienne, dont un exemple est présenté à la figure II.2.

Au cours du calcul, si la surfusion locale au centre d'une cellule dépasse la surfusion de germination d'un site de cette cellule, et que le site peut germer, la cellule passe à un état  $I_\nu = 1$  et  $I_\nu^{(j)} = 1$  pour la structure  $s_i$  qui a germé. Un site peut germer si :

- la structure en question n'est pas déjà présente sur la cellule, i.e.  $I_\nu^{(j)} = 0$ ,
- la phase mère est présente sur la cellule.

La phase mère correspond à la phase qui est transformée lors de la croissance de l'enveloppe ( $j$ )\*. Par exemple, dans le cas du suivi d'une structure dendritique et d'une structure eutectique, les sites de ces deux structures ne pourront germer sur une cellule que s'il reste du liquide. Avec cette approche, certains sites ne pourront pas germer, soit parce que la phase mère n'est plus présente au moment où  $\Delta T > \Delta T_{nucl}$ , soit parce qu'un grain de la même structure est déjà présent. Il se met donc en place une compétition entre vitesse de croissance et germination, pour chaque structure et entre les structures si elles ont la même phase mère. Un exemple de ce phénomène est donné à la figure II.2.



**FIGURE II.2** Loi de germination, sites de germinations créés et grains germés dans un domaine carré 2D de 0,1 x 0,1 m, avec une vitesse de croissance  $v = 5 \cdot 10^{-4} \Delta T^2$ , une température uniforme sur toute la pièce et une vitesse de refroidissement  $dT/dt = -1$  K/s. Les paramètres de la gaussienne sont  $\Delta T_N = 3$  K,  $\Delta T_\sigma = 0,5$  K et  $n = 3 \cdot 10^5$  m<sup>-2</sup>.

Lorsqu'un site germe effectivement sur la cellule, un nouveau grain est créé, avec une orientation cristallographique aléatoire dont les angles d'Euler sont tirés de façon à avoir une texture uniforme [Gan95], soit en degrés :

$$\begin{cases} \psi = 360 (0,5 - u_1) \\ \theta = \arccos(1 - 2u_2) \\ \phi = 360 (0,5 - u_3) \end{cases} \quad (\text{II.16})$$

avec  $u_1$ ,  $u_2$  et  $u_3$  trois réels aléatoires entre 0 et 1. La forme du grain est initialisée pour la cellule qui a germé sous la forme d'un octaèdre (ou un carré en deux dimensions) dont tous les rayons sont égaux et nuls, et dont le centre  $C_\nu^{(j)}$  est le même que le centre de la cellule,  $C_\nu^0$ . Ces rayons  $R_{\nu k \in [1,6]}^{(j)}$  définissent les longueurs des directions  $\langle 100 \rangle$  depuis le centre  $C_\nu^{(j)}$ .

Notons également que pour restituer le fait que la germination est facilitée à certains endroits, par exemple sur les faces au contact du moule, plusieurs lois gaussiennes peuvent être définies. Généralement, une loi à faible germination ( $n$  faible,  $\Delta T_N$  élevé) sera définie dans le volume, et des lois à forte germination ( $n$  élevé,  $\Delta T_N$  faible) sur les frontières du domaine.

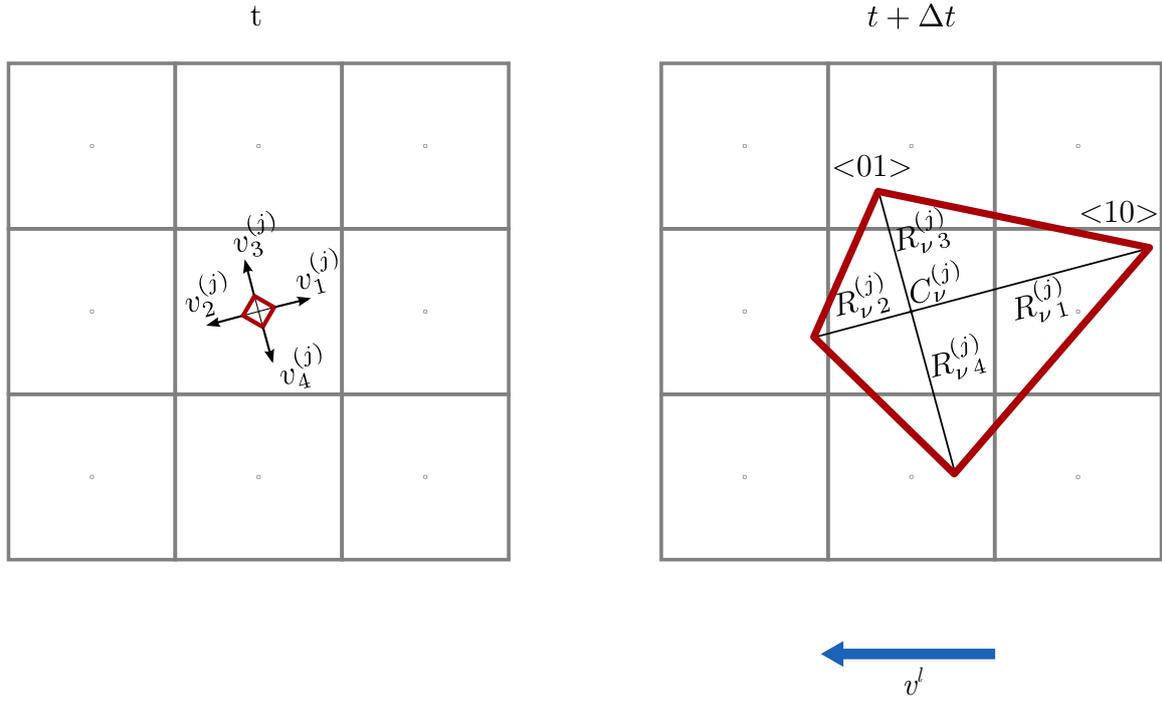
### 3.2 Croissance et capture

La croissance des grains se fait localement par l'agrandissement des formes octaédriques selon les directions  $\langle 100 \rangle$ , c'est-à-dire en faisant évoluer les rayons des octaèdres. Comme introduit ci-dessus, les sommets de l'octaèdre coïncident avec les pointes de dendrite, aussi leur vitesse sera calculée à partir de modèles physiques présentés dans la section 4.2, et des conditions locales au centre de la cellule  $C_\nu^0$  (température, composition, direction et vitesse du liquide).

L'hypothèse de grains octaédriques n'est pas justifiée pour l'eutectique, qui forme plutôt des grains globulaires. Le but n'est cependant pas de prédire la microstructure des grains eutectiques, mais de prendre en compte la surfusion de germination et de croissance eutectique. Il sera nécessaire à l'avenir d'introduire des formes de croissance adaptées pour parvenir à des comparaisons plus poussées avec l'expérience, par exemple en faisant croître des sphères plutôt que des octaèdres.

Une fois la vitesse de chaque branche connue, les déplacements des sommets peuvent être calculés et les rayons de l'octaèdre mis à jour. Dans un cas de croissance en diffusion pure, la vitesse sera la même pour toutes les branches, donc la forme octaédrique sera localement conservée pour chaque cellule. Par contre, en présence de convection, les branches orientées à l'opposé de la direction de l'écoulement croîtront plus vite et l'octaèdre pourra être déformé. La figure II.3 illustre ce phénomène en 2D : juste après la germination (temps  $t$ ), la forme associée à la cellule centrale  $\nu$  est carrée. Notons que son centre  $C_\nu^{(j)}$  correspond au centre de la cellule,  $C_\nu^0$ . Les vitesses des quatre sommets sont calculées d'après l'orientation cristallographique du grain et la direction de l'écoulement. Les directions  $\langle 10 \rangle$  et  $\langle 0\bar{1} \rangle$  ont donc les vitesses  $v_1^{(j)}$  et  $v_4^{(j)}$  les plus importantes (voir fig. II.8), ce qui entraîne la déformation de la forme géométrique au temps  $t + \Delta t$ .

La propagation d'un grain d'une cellule à l'autre est ici appelée "capture". Quand l'octaèdre associé à une cellule et à une structure  $s_i$  s'étend suffisamment pour englober le centre d'une cellule voisine, alors cette cellule est si possible capturée, et son état passe



**FIGURE II.3** Croissance 2D de la forme géométrique associée à la cellule centrale  $\nu$  en présence d'un écoulement  $v^l$ , juste après la germination ( $t$ ) et à un temps  $t + \Delta t$ .

à  $I_\nu = 1$  et  $I_\nu^{(j)} = 1$ . De façon analogue à la germination, une cellule peut être capturée par une autre si la structure n'est pas déjà présente et si la phase mère de la structure est présente.

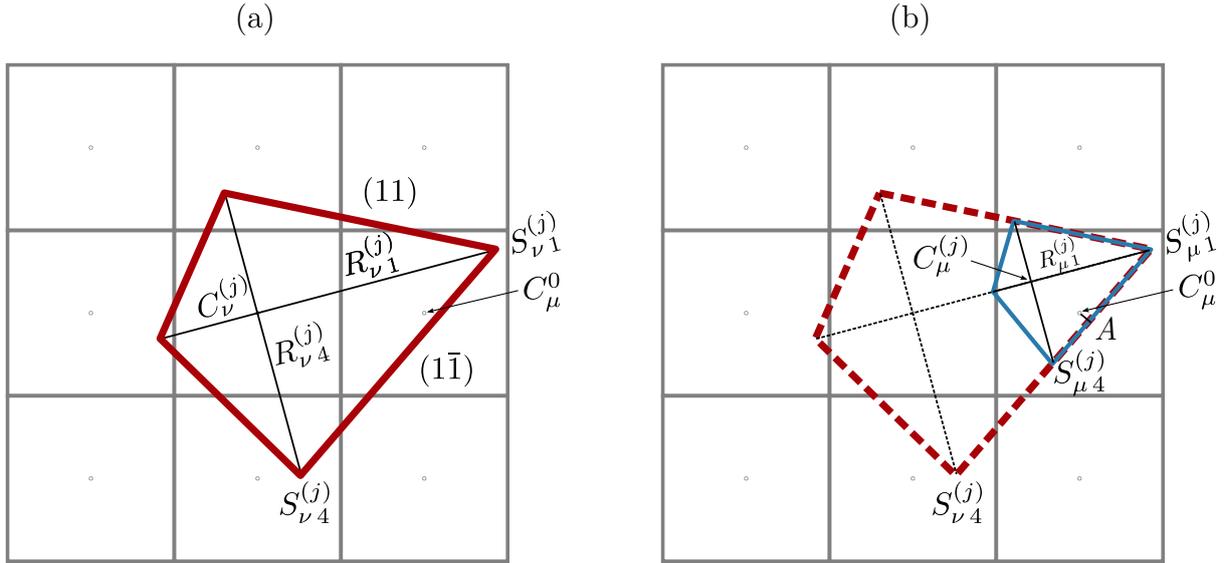
Quand une cellule est capturée, un nouvel octaèdre plus petit lui est associé de façon à conserver localement la forme de l'enveloppe de grain. Cet algorithme, introduit dans Gandin *et al.* [Gan97], est brièvement rappelé ici pour un octaèdre déformé. Ceci est illustré en 2D par la figure II.4. Le centre de la cellule  $\mu$ ,  $C_\mu^0$ , est englobé par la forme géométrique de la cellule centrale  $\nu$ , qui capture la cellule  $\mu$ . La face de capture, ici  $(1\bar{1})$ , est identifiée, et le centre de  $\mu$  projeté sur cette face en  $A$ . Le sommet de capture, ici  $S_{\nu 1}^{(j)}$ , peut ensuite être facilement repéré en comparant  $AS_{\nu 1}^{(j)}$  et  $AS_{\nu 4}^{(j)}$ . La nouvelle forme géométrique d'enveloppe associée à  $\mu$  aura ce sommet commun,  $S_{\mu 1}^{(j)} = S_{\nu 1}^{(j)}$ . La longueur de la nouvelle face  $(1\bar{1})$  est tronquée selon :

$$S_{\mu 1}^{(j)} S_{\mu 4}^{(j)} = \min \left( AS_{\nu 1}^{(j)}, \sqrt{2} l_{CA} \right) + \min \left( AS_{\nu 4}^{(j)}, \sqrt{2} l_{CA} \right) \quad (\text{II.17})$$

Cette troncature permet de limiter la taille du nouvel octaèdre et éviter un accroissement continu des rayons au fil du calcul. De cette manière la forme élémentaire reste locale et a une dimension de l'ordre de la cellule. Le rapport  $a$  entre nouveaux et anciens rayons peut ensuite être trouvé,  $a = S_{\mu 1}^{(j)} S_{\mu 4}^{(j)} / S_{\nu 1}^{(j)} S_{\nu 4}^{(j)}$ , et les rayons de  $\mu$  déduits d'après ce rapport :  $R_{\mu k}^{(j)} = a R_{\nu k}^{(j)}$ . Notons que le nouveau centre,  $C_\mu^{(j)}$ , ne coïncide plus avec le centre de la cellule,  $C_\mu^0$ . Ceci permet de s'affranchir de l'anisotropie de la grille. Une validation de cet aspect sera présentée au chapitre III.

La procédure en 3D, très similaire, est donnée en annexe B.

Si, au cours d'un pas de temps, le centre  $C_\mu^0$  de la cellule  $\mu$  est englobé par deux voisins simultanément, alors  $\mu$  est capturée par le grain le plus développé. Pour cela, la longueur



**FIGURE II.4** Formes géométriques 2D (a) de la cellule centrale  $\nu$  et (b) de la cellule à sa droite  $\mu$ , au moment de la capture de  $\mu$  par  $\nu$ . La forme associée à  $\nu$  est représentée en traits épais, et celle associée à  $\mu$  en traits fins.

$C_{\mu}^0 A$  est évaluée pour les deux voisins captureurs, et celui ayant la plus grande valeur est considéré comme le grain le plus développé.

### 3.3 Fractions d'enveloppes et de zones

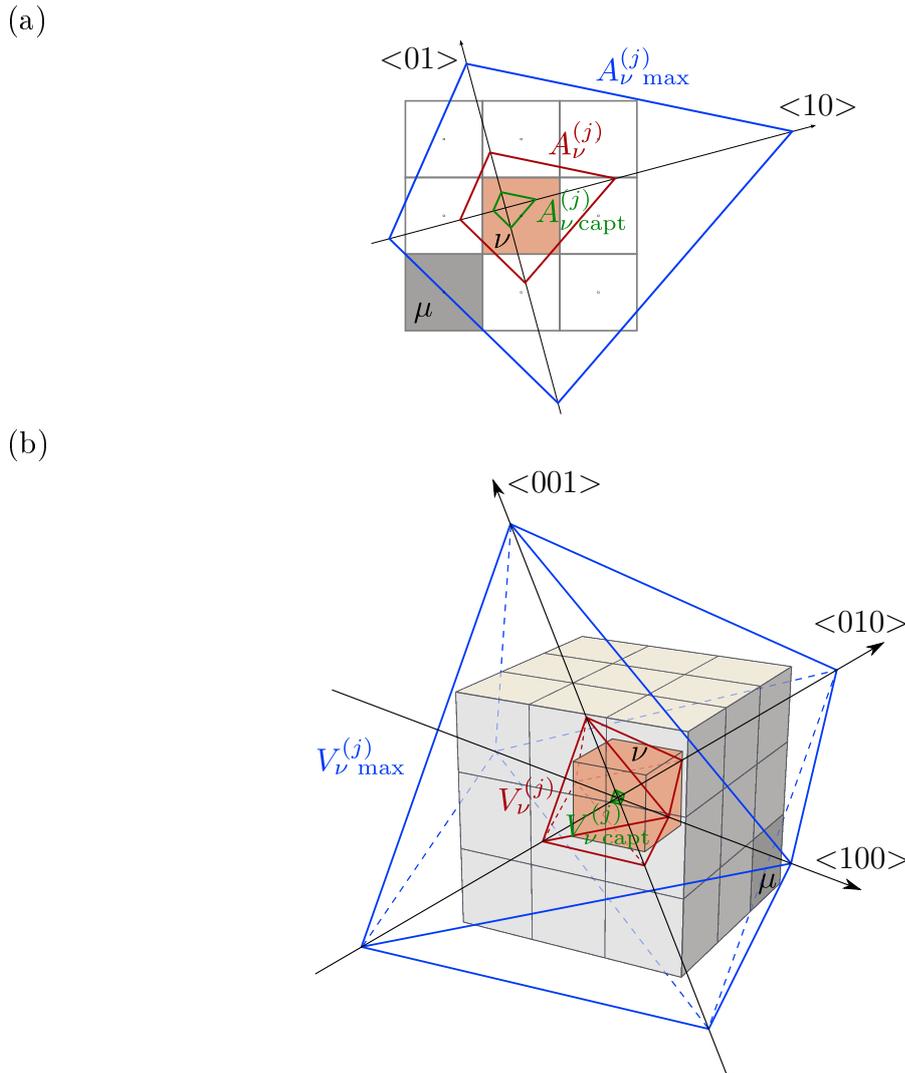
Une fraction volumique d'enveloppe  $g_{\nu}^{(j)*}$  est définie pour chaque cellule  $\nu$  et pour chaque structure suivie. Pour une structure  $s_i$ , définissant une enveloppe  $(j)^*$ , et pour une cellule donnée  $\nu$ , trois cas peuvent se présenter :

- si  $g_{\nu}^{(j)*} = 0$ , l'enveloppe de grain  $(j)^*$  n'est pas formée et la structure  $s_i$  est absente,  $I_{\nu}^{(j)} = 0$ ,
- si  $0 < g_{\nu}^{(j)*} < 1$ , l'enveloppe de grain  $(j)^*$  est en train de se développer dans la cellule  $\nu$  (et donc la structure  $s_i$  également),  $I_{\nu}^{(j)} = I_{\nu} = 1$ ,
- si  $g_{\nu}^{(j)*} = 1$ , l'enveloppe de grain  $(j)^*$  a atteint son maximum de croissance pour la cellule  $\nu$  (mais les phases associées pourront éventuellement continuer de croître à l'intérieur de l'enveloppe, selon le modèle de microségration),  $I_{\nu}^{(j)} = 2$ .

Le cas intermédiaire correspond à la croissance de la forme octaédrique représentant localement l'enveloppe de grain de la structure  $s_i$ . Pour une structure donnée, la fraction volumique d'enveloppe correspondante  $g_{\nu}^{(j)*}$  est calculée par la relation :

$$g_{\nu}^{(j)*} = \min \left( \frac{V_{\nu}^{(j)} - V_{\nu \text{ capt}}^{(j)}}{V_{\nu \text{ max}}^{(j)} - V_{\nu \text{ capt}}^{(j)}}, 1 \right) \quad (\text{II.18})$$

où  $V_{\nu}^{(j)}$  est le volume actuel de l'octaèdre,  $V_{\nu \text{ capt}}^{(j)}$  le volume au moment de la capture et  $V_{\nu \text{ max}}^{(j)}$  le volume de croissance maximum. Notons que l'astérisque (\*) désignant l'enveloppe de grain plutôt que la zone a ici été ignoré par souci de simplification des notations, mais devrait en toute rigueur être reporté sur tous les volumes, aires, etc. Le volume au moment de la capture correspond au volume initial de l'octaèdre au moment exact  $t_{\text{capt}}$  où le centre



**FIGURE II.5** Illustration (a) 2D et (b) 3D du calcul de  $V_{\nu}^{(j)}$  et  $V_{\nu}^{(j)\max}$  par voisinage pour une enveloppe de grain  $(j)^*$  se développant dans la cellule centrale  $\nu$ . La forme associée à  $\nu$  est en 3D (2D) un octaèdre (un quadrilatère) de volume  $V_{\nu}^{(j)}$  (d'aire  $A_{\nu}^{(j)}$ ).  $V_{\nu}^{(j)\text{capt}}$  ( $A_{\nu}^{(j)\text{capt}}$ ) correspond au volume (à l'aire) à l'instant où  $\nu$  a été capturée. Le volume (l'aire) maximum est ici estimé(e) en agrandissant cette forme de capture pour englober le centre de tous les voisins, le dernier voisin possiblement capturé étant ici la cellule  $\mu$ .

est englobé et capturé par un voisin. Ceci est illustré par les figures II.5 et II.6. Concernant le volume de croissance maximum, deux approches ont été développées et sont présentées ici.

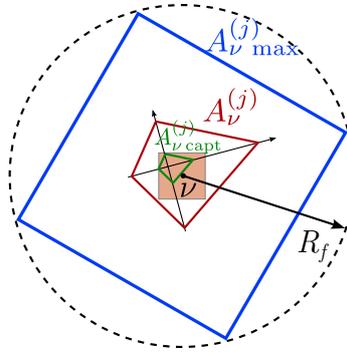
**Calcul par voisinage** La première approche, dite par voisinage, considère que le maximum de croissance pour l'enveloppe d'une cellule  $\nu$  est atteint quand sa forme géométrique a englobé le centre de tous ses voisins. C'est l'approche initialement présentée dans la littérature [Gan99, Gui07, Car12], illustrée par la figure II.5. Étant donné que l'octaèdre peut potentiellement se déformer lors de la croissance, la forme finale au moment de la capture de tous les voisins n'est pas connue *a priori*. Pour pallier ce défaut,  $V_{\nu}^{(j)\max}$  est estimé lors de la capture de la cellule, en considérant que les bras croîtront de façon pro-

portionnelle, c'est-à-dire que la forme finale sera un agrandissement non déformé de la forme initiale.

**Calcul par espacement dendritique primaire** La deuxième approche, utilisée dans Mosbah *et al.* [Mos10], consiste à dire que le maximum de croissance est atteint quand les bras principaux se sont développés d'une longueur donnée, choisie comme étant égale à  $R_f = \lambda_1/2$ . Autrement dit, le volume de croissance maximum est fixé à :

$$V_{\nu \max}^{(j)} = R_f^3 = \left(\frac{\lambda_1}{2}\right)^3 \quad (\text{II.19})$$

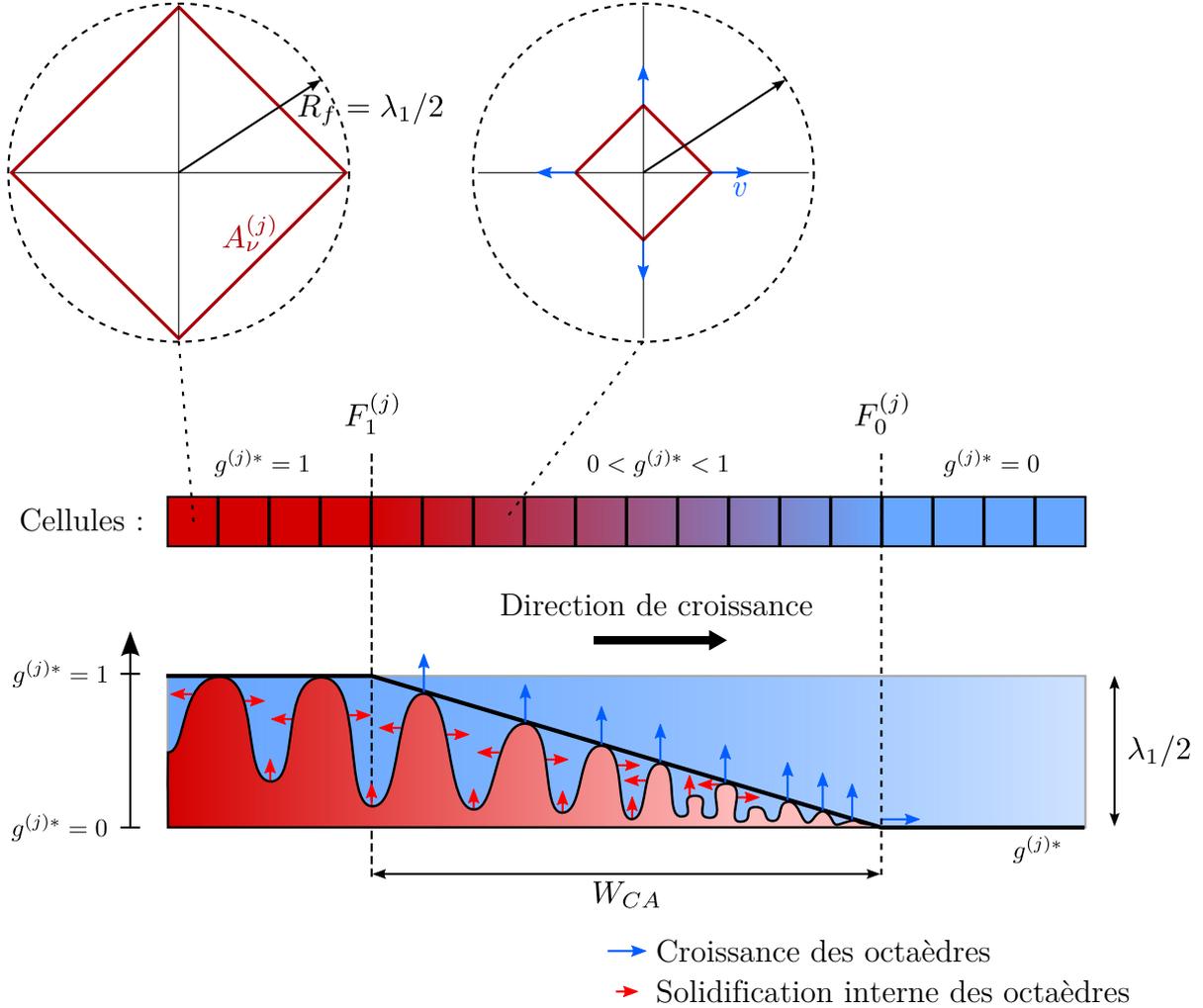
L'avantage de cette approche est bien sûr de relier le calcul de  $g_{\nu}^{(j)*}$  à une grandeur physique,  $\lambda_1$ , et donc de rendre  $g_{\nu}^{(j)*}$  indépendant de la taille de cellule, contrairement à la première approche. Ceci est illustré en deux dimensions par la figure II.6.



**FIGURE II.6** Calcul de l'aire de croissance maximum  $A_{\nu \max}^{(j)}$  de l'enveloppe d'une cellule  $\nu$ , avec l'approche de l'espacement dendritique primaire [Mos10]. Il n'y a plus de notion de voisinage, le calcul de  $g_{\nu}^{(j)*}$  devient donc indépendant de la taille de cellule.

Il faut rappeler que le développement des octaèdres selon les directions  $\langle 100 \rangle$  représente la croissance des pointes primaires et des bras secondaires des dendrites dans le liquide, tandis que l'augmentation de la fraction solide à l'intérieur des enveloppes octaédriques représente l'épaississement des bras secondaires. De ce point de vue, il est justifié qu'un bras de dendrite puisse croître jusqu'à une longueur  $\lambda_1/2$ . Le couplage avec des modèles type Wang-Beckermann prend alors une logique, qui sera décrite au paragraphe 4.3. Cependant, plusieurs problèmes apparaissent avec cette méthodologie. Premièrement, l'espacement interdendritique primaire  $\lambda_1$  n'est pas *a priori* connu pour un matériau donné. De plus, sa valeur peut très bien changer selon les conditions de refroidissement, et donc varier d'un endroit à l'autre du lingot. Deuxièmement, une certaine épaisseur  $W_{CA}$  de l'ordre de  $R_f$  est donnée à la frontière de l'enveloppe, qui devient diffuse. Ceci est illustré par la figure II.7. En effet, des cellules qui ont capturé tous leurs voisins, donc qui sont derrière le front  $F_0^{(j)}$ , défini par la frontière  $g_{\nu}^{(j)*} = 0$ , peuvent tout de même avoir une fraction d'enveloppe  $g_{\nu}^{(j)*} < 1$  tant que  $R_f$  (et donc  $V_{\nu \max}^{(j)}$ ) n'est pas atteint localement. Un deuxième front  $F_1^{(j)}$  est défini par la frontière  $g_{\nu}^{(j)*} = 1$ . L'épaisseur de la frontière  $W_{CA}$  est donnée par la longueur  $F_0^{(j)} F_1^{(j)}$ . Revenons encore une fois à la définition, qui indique que tant que  $g_{\nu}^{(j)*} < 1$  les bras de dendrite peuvent croître dans les directions  $\langle 100 \rangle$ , et quand  $g_{\nu}^{(j)*} = 1$  seule une croissance transverse peut s'effectuer. Au niveau de

$F_0^{(j)}$ , les bras primaires peuvent donc s'étendre vers la zone où  $g_\nu^{(j)*} = 0$ . Entre  $F_0^{(j)}$  et  $F_1^{(j)}$ , les bras secondaires peuvent encore croître dans du liquide libre. Enfin, le front  $F_1^{(j)}$  indique la fin de la croissance, derrière laquelle les pointes de dendrite ont rencontré un autre bras primaire et ne peuvent plus croître, et où l'évolution des fractions de phases se fera de façon interne à l'enveloppe. Finalement, notons qu'avec cette approche la taille de cellule doit absolument être inférieure à  $\lambda_1/2$ .



**FIGURE II.7** Exemple d'interface diffuse de zone pâteuse pour une rangée de cellules en 2D, avec le calcul de  $g_\nu^{(j)*}$  introduit par la figure II.6. La croissance des octaèdres, qui correspond à la croissance des pointes de dendrite, permet de calculer la fraction d'enveloppe pour chaque cellule. L'évolution interne de la fraction solide est due uniquement à l'épaississement des bras. De par la méthode de calcul de  $g_\nu^{(j)*}$ , la frontière de l'enveloppe s'étend sur plusieurs cellules.

En pratique, cette deuxième approche sera surtout utilisée en conjonction avec les modèles type Wang-Beckermann. Dans la suite de ce travail, sauf spécifié explicitement, on prendra toujours la première approche pour calculer les fractions d'enveloppes.

**Fractions de zones** L'automate cellulaire permet de suivre le développement des enveloppes de grains de chaque structure solide, autrement dit les frontières entre les différentes zones. Il n'est cependant pas trivial de déduire les zones à partir des enveloppes

des grains, en particulier si la géométrie des enveloppes est complexe. En pratique, on se ramènera à un problème 1D en considérant que toutes les structures croissent à partir du même centre, avec la même forme et la même orientation. Il est ensuite possible de calculer simplement les fractions volumiques des zones,  $g^{(j)}$ , à partir des fractions d'enveloppes,  $g^{(j)*}$ . Notons que cette simplification (même centre, même orientation et même forme des grains) est faite uniquement lors de la détermination des fractions de zones, et nullement lors du reste du calcul. En supposant que l'on ait, pour la figure II.1.d, des fractions d'enveloppes de grains  $g^{(1)*}$  et  $g^{(2)*}$  des structures  $s_1$  et  $s_2$ , on peut retrouver facilement les fractions de zones avec :

$$g^{(0)} = 1 - g^{(1)} - g^{(2)} \quad (\text{II.20})$$

$$g^{(1)} = g^{(1)*} - g^{(2)*} \quad (\text{II.21})$$

$$g^{(2)} = g^{(2)*} \quad (\text{II.22})$$

Ces relations dépendront du problème et de sa mise en données, et ne peuvent être généralisées simplement.

## 4 Modèles cinétiques

Les modèles cinétiques présentés ici sont des modèles indirects microscopiques, permettant de décrire l'évolution de la microstructure sans suivre explicitement les interfaces entre les phases. Ces modèles sont utilisés pour nourrir les modèles FE et CA.

### 4.1 Germination

Comme introduit précédemment, la germination est ici considérée comme un phénomène statistique pour deux raisons : d'une part les modèles de germination ne permettent pas de prédire la localisation des germes, d'autre part il s'agit d'un phénomène atomique, bien en dessous de l'échelle de modélisation visée dans le cadre de cette étude. La germination est donc ici considérée comme instantanée à partir d'une certaine surfusion critique,  $\Delta T_{nucl}$ , qui est attribuée indépendamment à chaque germe selon une distribution gaussienne.

On constate aisément sur la figure II.2 que les sites ayant une surfusion critique élevée ne pourront éventuellement jamais germer, selon les conditions de refroidissement de la pièce. Il est donc difficile de déduire directement les paramètres de la loi gaussienne à partir d'observations expérimentales, puisque seuls les sites ayant germé peuvent être observés. À cela s'ajoute la difficulté de mesurer précisément la surfusion de germination de chaque grain, sur un nombre de grains assez grand pour avoir une statistique représentative. Pour ces raisons, les paramètres de la loi gaussienne ne sont quasiment jamais connus, en particulier dans les métaux, et doivent être déduits par essai-erreur afin de prédire une structure de grains en accord avec la réalité. Dans de rares cas, les paramètres de la loi de germination ont pu être reliés à l'expérience de façon plus directe.

Un premier cas concerne l'observation *in situ* par synchrotron de la solidification d'un alliage d'Al-3,5%pds Ni affiné [MN11]. Cette approche permet de compter le nombre de

grains germés et de mesurer la vitesse du front  $v_f$  pour plusieurs vitesses de refroidissement, mais la température elle-même est mal connue notamment à cause des radiations. La température du front et sa surfusion  $\Delta T_f$  peuvent cependant être retrouvées à partir de  $v_f$  et d'un modèle de cinétique de croissance tel celui présenté dans la section suivante. Il devient ensuite possible de retrouver la première partie de la distribution (faibles surfusions de germination) en traçant le nombre cumulé de sites en fonction de  $\Delta T_f$ . Les paramètres de la loi de germination sont finalement aisément calculés en supposant une distribution gaussienne ou log normale. Les auteurs n'ont en l'occurrence pas trouvé de meilleur accord avec une loi ou l'autre.

Un autre cas concerne la solidification en micro-gravité d'un alliage organique transparent, NPG-37,5%pds DC [Stu11]. Dans cette expérience, la température de germination de 26 grains équiaxe a été mesurée, donnant lieu à une statistique de germination avec une surfusion moyenne,  $\Delta T_N^{eff}$ , un écart-type  $\Delta T_\sigma^{eff}$  et une densité de grains  $n^{eff}$ . Ces valeurs concernent uniquement les grains germés, et sont bien sûr à différencier de  $\Delta T_N$ ,  $\Delta T_\sigma$  et  $n$  qui concernent tous les sites (même non germés). Il est cependant possible dans ce cas de déterminer  $\Delta T_N$ ,  $\Delta T_\sigma$  et  $n$  de manière à obtenir par la simulation des valeurs de  $\Delta T_N^{eff}$ ,  $\Delta T_\sigma^{eff}$  et  $n^{eff}$  proches de l'expérience, par exemple à l'aide de méthodes inverses.

Enfin, un dernier cas concerne l'addition d'un agent de germination, sous la forme de particules de  $TiB_2$ , dans un alliage d'aluminium [Gre00]. Les auteurs ont pu mesurer une distribution de taille des particules par analyse d'image. Reprenant cette distribution, les surfusions de germination correspondantes sont calculées avec un modèle de germination hétérogène, soit :

$$\Delta T_{nucl} = \frac{4\sigma}{d\Delta s} \quad (\text{II.23})$$

$d$  étant le diamètre de la particule,  $\sigma$  l'énergie d'interface solide-liquide et  $\Delta s$  l'entropie de fusion volumique. Bien que les modèles cinétiques et de représentation des grains soient simplifiés, cette approche a permis de retrouver des distributions de tailles de grains en fonction de la charge d'inoculants et de la vitesse de refroidissement très proches de l'expérience. La distribution de la taille des particules suivant une loi gaussienne, son emploi dans la loi de germination est d'autant plus justifié.

## 4.2 Croissance

### Dendrite solutale en régime purement diffusif

L'étude de la cinétique de pointe de dendrite dans un régime de diffusion pure a été formalisée par Ivantsov [Iva47], puis améliorée à de nombreuses reprises. C'est le modèle développé dans [Kur86] qui est présenté ici. Sous l'hypothèse d'une pointe paraboloidale isotherme sans phénomène de retrait, on a :

$$\Omega = \text{Iv}(Pe_v) \quad (\text{II.24})$$

avec  $\Omega$  sursaturation chimique,  $\text{Iv}$  fonction d'Ivantsov et  $Pe_v$  nombre de Péclet solutal. Cette équation est valide pour les dendrites solutales, c'est-à-dire où le milieu est considéré isotherme et infini, et où la croissance est gouvernée par la diffusion de soluté. Cependant, la contribution de la surfusion thermique étant faible même avec de faibles teneurs en soluté [Dan09], cette équation sera par la suite utilisée dans un cadre plus général avec

un thermique non uniforme. Cette hypothèse est justifiée pour des surfusions de quelques Kelvins. Pour des dendrites thermiques (par exemple dans un corps pur), des équations analogues peuvent être facilement développées [Gui04a].

La fonction d'Ivantsov est définie par :

$$\text{Iv}(x) = x \exp(x) E_1(x) \quad (\text{II.25})$$

avec  $E_1$  la fonction exponentielle intégrale :

$$E_1(x) = \int_1^\infty \frac{e^{-tx} dt}{t} = \int_x^\infty \frac{e^{-u} du}{u} \quad (\text{II.26})$$

La sursaturation chimique est donnée par :

$$\Omega = \frac{w^{ls/l} - w^{l\infty}}{w^{ls/l} - w^{ss/l}} \quad (\text{II.27})$$

avec  $w^{ls/l}$  et  $w^{ss/l}$  respectivement la composition du liquide et du solide à l'interface, et  $w^{l\infty}$  la composition dans le liquide à l'infini. Enfin, le nombre de Péclet solutal est défini par :

$$Pe_v = \frac{rv}{2Dl} \quad (\text{II.28})$$

Les surfusions thermique et cinétique sont négligées :

$$\Delta T_T = T^{s/l} - T^{l\infty} \simeq 0 \quad (\text{II.29})$$

$$\Delta T_K = \frac{v}{\mu_0} \simeq 0 \quad (\text{II.30})$$

avec  $T^{s/l}$  et  $T^{l\infty}$  respectivement température de l'interface et à l'infini, et  $\mu_0$  coefficient de surfusion cinétique. La surfusion devient donc, d'après l'équation I.4 :

$$\Delta T = \Delta T_C + \Delta T_R \quad (\text{II.31})$$

La surfusion due à la courbure,  $\Delta T_R$ , est estimée par la condition de Gibbs-Thomson (équation I.8) avec  $K = 2/r$  et  $\Gamma = \sigma/\Delta S$  selon :

$$\Delta T_R = \frac{2\Gamma}{r} \quad (\text{II.32})$$

La surfusion chimique,  $\Delta T_C$ , peut être estimée dans l'approximation d'une pente de liquidus  $m$  constante entre  $w^{l\infty}$  et  $w^{ls/l}$ , ce qui est justifié pour de faibles sursaturations. La surfusion devient alors :

$$\Delta T_C = m (w^{l\infty} - w^{ls/l}) \quad (\text{II.33})$$

Le jeu d'équations II.24, II.27, II.28, II.31, II.32 et II.33 ne peut être résolu en l'état, puisque deux inconnues sont introduites : le rayon et la vitesse de la pointe,  $r$  et  $v$ . La résolution des équations d'Ivantsov donne donc pour résultat plusieurs couples  $(r, v)$ . Plusieurs approches ont été développées pour déterminer quel couple est sélectionné par

la dendrite lors de la croissance. Initialement, la vitesse maximale était retenue, mais les observations expérimentales ont montré les limites de cette théorie, et parallèlement l'efficacité de l'approche de stabilité marginale [Mul64]. Ce modèle fait l'hypothèse que le rayon de la pointe de dendrite est égal à la longueur d'onde minimale pour déstabiliser une surface plane, et aboutit à la relation :

$$r^2v = \frac{D^l\Gamma}{\sigma^*m(w^{s/s/l} - w^{l/s/l})} \quad (\text{II.34})$$

avec  $\sigma^*$  constante de stabilité. Ainsi, l'analyse d'Ivantsov donne  $rv = \text{constante}$  (équation II.28) et le critère de stabilité marginale donne  $r^2v = \text{constante}$  (équation II.34). Le système n'admet plus qu'une solution unique. Pour autant, un problème se pose pour la détermination de la variable  $\sigma^*$  : initialement égale à  $(4\pi^2)^{-1}$ , sa détermination a donné lieu à de nombreuses discussions. D'autres théories, comme la microsolvabilité, prédisent une valeur dépendante de l'énergie de surface. Les expériences ont montré une déviation assez importante par rapport à sa valeur initiale [Hua81]. Enfin, des analyses par champ de phase semblent montrer que  $\sigma^*$  dépend de plusieurs paramètres [Mul11]. Le problème principal est que le modèle cinétique se base sur certaines hypothèses, et que faire varier le critère de stabilité ne revient peut-être qu'à essayer de compenser ces hypothèses. Il est donc difficile de dire si les différences par rapport à l'expérience ou à des modèles microscopiques viennent réellement de la valeur de  $\sigma^*$ . C'est pour cela que beaucoup d'auteurs continuent à utiliser la valeur initiale :

$$\sigma^* = \frac{1}{4\pi^2} \quad (\text{II.35})$$

### Dendrite solutale en présence de convection

Dans le cas d'une croissance dendritique en présence de convection, il devient nécessaire de distinguer une couche limite d'épaisseur  $\delta_c$  devant la pointe, où le transport de soluté est supposé purement diffusif. En dehors de cette couche limite, le transport de soluté est gouverné par la convection. Un développement des équations peut alors être effectué [Gan03, Gui04a]. La sursaturation chimique devient :

$$\Omega = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1 \left( Pe_v \left( 1 + \frac{\delta_c}{2r} \right) \right) \right] \quad (\text{II.36})$$

L'expression de  $\delta_c$  est obtenue en assimilant la pointe à une sphère, et permet de trouver la sursaturation en fonction de l'angle  $\theta$  entre la direction du liquide incident et l'orientation de la pointe (voir un exemple sur la figure II.8) :

$$\Omega = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1 \left( Pe_v \left( 1 + \frac{4}{D_1 Re^{D_2} Sc^{D_3} \sin(\frac{\theta}{2})} \right) \right) \right] \quad (\text{II.37})$$

où  $Re$  et  $Sc$  sont les nombres de Reynolds et de Schmidt, définis par :

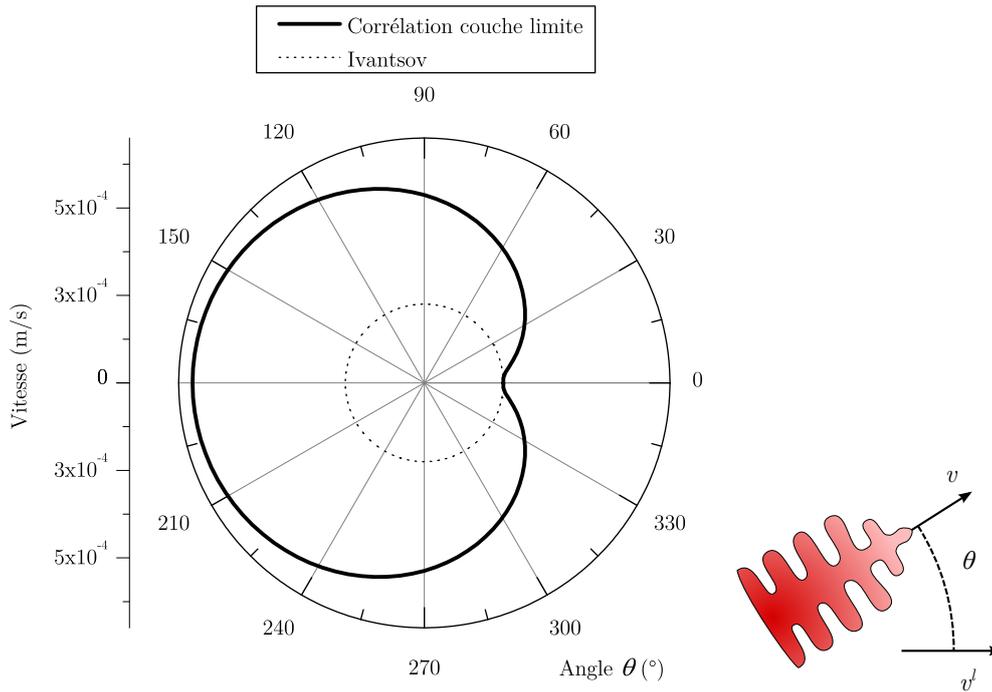
$$Sc = \frac{\mu^l}{\rho D^l} \quad (\text{II.38})$$

$$Re = \frac{2rv^l}{D^l Sc} \quad (\text{II.39})$$

avec  $\mu^l$  viscosité dynamique et  $v^l$  norme de la vitesse du liquide. Les coefficients  $D_1$ ,  $D_2$  et  $D_3$  de l'équation II.37 ont été déterminés pour retrouver la solution analytique de Ananth et Gill [Ana91] dans le cas  $\theta = \pi$ . On prendra donc :

$$\begin{aligned} D_1 &= 0,5773 \\ D_2 &= 0,6596 \\ D_3 &= 0,5249 \end{aligned} \tag{II.40}$$

Cette approche permet de retrouver la solution d'Ivantsov en diffusion pure, et de prendre en compte la désorientation de la dendrite par rapport à l'écoulement en régime convectif (fig. II.8).



**FIGURE II.8** Vitesse de croissance d'une pointe d'Al-7%pdS Si en fonction de l'angle entre la direction de l'écoulement et la direction de croissance, avec  $v^l = 0,01 \text{ m.s}^{-1}$  et  $\Delta T = 5 \text{ K}$ . La solution d'Ivantsov est tracée en ligne pointillée. Les autres paramètres sont identiques à ceux donnés dans Gandin *et al.* [Gan03].

Une limitation de ce modèle apparaît pour des angles  $\theta$  proches de 0, c'est-à-dire quand le liquide s'écoule dans la même direction que la croissance dendritique. Ceci s'explique par l'approximation sphérique de la pointe de dendrite, qui n'est bien sûr pas valide à l'arrière de la pointe où le tronc dendritique n'a pas une forme paraboloidale. L'interaction du liquide avec ce tronc ainsi qu'avec les autres branches certainement présentes à l'arrière de la pointe n'est pas prise en compte. En conséquence, la vitesse prédite par ce modèle montre une mauvaise corrélation avec les résultats expérimentaux dans ces conditions [Gan03]. De plus, la corrélation permettant de déterminer les coefficients  $D_i$  n'est valide que dans une certaine gamme de paramètres, correspondant à  $10^{-4} < Pe_v < 10$ ,  $10^{-2} < Pe_{v^l} < 10$  et  $50 < Sc < 500$ , avec  $Pe_{v^l} = rv^l/2D^l$  nombre de Péclet du fluide. Le modèle lui-même ne sera donc valide que dans une certaine gamme de surfusion, dépendamment du matériau étudié.

### Structure eutectique : modèle de Jackson-Hunt

Par simplification, on considérera ici que les grains eutectiques croissent avec une forme d'octaèdre, dont la vitesse des sommets est donnée par le modèle cinétique de Jackson-Hunt [Jac66] :

$$\Delta T = A_C P e_{eut} + \frac{A_R}{\lambda_{eut}} \quad (\text{II.41})$$

où  $\lambda_{eut}$  est l'espacement interlamellaire (figure I.2),  $P e_{eut}$  le nombre de Péclet défini par  $P e_{eut} = v \lambda_{eut} / D^l$ , et  $A_R / A_C$  une longueur moyenne de capillarité, dépendant notamment de l'angle formé entre les deux lamelles :

$$A_C = \frac{\bar{m} w'}{g_{eut}^\alpha g_{eut}^\beta} P' \quad (\text{II.42})$$

$$A_R = 2\bar{m} \left[ \frac{\Gamma^\alpha \sin(\theta^\alpha)}{g_{eut}^\alpha m^\alpha} + \frac{\Gamma^\beta \sin(\theta^\beta)}{g_{eut}^\beta m^\beta} \right] \quad (\text{II.43})$$

$$\bar{m} = \frac{|m^\alpha| |m^\beta|}{|m^\alpha| + |m^\beta|} \quad (\text{II.44})$$

$$P' = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin^2(n\pi g_{eut}^\alpha)}{(n\pi)^3} \quad (\text{II.45})$$

où  $g_{eut}^\alpha$  et  $g_{eut}^\beta$  sont respectivement les fractions de phase primaire  $\alpha$  et secondaire  $\beta$  dans la structure eutectique,  $\Gamma^\alpha$  et  $\Gamma^\beta$  leur coefficient de Gibbs-Thomson,  $\theta^\alpha$  et  $\theta^\beta$  leur angle de contact avec la phase liquide,  $m^\alpha$  et  $m^\beta$  leur pente de liquidus au niveau de l'eutectique, et  $w' = w_{eut}^\beta - w_{eut}^\alpha$ . En choisissant un point de fonctionnement tel que la surfusion est minimale pour une vitesse donnée, l'équation II.41 devient [Dan09] :

$$v = \Delta T^2 D^l / (4A_r A_c) \quad (\text{II.46})$$

En pratique,  $g_{eut}^\alpha$  et  $g_{eut}^\beta$  sont choisis constants pour un matériau donné au niveau du front eutectique, et l'équation II.46 se simplifie en  $v = c_{JH} D^l \Delta T^2$ , avec  $c_{JH}$  constante du matériau.

### Approche simplifiée

Dans certains cas, des observations expérimentales permettent de relier directement vitesse et surfusion. On pourra alors utiliser une cinétique de croissance simplifiée sous la forme d'une loi puissance :

$$v = \sum_i a_i \Delta T^{k_i} \quad (\text{II.47})$$

Les coefficients  $a_i$  et  $k_i$  étant tirés de l'expérience. Malgré le peu de fondement physique de cette relation, elle est souvent utilisée pour avoir une meilleure corrélation que les lois de type Ivantsov. Notons que les coefficients  $k_i$  sont souvent limités à des valeurs entières supérieures ou égales à 2.

## Résolution de la cinétique de pointe

En supposant les conditions locales (température, composition, direction et vitesse du liquide, etc.) connues au centre de la cellule  $\nu$ , le modèle de cinétique de pointe peut être résolu pour chaque branche de l'octaèdre. Cette résolution est triviale pour la loi puissance ou pour le modèle de Jackson-Hunt. Pour le modèle KGT en présence ou non d'écoulement, les équations II.37, II.38, II.39, II.27, II.28, II.31, II.32, II.33, et II.34 sont résolues par un algorithme non linéaire de Brent. Contrairement à la méthode présentée dans Gandin *et al.* [Gan03], c'est le rayon  $r$  qui est ici considéré comme inconnue principale, ce qui permet d'évaluer directement la surfusion avec la courbure, et évite ainsi de devoir effectuer plusieurs résolutions non linéaires.

### 4.3 Ségrégation

La connaissance de  $\langle H \rangle$ ,  $\langle w \rangle$  et  $g^{(j)}$  doit permettre de calculer le chemin de solidification et donc la température, les fractions de phases et leur composition. Ceci se traduit par l'équation suivante, en supposant une densité constante :

$$\rho_0 \langle H \rangle = \sum_{(j)} \sum_s \sum_{\varphi} g^{(j)} g_{(j)}^s(\langle w \rangle, T) g_s^{\varphi}(\langle w \rangle, T) \rho_0 \langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi} (\langle w^{\varphi_s} \rangle^{\varphi_s}, T) \quad (\text{II.48})$$

où  $g^{(j)}$  provient de la croissance des grains et est prédit par le modèle automate cellulaire, et  $\langle H \rangle$  et  $\langle w \rangle$  sont calculés par la résolution éléments finis. Pour alléger les équations,  $s$  englobe ici les structures solides,  $s_i$ , et les structures liquides,  $l_i$ . Il reste donc à déterminer la température,  $T$ , la fraction des structures  $s$  dans les zones  $(j)$ ,  $g_{(j)}^s$ , la fraction et la composition des phases  $\varphi$  dans les structures  $s$ ,  $g_s^{\varphi}$  et  $\langle w^{\varphi_s} \rangle^{\varphi_s}$ , et l'enthalpie de chaque phase  $\varphi$ ,  $\langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi}$ . Avec une définition donnée pour chacune de ces grandeurs, l'équation II.48 peut être résolue par un algorithme non linéaire de Brent en prenant  $T$  pour inconnue principale.

D'une manière générale,  $\langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi}$  dépend de la température et de la composition intrinsèque de la phase, on choisira donc une définition unique pour  $\langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi}$ , indépendante de la structure ou de la zone dans laquelle la phase  $\varphi$  se trouve. Deux approches sont possibles, la première se base sur une analyse simplifiée d'une chaleur latente,  $L^{\varphi}$ , et d'une capacité calorifique,  $C_p^{\varphi}$ , constantes par phase :

$$\langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi} (\langle w^{\varphi_s} \rangle^{\varphi_s}, T) = C_p^{\varphi} T + L^{\varphi} \quad (\text{II.49})$$

Dans ce cas l'enthalpie de la phase est indépendante de sa composition interne. L'autre approche se base sur des fonctions tabulées :

$$\langle H^{\varphi} \rangle^{\varphi} (\langle w^{\varphi_s} \rangle^{\varphi_s}, T) = f_{TAB}^{H^{\varphi}} (\langle w^{\varphi_s} \rangle^{\varphi_s}, T) \quad (\text{II.50})$$

$f_{TAB}^{H^{\varphi}}$  étant une tabulation tirée de bases de données thermodynamiques, par exemple à travers le logiciel Thermo-Calc. Des exemples de tabulations seront donnés notamment au chapitre III. Dans la suite de cette étude, les deux approches seront utilisées selon les cas.

À l'équation II.48 s'ajoutent les conditions suivantes :

$$\sum_j g^{(j)} = 1 \quad (\text{II.51})$$

$$\forall j, \sum_s g_{(j)}^s = 1 \quad (\text{II.52})$$

$$\forall s, \sum_{\varphi} g_s^{\varphi} = 1 \quad (\text{II.53})$$

Notons que l'équation II.51 est vérifiée à partir des équations liant  $g^{(j)*}$  et  $g^{(j)}$  (p.ex. les équations II.20, II.21 et II.22).

Les grandeurs  $g_{(j)}^s$ ,  $g_s^{\varphi}$  et  $\langle w^{\varphi s} \rangle^{\varphi s}$  doivent quant à elles être déterminées suivant un modèle de microségrégation. Ci-dessous sont donnés des exemples avec plusieurs modèles, sur le cas de la figure II.1.d qui servira de base à tous les calculs par la suite :

- trois zones sont définies, (0) correspondant à la zone de liquide libre, (1) à la zone pâteuse et (2) à la zone de croissance dendrites-eutectique,
- quatre structures sont définies,  $l_0$  correspondant au liquide extradendritique,  $l_1$  au liquide interdendritique,  $s_1$  à la structure dendritique et  $s_2$  à la structure eutectique,
- trois phases sont définies, *LIQ* correspondant au liquide, *BCT* au solide primaire et *FCC* au solide secondaire.

Plusieurs grandeurs sont triviales et communes à tous les modèles de solidification présentés par la suite. Au niveau des fractions de structures,  $g_{(0)}^{l_0} = 1$ ,  $g_{(1)}^{s_1} + g_{(1)}^{l_1} = 1$  et  $g_{(2)}^{s_1} + g_{(2)}^{s_2} = 1$ . Au niveau des fractions internes de phases,  $g_{l_0}^{LIQ} = g_{l_1}^{LIQ} = 1$ , et  $g_{s_1}^{LIQ} = g_{s_2}^{LIQ} = 0$ . Les exemples ci-dessous concernent le traitement des fractions et des compositions de phases dans les zones (0) et (1) uniquement. La croissance de l'eutectique (zone (2)) est traitée séparément et de façon similaire pour tous les modèles de microségrégation. Elle sera donc présentée à la fin de cette section.

## Loi des leviers

La loi des leviers suppose une diffusion instantanée dans le liquide et le solide, autrement dit que l'équilibre thermodynamique est toujours respecté. À partir de cette hypothèse, on peut déterminer la fraction de liquide par rapport à la fraction de solide pour une composition moyenne,  $\langle w \rangle$  :

$$g_{(1)}^{l_1} = \frac{\langle w \rangle - w^{s_1 s_1/l_1}}{w^{l_1 s_1/l_1} - w^{s_1 s_1/l_1}} \quad (\text{II.54})$$

$$g_{(1)}^{s_1} = 1 - g_{(1)}^{l_1} \quad (\text{II.55})$$

$$\langle w^{l_1} \rangle^{l_1} = w^{l_1 s_1/l_1} \quad (\text{II.56})$$

$$\langle w^{s_1} \rangle^{s_1} = w^{s_1 s_1/l_1} \quad (\text{II.57})$$

Les compositions à l'interface  $s_1/l_1$  sont directement données par l'équilibre thermodynamique, on pourra donc calculer ces compositions par une linéarisation du diagramme de phase binaire :

$$w^{l_1 s_1/l_1} = \frac{T - T_m}{m} \quad (\text{II.58})$$

$$w^{s_1 s_1/l_1} = kw^{l_1 s_1/l_1} \quad (\text{II.59})$$

Concernant le liquide dans la structure  $l_0$ , ne considérant pas d'échanges entre  $l_0$  et  $l_1$ , on aura :

$$\langle w^{l_0} \rangle^{l_0} = \langle w \rangle \quad (\text{II.60})$$

Les structures  $s_1$ ,  $l_1$  et  $l_0$  n'étant constituées que d'une seule phase, les compositions moyennes  $\langle w^{s_1} \rangle^{s_1}$ ,  $\langle w^{l_1} \rangle^{l_1}$  et  $\langle w^{l_0} \rangle^{l_0}$  sont bien sûr directement égales aux compositions des phases  $\langle w^{BCT_{s_1}} \rangle^{BCT_{s_1}}$ ,  $\langle w^{LIQ_{l_1}} \rangle^{LIQ_{l_1}}$  et  $\langle w^{LIQ_{l_0}} \rangle^{LIQ_{l_0}}$ .

La composition moyenne du liquide,  $\langle w^l \rangle^l$ , notamment utilisée dans la résolution de l'équation de conservation du soluté, est obtenue simplement par moyenne sur toutes les structures liquides, i.e. :

$$\langle w^l \rangle^l = \frac{\sum_{l_i} g^{l_i} \langle w^{l_i} \rangle^{l_i}}{\sum_{l_i} g^{l_i}} \quad (\text{II.61})$$

Les équations II.54 et II.55 permettent de calculer la fraction de liquide interdendritique,  $l_1$ , et de fraction solide,  $s_1$ , dans la zone (1). Cette dernière peut, selon les résultats de la partie automate cellulaire, être absente en dessous de la température d'équilibre thermodynamique, ce qui se traduit par  $g^{(1)} = 0$ . Ceci dépend en particulier des surfusions de germination et de croissance. Par contre, quand la zone (1) est complètement développée, i.e.  $g^{(1)} = 1$ , on retrouve le chemin de solidification classique donné par la loi des leviers. L'introduction de  $g^{(1)}$  dans le calcul des fractions de phases (équ. II.48) revient ainsi à tronquer le chemin de solidification au-dessus d'une certaine température, qui dépend de la surfusion de germination et de croissance.

## Gulliver-Scheil

L'approximation de Gulliver-Scheil considère une diffusion nulle dans le solide, et infinie dans le liquide. L'interface est toujours considérée à l'équilibre thermodynamique, donc  $w^{l_1 s_1/l_1}$  et  $w^{s_1 s_1/l_1}$  sont donnés par le diagramme de phase. L'équation II.56 est également conservée. Par contre, la composition du solide n'est plus à l'équilibre et l'équation II.57 n'est plus vérifiée.

L'analyse du problème montre que le soluté rejeté par la croissance du solide correspond à l'augmentation de concentration dans le liquide, ce qui mène à :

$$(w^{s_1 s_1/l_1} - w^{l_1 s_1/l_1}) \frac{dg_{(1)}^{l_1}}{dt} = g_{(1)}^{l_1} \frac{dw^{l_1 s_1/l_1}}{dt} \quad (\text{II.62})$$

Dans le cas d'un diagramme linéarisé, cette équation peut être explicitement résolue en fonction de la température par exemple. Cependant, dans le cas général, il est nécessaire de discrétiser le problème en temps, ce qui donne :

$$g_{(1)}^{l_1} = g_{(1)}^{l_1-} \left( 1 - \frac{w^{l_1 s_1/l_1} - w^{l_1 s_1/l_1-}}{w^{l_1 s_1/l_1} - w^{s_1 s_1/l_1}} \right) \quad (\text{II.63})$$

avec  $g_{(1)}^{l_1-}$  et  $w^{l_1 s_1/l_1-}$  respectivement la fraction et la composition du liquide  $l_1$  précédente. De plus, la composition moyenne du solide  $s_1$  est donnée par :

$$\langle w^{s_1} \rangle^{s_1} = \frac{g_{(1)}^{s_1-} \langle w^{s_1} \rangle^{s_1-} + w^{s_1 s_1/l_1} d g_{(1)}^{s_1}}{g_{(1)}^{s_1}} \quad (\text{II.64})$$

avec, de façon analogue,  $g_{(1)}^{s_1-}$  et  $\langle w^{s_1} \rangle^{s_1-}$  respectivement la fraction de solide précédente et la composition moyenne du solide précédente. Ici encore, les seules inconnues sont  $w^{l_1 s_1/l_1}$  et  $w^{s_1 s_1/l_1}$ , qui devront être déterminées pour une composition moyenne et une température données. La composition du liquide dans  $l_0$  et dans  $l_1$  est calculée de la même manière qu'en loi des leviers.

La troncature du chemin de solidification avec l'approximation de Gulliver-Scheil se fait exactement de la même manière qu'en loi des leviers : l'équation II.63 permet de calculer la fraction des phases dans la zone (1), qui ne sera présente qu'en dessous d'une certaine température, dépendant de la surfusion de germination et de croissance.

### Modèle de Wang-Beckermann

Le modèle de Wang-Beckermann se base sur un bilan d'équilibre pour la conservation du soluté et de la masse dans chaque phase. Les hypothèses du modèle sont les suivantes :

- pas d'échange de soluté et de masse entre  $s_1$  et  $l_0$ ,
- l'interface  $s_1/l_1$  est à l'équilibre thermodynamique,
- le liquide  $l_1$  est homogène et à l'équilibre, c'est-à-dire  $\langle w^{l_1} \rangle^{l_1} = w^{l_1 s_1/l_1}$ .

De cette manière, le déplacement de l'interface  $l_0/l_1$  correspond à la croissance des pointes de dendrites, tandis que le déplacement de l'interface  $s_1/l_1$  correspond au développement des bras secondaires. Dans le contexte de la méthode CAFE, la frontière  $l_0/l_1$  est explicitement suivie par l'automate cellulaire, tandis que la frontière  $s_1/l_1$  évolue suivant les équations de conservation.

Nous supposons de plus dans la suite de cette étude que la convection est négligeable à l'échelle du VER de microségrégation, et donc que  $v^l = 0$  localement. Les trois équations de conservation pour les trois phases sont :

Pour le liquide extradendritique  $l_0$  :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( g^{l_0} \langle w^{l_0} \rangle^{l_0} \right) = g^{l_0} \varphi^{l_0} + w^{l_0/l_1} \frac{\partial g^{l_0}}{\partial t} + \frac{S^{l_0/l_1} D^l}{l^{l_0/l_1}} \left( w^{l_0/l_1} - \langle w^{l_0} \rangle^{l_0} \right) \quad (\text{II.65})$$

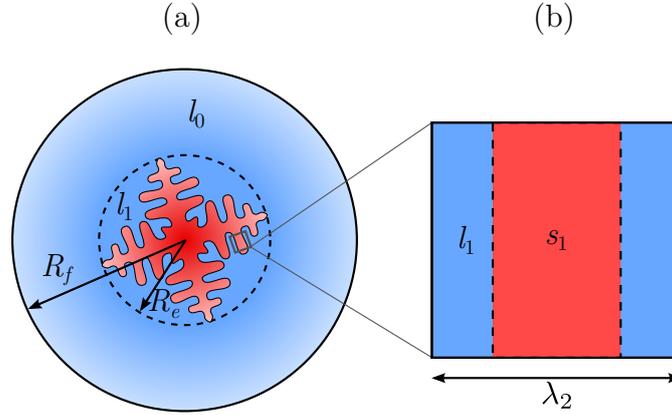
Pour le liquide interdendritique  $l_1$  :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( g^{l_1} \langle w^{l_1} \rangle^{l_1} \right) &= g^{l_1} \varphi^{l_1} - w^{l_1/l_0} \frac{\partial}{\partial t} (g^{l_0}) - w^{l_1/s_1} \frac{\partial}{\partial t} (g^{s_1}) \\ &+ \frac{S^{l_1/l_0} D^l}{l^{l_1/l_0}} \left( w^{l_1/l_0} - \langle w^{l_1} \rangle^{l_1} \right) \\ &+ \frac{S^{l_1/s_1} D^l}{l^{l_1/s_1}} \left( w^{l_1/s_1^{(1)}} - \langle w^{l_1} \rangle^{l_1} \right) \end{aligned} \quad (\text{II.66})$$

Et enfin pour le solide  $s_1$  :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g^{s_1} \langle w^{s_1} \rangle^{s_1}) = w^{s_1/l_1} \frac{\partial}{\partial t} (g^{s_1}) + \frac{S^{s_1/l_1} D^s}{l^{s_1/l_1}} (w^{s_1/l_1} - \langle w^{s_1} \rangle^{s_1}) \quad (\text{II.67})$$

avec  $\varphi^l$  le flux macroscopique de soluté arrivant ou quittant le VER,  $S^{\alpha/\beta}$  la densité de surface d'échange entre les phases  $\alpha$  et  $\beta$ , et  $l^{\alpha/\beta}$  les longueurs de diffusion de  $\alpha$  vers  $\beta$ .



**FIGURE II.9** Représentation 2D des approximations utilisées pour les surfaces d'échange : (a) sphérique pour l'interface  $l_0/l_1$ , et (b) plane pour l'interface  $s_1/l_1$ .

Pour estimer les surfaces d'échange, des simplifications géométriques sont nécessaires puisque la morphologie des bras dendritiques n'est pas connue (figure II.9). Au niveau de l'interface  $l_0/l_1$ , l'interface est approchée par une sphère [Gan08]. On a donc en 3D :

$$S^{l_0/l_1} = \frac{3R_e^2}{R_f^3} \quad (\text{II.68})$$

avec  $R_f = \lambda_1/2$  le rayon maximal de croissance et  $R_e = R_f \sqrt[3]{g^{(j)*}}$  le rayon actuel. Concernant l'interface  $s_1/l_1$ , la surface d'échange est approchée par un plan [Wan96b] :

$$S^{s_1/l_1} = \frac{2}{\lambda_2} \quad (\text{II.69})$$

Le développement des expressions pour les longueurs de diffusion est fait en supposant un profil de composition parabolique dans le solide et un état quasi stationnaire dans le liquide extradendritique [Wan93a, Mos10]. Les résultats sont simplement rappelés ici :

$$l^{s_1/l_1} = \left( \frac{g^{s_1}}{g^{s_1} + g^{l_1}} \right) \frac{\lambda_2}{6} \quad (\text{II.70})$$

$$l^{l_0/l_1} = \frac{R_e^3}{R_f^2 - R_e^2} \left[ \left( \frac{R_f^2}{R_e^2} E_1(Pe_v) - E_1 \left( Pe_v \frac{R_f}{R_e} \right) \right) \exp(Pe_v) - \frac{Pe_v + 1}{Pe_v^2} + \exp \left( Pe_v \left( 1 - \frac{R_f}{R_e} \right) \right) \left( \frac{R_f}{Pe_v R_e} + \frac{1}{Pe_v^2} \right) \right] \quad (\text{II.71})$$

Pour chaque VER, les équations de conservation II.65, II.66 et II.67 sont résolues de la manière suivante. Concernant le flux de soluté macroscopique  $\varphi^l$ , celui-ci est déduit

simplement de la résolution de l'équation de conservation du soluté avec une discrétisation en temps :

$$\varphi^l = \frac{\partial \langle w \rangle}{\partial t} = \frac{\langle w \rangle - \langle w_0 \rangle}{\Delta t} \quad (\text{II.72})$$

La répartition de ce flux entre le liquide interdendritique et le liquide extradendritique se fait comme suit [Wan96a] :

$$\frac{\varphi^{l_0}}{\varphi^{l_1}} = \frac{g^{l_0}}{g^{l_1} + g^{l_0}} \quad (\text{II.73})$$

Les équations II.65, II.66 et II.67 se recoupant, seuls les bilans sur le liquide extradendritique  $l_0$  (équ. II.65) et sur le solide  $s_1$  (équ. II.67) sont résolus, avec comme hypothèses supplémentaires :

$$g^{l_0} = g^{(0)} \quad (\text{II.74})$$

$$g^{l_1} + g^{s_1} = g^{(1)} \quad (\text{II.75})$$

$$g^{s_1} \langle w^{s_1} \rangle^{s_1} + g^{l_1} \langle w^{l_1} \rangle^{l_1} + g^{l_0} \langle w^{l_0} \rangle^{l_0} = \langle w \rangle \quad (\text{II.76})$$

Il est ensuite aisé de déduire les fractions internes aux zones pour rentrer dans l'équation II.48, par exemple :  $g_{(1)}^{s_1} = g^{s_1} / g^{(1)}$ .

Le choix de prendre  $T$  comme inconnue principale dans l'équation II.48 est général, mais ne permet pas de résoudre directement ce système. On devra donc, pour chaque  $T$ , résoudre un système non linéaire avec un algorithme de Brent en choisissant  $g^{l_1}$  comme inconnue principale. Cette imbrication de deux résolutions non linéaires n'est bien sûr pas souhaitable, cependant un changement de stratégie (par exemple résoudre II.48 en prenant  $g^{l_1}$  comme inconnue) ne serait valable que pour ce modèle de microségrégation particulier, faisant perdre le caractère général de la méthode. Il faudrait donc à l'avenir tester les performances des deux implémentations pour mesurer l'impact de ce choix, et éventuellement y revenir.

Les approximations de la loi des leviers et de Gulliver-Scheil peuvent être retrouvées avec le modèle de Wang-Beckermann, en faisant tendre les coefficients de diffusion vers des valeurs limites (0 ou l'infini).

## Chemins tabulés

Bien que le modèle de Wang-Beckermann ait été étendu à plusieurs phases solides [Tou09], son utilisation peut parfois être complexe sur des multicomposés avec beaucoup d'éléments d'alliage, et entraîner des temps de calcul importants. Dans le cadre de la méthode CAFE, le modèle de microségrégation doit être résolu au moins une fois par pas de temps à chaque nœud. Si on envisage des couplages directs avec des bases thermodynamiques, les temps de simulation deviennent vite irréalistes. Il peut donc être nécessaire de tabuler les chemins de solidification en fonction de la température et de plusieurs paramètres  $p_i$ ,  $i \in [1, n]$ . Ces paramètres sont généralement les compositions moyennes

de chaque élément d'alliage, auxquelles on pourra ajouter d'autres paramètres spécifiques tels que la vitesse de refroidissement, etc. On aura alors des fractions de structures et de phases définies explicitement :

$$g_{(j)}^{s_i} = f_{TAB}^{s_i^{(j)}}(p_1, p_2, \dots, p_n, T) \quad (\text{II.77})$$

$$g_{s_i}^\varphi = f_{TAB}^{\varphi_{s_i}}(p_1, p_2, \dots, p_n, T) \quad (\text{II.78})$$

$$\langle w^{\varphi_{s_i}} \rangle^{\varphi_{s_i}} = f_{TAB}^{w^{\varphi_{s_i}}}(p_1, p_2, \dots, p_n, T) \quad (\text{II.79})$$

Notons que les paramètres  $p_i$  ne sont pas obligatoirement les mêmes pour chaque tabulation. L'avantage de cette approche est une grande flexibilité, par exemple pour la solidification de polymères on pourra introduire une dépendance à la pression ambiante. L'inconvénient est le caractère fixe des tabulations, et la difficulté de passer d'un jeu de paramètres à un autre. En effet, les tabulations des chemins de solidification sont généralement effectuées pour un jeu de paramètres fixe. Or, il est tout à fait possible qu'un ou plusieurs paramètres changent pendant la solidification, par exemple un changement de composition moyenne locale due à une macroségrégation. L'entrée de la tabulation correspondant à ce nouveau jeu de paramètres provenant d'un chemin à paramètres fixes, l'historique de l'évolution de la composition sera perdu. Les fractions de phases calculées à un temps donné seront donc indépendantes de l'état précédent du système. De la même façon, il ne sera pas possible de garder l'historique de la vitesse de refroidissement, etc. En conséquence, cette approche prend sa plus grande signification en loi des leviers, où l'état actuel du système n'est pas influencé par l'histoire de l'évolution des paramètres au cours du temps.

### Croissance eutectique

La croissance de l'eutectique impose d'introduire un nouveau concept, de par le fait qu'elle entre en compétition avec la croissance dendritique. Les fractions de structure dendritique et eutectique dans la zone (2) ne sont pas connues au départ, et résulteront uniquement :

- de la surfusion de croissance de l'eutectique,
- de l'historique de la croissance dendritique et de sa solidification.

Autrement dit, la fraction eutectique dépendra uniquement de la quantité de liquide restant au moment de la croissance de la zone (2). Pour rendre compte de ce phénomène, nous attribuons à chaque zone ( $j$ ) une "zone mère" ( $m_j$ ) et à chaque structure solide  $s_i$  une "phase mère"  $\varphi_{s_i}^m$ . Par exemple, la zone (2) de croissance eutectique-dendrites aura pour zone mère la zone dendritique (1). De plus, les deux structures  $s_1$  et  $s_2$  auront pour phase mère la phase liquide. Il est ensuite possible de déterminer à chaque pas de temps la fraction de zone mère ( $m_j$ ) transformée par la croissance de la zone fille ( $j$ ) :

$$dg^{(m_j)} = g^{(j)t+\Delta t} - g^{(j)t} \quad (\text{II.80})$$

La fraction de phase mère qui pourra être transformée par la croissance de la structure  $s_i$  dans la zone ( $j$ ) est ensuite calculée en supposant une répartition homogène des phases

dans les zones :

$$g_{(j)}^{\varphi_{s_i}^m} = \frac{g_{(m_j)}^{\varphi_{s_i}^m} dg^{(m_j)}}{g^{(j)}} \quad (\text{II.81})$$

Finalement, la croissance de la structure  $s_i$  dans  $(j)$  est limitée par cette fraction de phase mère, par une troncature de type :

$$g_{(j)}^{s_i t + \Delta t} \leq g_{(j)}^{s_i t} + g_{(j)}^{\varphi_{s_i}^m} \quad (\text{II.82})$$

Puis la fraction de phase mère restante dans  $(j)$  est mise à jour, et les autres structures croissant également dans cette zone  $(j)$  et dans cette phase mère  $\varphi_{s_i}^m$  pourront se développer et être tronquées de la même manière. Les compositions des phases sont quant à elles calculées avec une moyenne analogue à l'équation II.64.

Ce concept de phase mère et de zone mère, ainsi que tout le formalisme précédent distinguant phases, structures et zones ont été développés dans le but de mettre en place une base formelle générale à tout problème de solidification. Son application est limitée ici aux croissances dendritique et eutectique sans zone couplée (c'est-à-dire sans croissance d'eutectique dans du liquide extradendritique). Cependant, il sera intéressant à l'avenir de voir l'applicabilité de ce formalisme et ses limitations pour des problèmes plus complexes, comme les transformations péritectiques, la croissance couplée eutectique-dendrites, ou encore les alliages multicomposés.

## 5 Couplages Macro-Méso-Micro

Dans cette section sont présentées les bases du couplage automate cellulaire-éléments finis et les différentes stratégies de résolution.

### 5.1 Transport FE→CA

Les grandeurs calculées aux nœuds du maillage éléments finis d'après la résolution des équations présentées dans la section 2 doivent dans un premier temps être interpolées au niveau des cellules pour résoudre les cinétiques de germination et de croissance. Pour une cellule  $\nu$  appartenant à un élément  $E_\nu$  du maillage, les grandeurs  $x_n^t$  calculées au nœud  $n$  et au temps  $t$  sont interpolées linéairement au centre  $C_\nu^0$  de la cellule, avec la relation :

$$x_\nu^t = \sum_{n \in E_\nu} \phi_n(C_\nu^0) x_n^t \quad (\text{II.83})$$

$\phi_n$  étant la fonction de forme du nœud  $n$ . Les variables nécessaires sont, suivant les modèles choisis : la température, la composition et le vecteur vitesse du liquide.

### 5.2 Transport CA→FE

Contrairement aux descriptions précédentes données dans la littérature, les fractions internes de phases sont calculées aux nœuds du maillage éléments finis et non pas au niveau de chaque cellule. Ceci permet de réduire notablement le temps de calcul, et présente plusieurs avantages :

- le calcul des fractions de phases lui-même peut être long à effectuer, le nombre de chemins de solidification calculés se limitera donc ici au nombre de nœuds du maillage et non pas au nombre de cellules,
- les cellules ayant atteint une fraction  $g_\nu^{(j)*} = 1$  n'évolueront plus et peuvent être supprimées du calcul, moyennant certaines précautions. Cette partie, qui constitue l'allocation dynamique, sera présentée dans la section 6,
- une parfaite conversion de l'enthalpie en température aux nœuds. En effet, le calcul des fractions de phases et de la température au niveau des cellules pouvait mener à une incohérence au niveau des nœuds entre enthalpie, température et fractions de phases. Avec l'approche actuelle, le chemin de solidification est calculé aux nœuds et donc la relation enthalpie-température est respectée sur tout le maillage, ce qui a l'avantage de stabiliser les résolutions éléments finis.

Cette approche permet d'aller vers des calculs en trois dimensions, ce qui n'était pas possible dans les méthodes précédentes [Gui07, Mos10].

Après le calcul des fractions volumiques d'enveloppes au niveau des cellules, cette information est renvoyée au niveau des nœuds du maillage éléments finis par la sommation suivante :

$$g_n^{(j)*} = \frac{\sum_{\nu \in E_n} \phi_n(C_\nu^0) g_\nu^{(j)*}}{\sum_{\nu \in E_n} \phi_n(C_\nu^0)} \quad (\text{II.84})$$

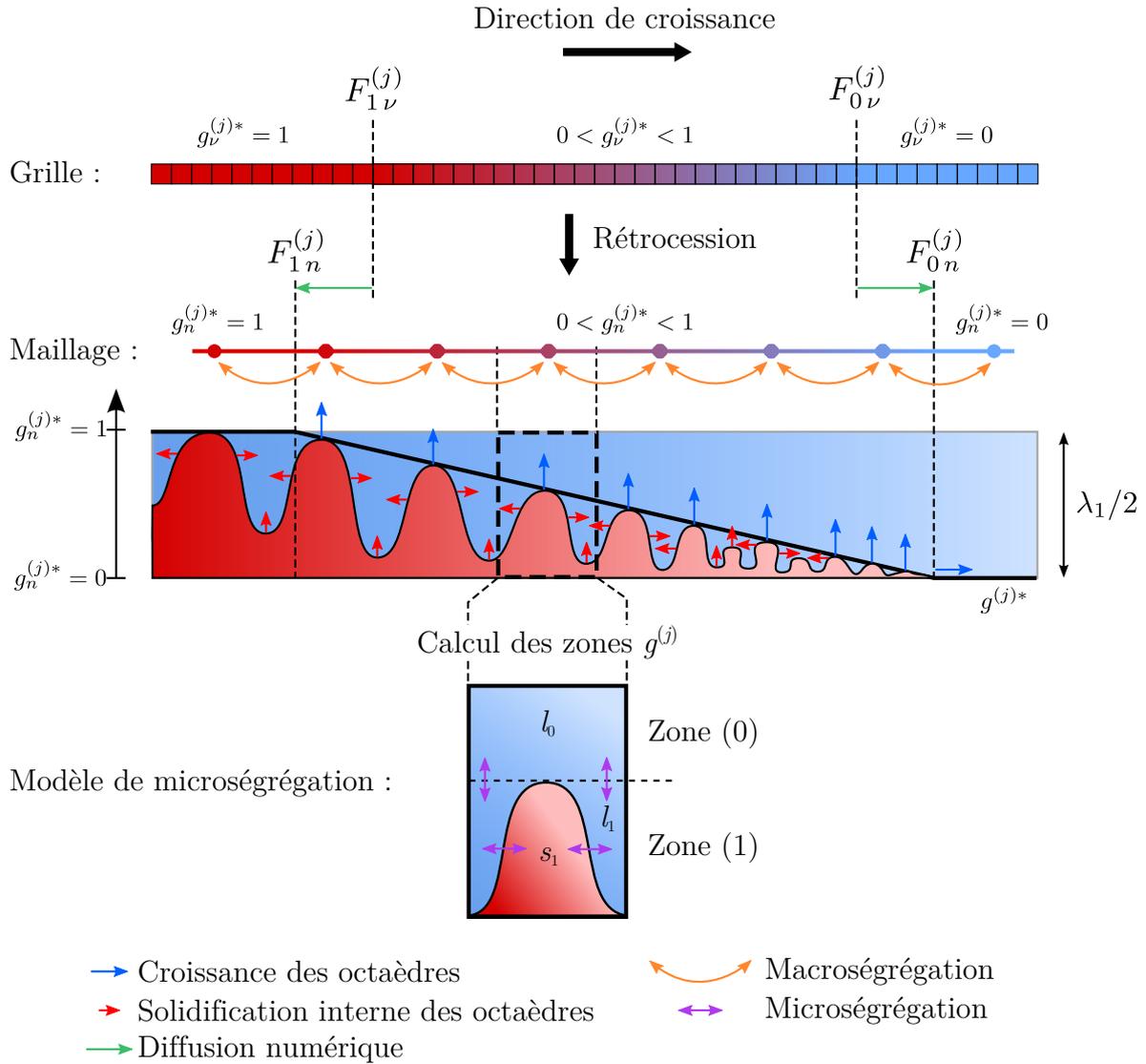
où  $g_n^{(j)*}$  est la fraction volumique d'enveloppe  $(j)*$  au nœud  $n$ , et  $E_n$  l'ensemble des éléments connectés au nœud  $n$ . Notons que l'analyse de l'interface diffuse faite au paragraphe 3.3 reste valide si la taille de maille est inférieure à  $W_{CA}$ . D'autre part, une diffusion numérique est introduite par cette rétrocession (illustrée sur la figure II.10), mais il sera montré dans les cas de validation qu'elle n'a pas d'influence significative sur les résultats tant que la taille de maille reste raisonnablement petite. Les fractions d'enveloppes  $g_n^{(j)*}$  permettent de déduire les fractions de zones  $g_n^{(j)}$  aux nœuds, qui sont utilisées dans le calcul du chemin de solidification présenté plus haut.

### 5.3 Micro pas de temps

L'algorithme de croissance et de capture requiert qu'au cours d'un pas de temps, une cellule donnée ne puisse capturer que ses voisins directs. Autrement dit, la croissance maximale des octaèdres au cours d'un pas de temps doit être au plus égale à  $l_{CA}$ . Si cette condition n'est pas respectée, une cellule pourrait potentiellement capturer des cellules au-delà de son voisinage direct, ce qui entraînerait une erreur dans le suivi des enveloppes de grains. Le pas de temps éléments finis,  $\Delta t$ , appelé pas de temps macroscopique, ne respecte pas forcément cette condition. Aussi, il est nécessaire de le diviser en micro pas de temps  $\delta t$ , défini comme :

$$\delta t = \min \left( \frac{l_{CA}}{v_{max}}, \Delta t \right) \quad (\text{II.85})$$

où  $v_{max}$  est la vitesse de croissance maximale parmi toutes les enveloppes suivies. Un temps microscopique  $t_m$  est ainsi introduit, qui est initialisé à  $t_m = t$  au début du macro pas de temps et incrémenté de  $\delta t$  jusqu'à  $t_m = t + \Delta t$ . L'algorithme de germination-croissance-capture est donc résolu plusieurs fois par pas de temps macroscopique. Notons que le micro pas de temps  $\delta t$  peut évoluer au cours d'un même macro pas de temps, puisque la vitesse maximale peut potentiellement changer.



**FIGURE II.10** Relation entre le calcul des fractions d’enveloppes aux cellules, la rétrocession aux nœuds du maillage, et l’application du modèle de microségrégation sur le VER associé à un nœud. L’interpolation introduit une diffusion numérique supplémentaire de l’interface.

## 5.4 Couplage itératif

Nous avons vu dans les paragraphes précédents comment retrouver température  $T$  et fractions de phases  $g^\varphi$  aux nœuds du maillage, à partir de l’enthalpie moyenne, des compositions moyennes et de la structure de grains calculée par l’automate cellulaire. Tout cet aspect de calcul du chemin de solidification concerne les nœuds individuels du maillage, mais s’inscrit dans un cadre plus général qui est la résolution de l’équation de conservation de l’énergie telle que présentée dans la section 2.1. Or, cette équation requiert d’évaluer  $T$  et  $g^\varphi$  à chaque nœud pour chaque itération de Newton-Raphson ( $k$ ). Et il a été montré que pour un couplage CA-FE en énergie fort, il est nécessaire pour évaluer ces grandeurs d’évaluer également  $g^{(j)}$  à chaque nœud, ce qui implique de résoudre les algorithmes CA à chaque itération de Newton-Raphson, et pour ce faire de conserver une copie complète de la grille de cellules au début du pas de temps. Cet aspect est expliqué

plus en détail au paragraphe suivant. Les surcoûts en termes de temps de calcul et de mémoire ont fait que ce couplage dit “itératif” n’a jamais été implémenté auparavant. L’argument consistait à dire que, pour un pas de temps macroscopique assez petit, la première évaluation de l’enthalpie est proche de la réalité, autrement dit que le critère de convergence II.8 est respecté dès la première itération ( $k = 0$ ). Cependant, l’erreur induite par cette approximation n’a jamais été quantifiée, et l’hypothèse elle-même jamais réellement validée.

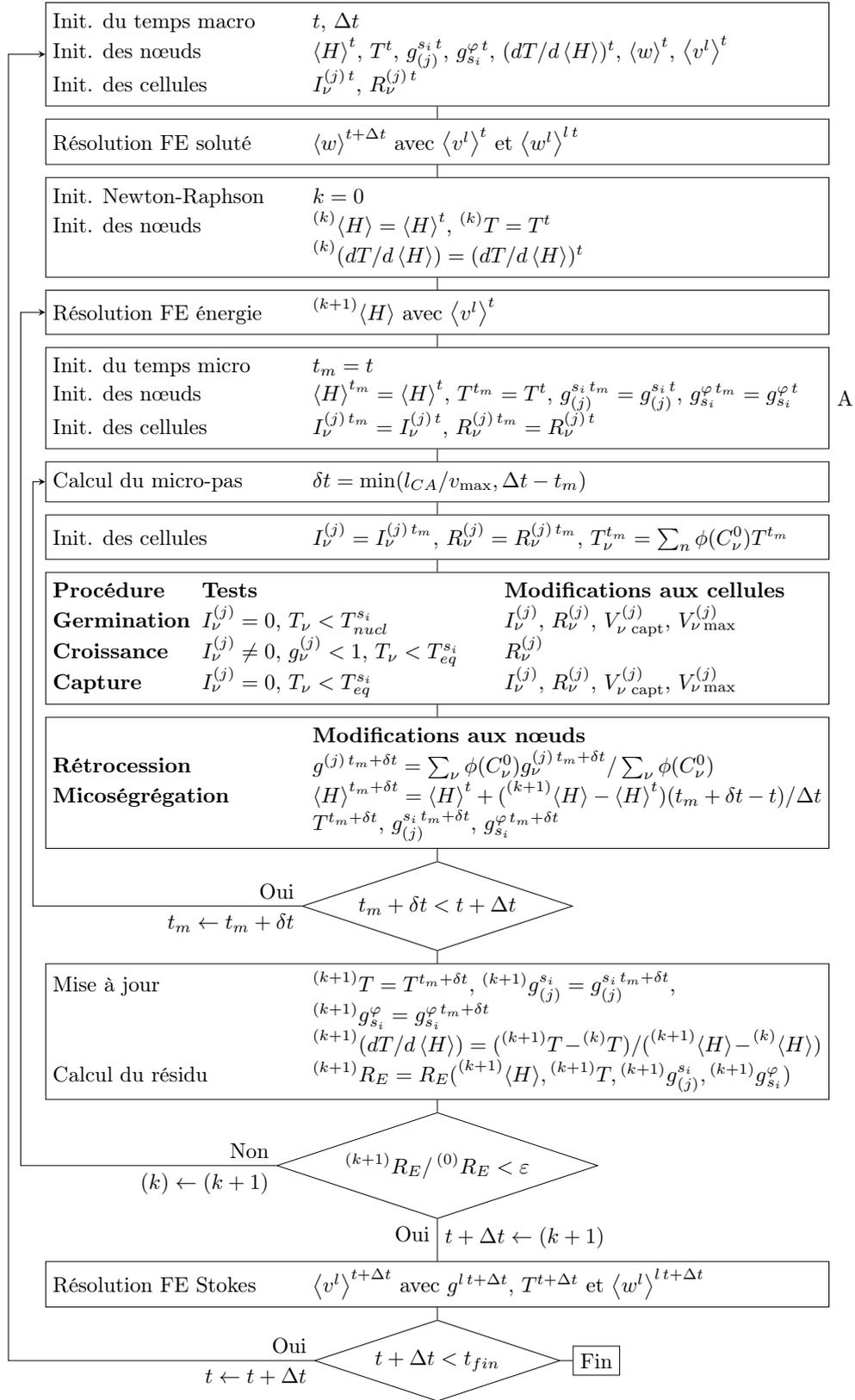
Nous proposons donc ici plusieurs types de couplage, qui permettront de tester l’influence de cette approximation sur les résultats (chapitre III).

### Couplage itératif complet

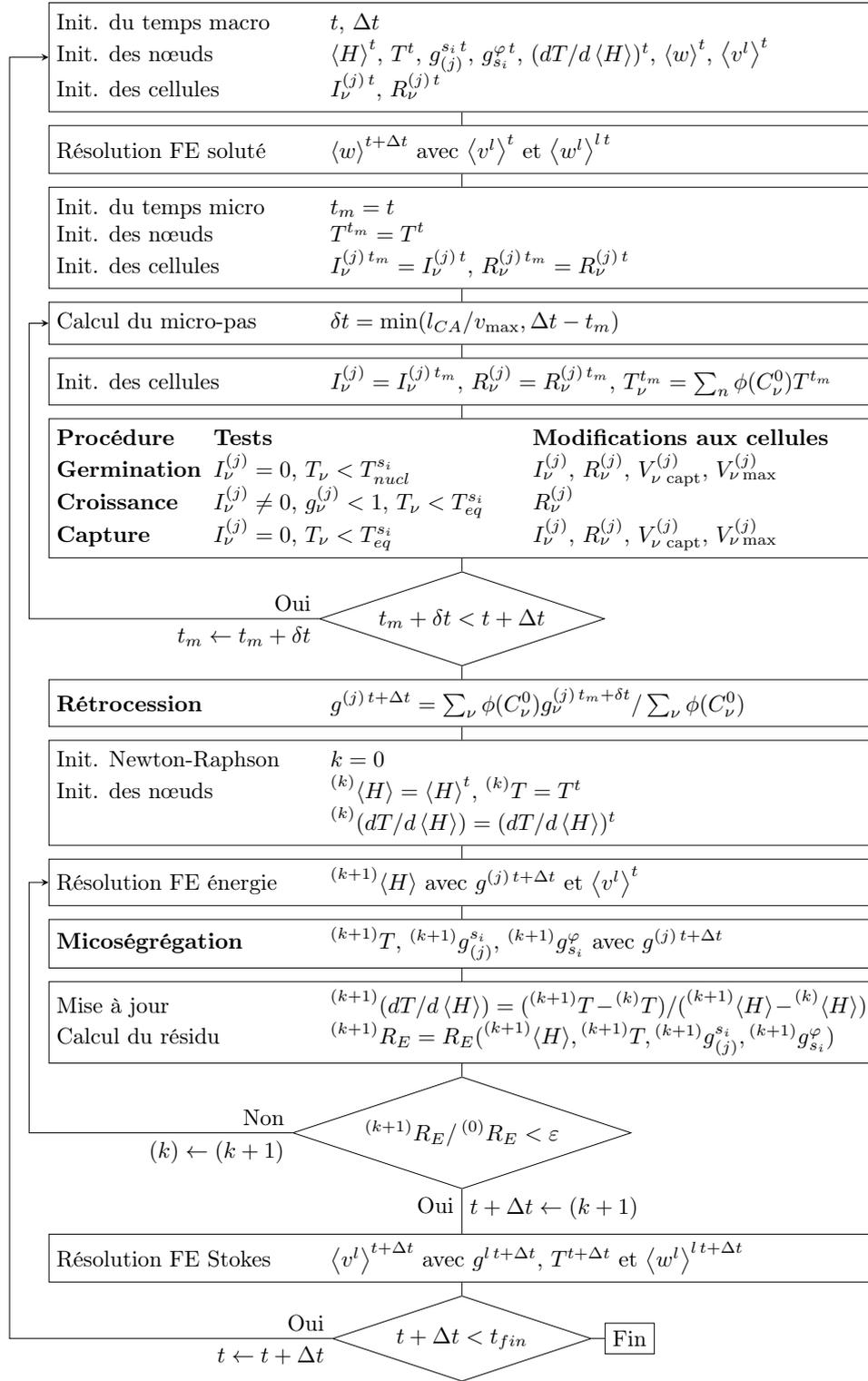
La figure II.11 reprend tout l’algorithme de résolution CAFE dans un contexte de couplage itératif complet. Au temps  $t$ , c’est-à-dire au début du pas de temps macroscopique, les diverses variables nécessaires au calcul sont initialisées aux nœuds et aux cellules, en particulier leur état,  $I_\nu^{(j)t}$ , et les rayons éventuels des octaèdres,  $R_\nu^{(j)t}$ , pour chaque enveloppe  $(j)*$  dont on suit la croissance. Puis, l’algorithme de Newton-Raphson est initialisé pour chaque variable  $x$  avec  $^{(k=0)}x = x^t$ . La variation d’enthalpie est évaluée par la résolution de l’équation II.2, donnant la nouvelle enthalpie  $^{(k+1)}\langle H \rangle$ . Le micro pas de temps est ensuite calculé et le temps microscopique initialisé à  $t_m = t$ . L’algorithme automate cellulaire de germination-croissance-capture est résolu sur le micro pas de temps  $\delta t$ , grâce aux valeurs interpolées dans l’espace et le temps, notamment  $T_\nu^{t_m}$ . À la fin du micro pas de temps,  $t_m + \delta t$ , les fractions de zones  $g^{(j)t_m+\delta t}$  sont calculées par rétrocession, et le modèle de microségrégation appliqué à chaque nœud pour trouver les fractions de structures et de phases,  $g_{(j)}^{s_i t_m+\delta t}$  et  $g_{s_i}^{\varphi t_m+\delta t}$ , et la température  $T^{t_m+\delta t}$ . Cette dernière sera ré-interpolée aux cellules et utilisée pour la résolution du micro pas de temps suivant, cette méthode étant répétée jusqu’à ce que  $t_m + \delta t = t + \Delta t$ . Cet instant constitue la fin de l’itération de Newton-Raphson, les variables sont donc mises à jour selon  $^{(k+1)}x = x^{t_m+\delta t}$  et le résidu correspondant  $^{(k+1)}R_E$  est évalué. Si le critère de convergence est atteint, les variables  $^{(k+1)}x$  sont supposées convergées et donc  $x^{t+\Delta t} = ^{(k+1)}x$ . Sinon, les variables (hormis l’enthalpie et  $dT/d\langle H \rangle$ ) sont réinitialisées à leurs valeurs au début du pas de temps et une nouvelle évaluation complète a lieu, jusqu’à convergence. Il est donc effectivement nécessaire de conserver une copie de l’état des cellules au temps  $t$  pour l’initialisation à l’étape A, indiquée sur la figure II.11. L’algorithme complet est réitéré à chaque macro pas de temps, jusqu’à la fin du calcul  $t_{fin}$ .

### Couplage non-itératif

Le couplage itératif constitue une nouveauté par rapport au couplage non-itératif précédemment décrit dans la littérature. Ce dernier reprend le même principe que l’algorithme de la figure II.11, mais en supprimant le critère de convergence et donc la boucle de Newton-Raphson. Pour reprendre le même formalisme, les variables  $x^{t+\Delta t}$  sont directement égales à  $^{(k=1)}x$ . Il est donc en particulier inutile de garder une copie de l’état des cellules au temps  $t$ , puisque la boucle sur les micro pas de temps ne sera effectuée qu’une seule fois par macro pas de temps.



**FIGURE II.11** Algorithme de couplage itératif complet en énergie CA-FE. L'indice  $\nu$  indique une grandeur aux cellules, tandis que l'absence d'indice indique une valeur aux nœuds du maillage.



**FIGURE II.12** Algorithme de couplage itératif explicite en énergie CA-FE. L'indice  $\nu$  indique une grandeur aux cellules, tandis que l'absence d'indice indique une valeur aux nœuds du maillage.

### Couplage itératif explicite

Un couplage intermédiaire entre le couplage itératif complet et non-itératif est introduit ici, sous le nom de couplage itératif explicite. Celui-ci est motivé par le fait qu'il est

toujours très coûteux de garder une copie de la grille de cellules, surtout en termes de mémoire, mais que l'absence d'itérations dans la résolution de la conservation de l'énergie peut très rapidement mener à des oscillations et à des résultats incohérents. Ce couplage est représenté à la figure II.12.

On considère ici un schéma purement explicite pour la résolution automate cellulaire sur le macro pas de temps, c'est-à-dire que l'algorithme de germination-croissance-capture se basera uniquement sur les grandeurs au début du pas de temps, par exemple  $T^t$  et  $\langle w \rangle^t$ . Partant de cette hypothèse, il est possible de résoudre la croissance des grains en dehors de la boucle Newton-Raphson de résolution de l'énergie, puisque les résultats donnés par l'automate ne dépendront pas de  $^{(k)}x$  (ou  $x^{t+\Delta t}$ ). Cette approche permet de limiter les oscillations d'enthalpie ou de température, et donc d'utiliser des pas de temps  $\Delta t$  plus grands, sans doubler la mémoire nécessaire à la partie CA. L'erreur induite par rapport au couplage itératif complet se situe surtout au niveau de la structure de grains calculée, mais elle reste négligeable si  $\Delta t$  est raisonnablement petit, et elle disparaît complètement si  $\Delta t < \delta t$ . Dans la plupart des cas présentés par la suite, c'est ce couplage itératif explicite qui sera utilisé. Des évaluations quantitatives des différences entre ces trois couplages seront données au chapitre III.

### Remarques additionnelles : couplage fort

En réalité, les couplages présentés ci-dessus ne concernent que la résolution de l'énergie. Par rapport aux précédents algorithmes [Gui04a], il s'agit toujours d'un couplage fort en énergie seulement. La section 2 a clairement montré que les différentes équations macroscopiques résolues sur le maillage éléments finis sont liées. Par exemple, la vitesse de l'écoulement calculée dans les équations de Navier-Stokes se retrouve dans l'équation de conservation du soluté, qui permet de calculer l'évolution de la composition moyenne  $\langle w \rangle$ , elle-même influençant le chemin de solidification donc la résolution de l'énergie et la fraction de liquide, qui est également présente dans les équations de Stokes. En clair, un couplage fort nécessiterait de résoudre toutes ces équations plusieurs fois par pas de temps pour arriver à une convergence globale de toutes les grandeurs calculées. Malheureusement, et bien que cela ait été réalisé dans certains cas sans automate cellulaire [Liu05], ce couplage fort nécessite beaucoup plus de ressources en termes de mémoire et de temps de calcul. On se contentera donc, dans la suite de ce travail, d'un couplage faible entre les équations macroscopiques.

## 6 Implémentation parallèle

Avec le couplage en énergie aux nœuds, la résolution des équations automate cellulaire a pour unique but de déterminer la position du front des structures en cours de solidification, autrement dit de calculer les fractions d'enveloppes  $g^{(j)*}$  aux nœuds du maillage éléments finis. Pour chaque cellule, il est donc nécessaire de stocker son état global,  $I_\nu$ , son état vis-à-vis de chaque structure de solidification,  $I_\nu^{(j)}$ , et, pour chaque enveloppe présente, l'indice et l'orientation cristallographique du grain, ainsi que le centre,  $C_\nu^{(j)}$ , et les rayons des octaèdres,  $R_\nu^{(j)}$ , le volume de capture,  $V_{\nu\text{capt}}^{(j)}$ , et le volume de croissance maximum,  $V_{\nu\text{max}}^{(j)}$ . Le stockage et le traitement numérique de ces données devient, pour un grand nombre de cellules, un problème majeur. Or, pour prédire correctement les mécanismes de croissance et de compétition des grains, il a été montré que la taille des cellules doit

être inférieure à la taille critique de ramification du réseau dendritique [Hua81, Gan94]. Généralement, une taille de cellule de 100  $\mu\text{m}$  est suffisante pour les alliages métalliques, ce qui en trois dimensions correspond à  $10^6$  cellules par  $\text{cm}^3$ . Ce critère sera remis en évidence au chapitre suivant. Dans les procédés industriels, qui constituent l'échelle visée par ce modèle, le nombre total de cellules peut facilement dépasser  $10^9$ . Pour permettre l'utilisation du modèle sur ces tailles de domaines en trois dimensions, il est indispensable de procéder à des optimisations séquentielles de l'algorithme, et d'avoir recours au calcul parallèle.

Cette partie présente les différentes stratégies d'optimisation développées dans le modèle CAFE, et la parallélisation de la partie CA qui n'a jamais été réalisée auparavant.

## 6.1 Allocation dynamique

Avant même de passer à une parallélisation du code CAFE, diverses optimisations séquentielles peuvent être effectuées. En particulier, l'allocation dynamique de la grille de cellules a déjà été identifiée comme un point critique [Gan99]. La stratégie présentée dans Gandin *et al.* [Gan99] ne constitue cependant pas un algorithme optimal d'allocation dynamique, comme cela va être montré ici.

La thermodynamique indique que les cellules dont la température est supérieure à la température d'équilibre  $T_{eq}^{s_i}$  d'une structure  $s_i$  donnée, par exemple le liquidus pour la structure primaire dendritique, ne peuvent ni germer ni être capturées pour cette structure. Si, au cours d'un pas de temps macroscopique, la température reste supérieure à  $T_{eq}^{s_i}$ , alors la cellule est assurée de ne pas évoluer au cours de ce pas de temps, et donc de ne pas contribuer à l'évolution aux nœuds de la fraction d'enveloppe  $g^{(j)*}$  associée à cette structure. De façon analogue, quand la fraction d'enveloppe atteint 1 au niveau d'une cellule,  $g_\nu^{(j)*} = 1$ , cela signifie que le front a complètement dépassé la cellule et que celle-ci n'aura plus d'influence sur l'évolution de  $g^{(j)*}$  aux nœuds. Cette affirmation reste vraie à condition que la température n'augmente pas, auquel cas une refusion pourrait avoir lieu. Par la suite, nous ne prendrons en compte la refusion qu'au niveau du maillage, la structure de grains elle-même ne pouvant être ici refondue. À partir de ces considérations, il est possible d'ignorer certaines cellules durant le calcul, pour un pas de temps donné. La première étape consiste à remplacer l'équation II.84, permettant de rétroceder la fraction d'enveloppes des cellules aux nœuds, par une variation de fraction :

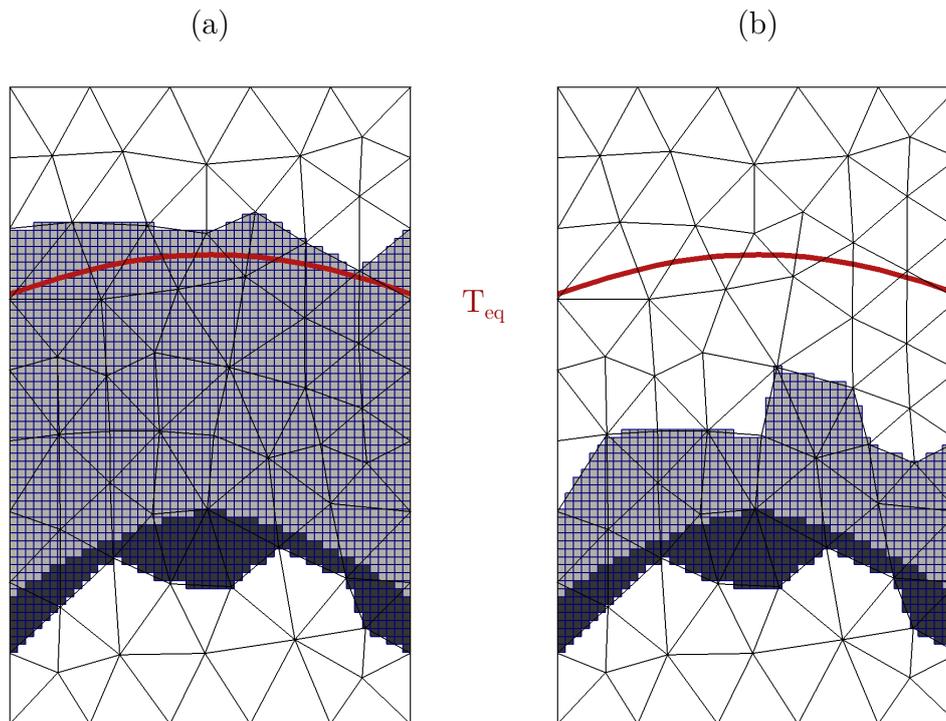
$$g_n^{(j)*t+\Delta t} = g_n^{(j)*t} + \frac{\sum_{\nu \in E_n} \phi_n(C_\nu^0) dg_\nu^{(j)*}}{\sum_{\nu \in E_n} \phi_n(C_\nu^0)} \quad (\text{II.86})$$

$dg_\nu^{(j)*}$  étant la variation au niveau de la cellule  $\nu$  de la fraction d'enveloppe  $(j)*$ , entre  $t$  et  $t + \Delta t$ . Il est ensuite possible d'activer ou de désactiver les cellules, ce qui se fera ici élément par élément, la grille automate cellulaire étant créée à partir du maillage éléments finis. Au cours d'un pas de temps macroscopique, l'élément  $E$  sera activé vis-à-vis d'une structure de solidification  $s_i$  si :

- au moins un nœud de l'élément  $E$  est à une température inférieure à  $T_{eq}^{s_i}$ .

Si cet élément était précédemment désactivé, les cellules appartenant à cet élément, c'est-à-dire les cellules dont le centre  $C_\nu^0$  est situé géométriquement dans l'élément, sont créées et considérées dans l'algorithme de résolution CA jusqu'à ce que l'élément soit désactivé, ce qui arrive quand :

– toutes les cellules de l'élément  $E$  ont atteint leur croissance maximum, i.e.  $g_{\nu \in E}^{(j)*} = 1$ . Cet algorithme est représenté à la figure II.13.a, qui est une vue schématique du maillage et des cellules activées dans un lingot 2D avec un gradient de température vertical. Le grain (en gris foncé) croît de bas en haut, et l'isotherme de la température d'équilibre de la structure est tracée en rouge. Grâce à l'algorithme présenté ci-dessus, une seule rangée d'éléments est activée devant le front de température  $T_{eq}$ , et une rangée derrière le front du grain. Le nombre de cellules est donc limité au domaine d'intérêt, ce qui est similaire aux stratégies précédentes [Gan99].



**FIGURE II.13** Solidification d'un grain dans un lingot 2D avec un gradient de température vertical. L'isotherme  $T_{eq}$ , ici correspondant à la température du liquidus, est tracée en rouge. Les cellules liquides (gris clair) et pâteuses (gris foncé) considérées dans la résolution au temps  $t$  sont représentées par-dessus le maillage éléments finis pour (a) l'algorithme standard et (b) le nouvel algorithme d'allocation dynamique. Dans cet exemple, le nombre de cellules actives est diminué de 55% en passant de (a) à (b).

Une sérieuse limitation de cette approche apparaît pour des problèmes avec de faibles gradients de température, qui sont des cas répandus dans l'industrie. Dans ce cas, un grand volume de liquide est surfondu. En conséquence, tous les éléments de ce volume sont activés. L'algorithme précédent est inefficace contre ce problème, et peut mener à des chutes importantes en termes de temps de calcul et d'utilisation mémoire. Ces limitations proviennent du fait que même si la majorité des cellules sont inactives (par exemple liquides), elles doivent être considérées dans le calcul car elles peuvent être associées à des sites de germination qui sont potentiellement à même de germer et de former un nouveau grain dès que la température devient inférieure à  $T_{eq}$ . Ces sites doivent donc absolument être pris en compte. Dans l'algorithme présent, les sites de germination sont traités indépendamment des cellules, bien qu'associés à ces dernières. Les sites sont tirés

aléatoirement dans le domaine surfondu, suivant le modèle statistique présenté plus haut, et stockés dans un espace indépendant sous la forme de tableau creux<sup>2</sup>. Chaque site reste associé à une cellule dans l'espace, même si cette cellule n'est pas encore créée.

Un nouvel algorithme d'allocation dynamique est alors possible, qui est représenté à la figure II.13.b. Tout comme la croissance cellulaire, l'allocation (i.e. l'activation des éléments) est maintenant propagée localement. Un élément  $E$  sera donc activé vis-à-vis de la zone  $(j)$  quand une de ces conditions est remplie :

- au moins un nœud de l'élément  $E$  a une fraction de zone “en croissance”, c'est-à-dire  $0 < g^{(j)*} < 1$ ,
- au moins un site de  $s_i$  associée à  $(j)*$  germe sur l'élément  $E$ .

La condition de désactivation reste la même que précédemment. De cette manière, seule une rangée d'éléments est activée devant et derrière le front de l'enveloppe  $(j)*$ , même quand tout le domaine est surfondu. Il est cependant toujours nécessaire de suivre les événements de germination dans la zone surfondu. Les améliorations apportées par cet algorithme seront quantifiées dans le chapitre III.

## 6.2 Calcul parallèle

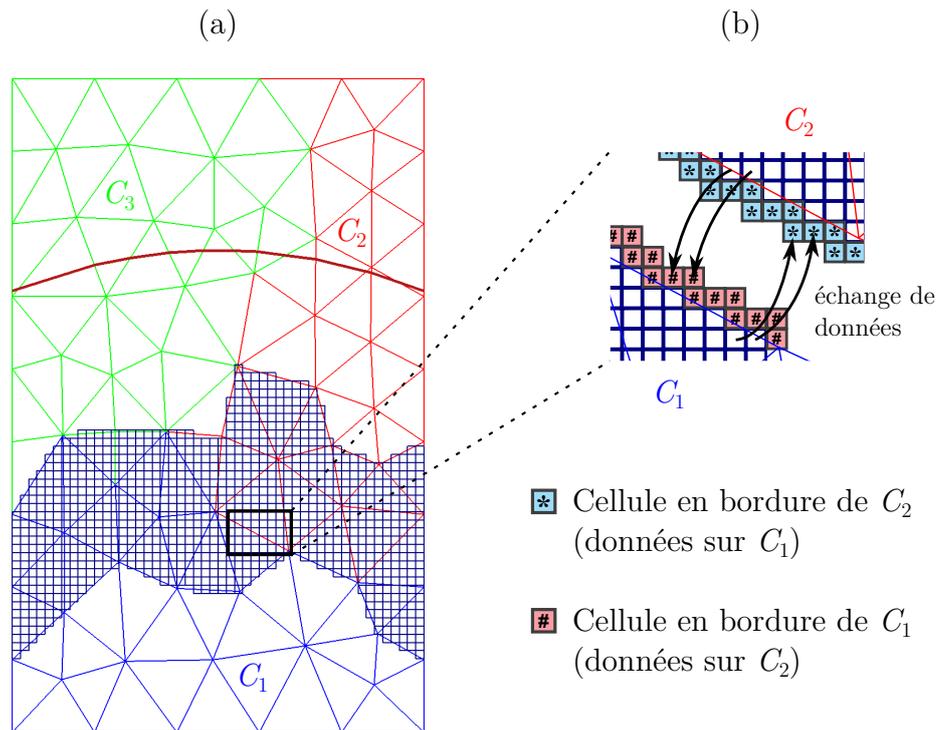
L'implémentation du modèle CAFE décrite ici se base sur la librairie CimLib développée au CEMEF, qui a été largement utilisée pour le calcul éléments finis en parallèle [Mes09]. Concrètement, le maillage est séparé en autant de parties que d'unités de calcul, chaque partie étant affectée à une unité (appelée cœur de calcul). Par la suite, “global” se référera au problème dans son intégralité tandis que “local” concernera la partie locale du problème affectée à un cœur. La figure II.14.a présente le même exemple que précédemment, résolu sur trois cœurs  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$ . Les domaines affectés aux cœurs sont distingués par la couleur des arêtes des éléments. Les équations éléments finis sont résolues avec des schémas itératifs implémentés à travers la librairie PETSc [Bal12]. Ces schémas permettent d'atteindre de bonnes performances en termes de temps de calcul en parallèle [Cou97]. En particulier, les communications entre les cœurs sont optimisées de façon à minimiser leur impact sur le temps de calcul.

L'algorithme automate cellulaire n'a quant à lui jamais été parallélisé dans le contexte du modèle CAFE. Par définition, il s'agit d'un modèle local de propagation par voisinage, il n'y a donc pas d'équation globale à résoudre. La principale barrière à la parallélisation du code est donc l'accès aux données des cellules voisines, même si celles-ci sont situées sur un autre cœur de calcul. La stratégie de résolution est représentée à la figure II.14.b, qui montre sur un exemple comment sont gérées les communications entre les cœurs  $C_1$  et  $C_2$ . Notons qu'ici, le problème CA est séparé de la même manière que le maillage éléments finis : les cellules appartenant à un élément donné seront affectées au même cœur de calcul que l'élément. Ce point sera discuté plus en détail dans la section suivante.

Dans le but de préserver l'unité de la grille de cellules, il est imposé qu'un cœur ne puisse modifier l'état et les données que de ses cellules locales. Dans cet objectif, la propagation des grains  $(j)*$  est effectuée en considérant le voisinage des cellules où  $I_\nu^{(j)} = 0$  (i.e. où l'enveloppe  $(j)*$  est absente). Au début de chaque macro pas de temps, l'état des voisins de chaque cellule locale est vérifié. Si un ou plusieurs de ces voisins n'existent pas localement, ils sont marqués comme cellules fantômes. La liste de ces cellules

---

2. L'implémentation se fait ici en C++. Les tableaux creux se réfèrent donc à la classe map définie dans la librairie standard STL.



**FIGURE II.14** Résolution du problème précédent (figure II.13.b) sur trois cœurs de calcul. (a) Le maillage éléments finis est coupé en trois parties (bleu, rouge, vert) assignées aux cœurs  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$ . Pour rendre possible la propagation de grains d'un cœur à l'autre, des échanges de données sont nécessaires (b). L'état et les données des cellules à l'interface sont mis à jour avant chaque micro pas de temps.

est ensuite envoyée aux autres cœurs de calcul<sup>3</sup>. Pour limiter la quantité de communications, cette liste est envoyée uniquement aux cœurs voisins, dont les domaines locaux sont géométriquement adjacents. Si la cellule fantôme est trouvée sur un cœur voisin, alors elle est ajoutée à la liste des cellules à l'interface avec ce cœur. Sur la figure II.14.b, les cellules fantômes de  $C_1$  et de  $C_2$  à l'interface  $C_1$ - $C_2$  sont marquées par les symboles # et \*, respectivement. Si une cellule fantôme n'est trouvée sur aucun des cœurs voisins, alors elle est considérée en dehors du maillage ou sur un élément désactivé, et simplement ignorée dans la suite de la résolution.

L'état et les données de ces cellules à l'interface sont mis à jour avant chaque micro pas de temps. Ces cellules fantômes peuvent donc être considérées comme des copies locales des "vraies" cellules. Par la suite, à chaque micro pas de temps, le voisinage est vérifié pour chaque cellule où  $I_\nu^{(j)} = 0$  (par exemple les cellules entièrement liquides). Suivant l'algorithme de capture présenté plus haut, la cellule peut éventuellement être capturée par un voisin où l'enveloppe  $(j)^*$  est en train de croître, que ce voisin soit une cellule fantôme (i.e. à l'interface) ou non.

D'autres procédures requièrent des communications entre cœurs de calcul, mais dans une moindre mesure. Par exemple, le numéro de grain doit être unique, la liste des grains germés est donc maintenue à jour globalement de façon à avoir une numérotation unique sur tous les cœurs de calcul.

<sup>3</sup> Rappelons que toutes les communications entre les cœurs sont ici gérées grâce à la bibliothèque MPI [Gro98].

## 6.3 Partitionnement

### Partitionnement éléments finis

Dans le but de maximiser l'efficacité de la résolution des équations sur le maillage éléments finis, il est généralement supposé que la complexité du problème dépend directement du nombre de nœuds et d'éléments dans le calcul. Il en ressort qu'une bonne approche pour partitionner le maillage entre plusieurs cœurs est d'équilibrer le nombre de nœuds et d'éléments entre les unités de calcul. Cependant, il est également important de réduire au mieux les communications entre les cœurs, ce qui implique de minimiser le nombre de nœuds à l'interface entre les domaines locaux. Plusieurs algorithmes spécifiques ont été implémentés pour traiter un grand nombre de cas et atteindre des partitions de bonne qualité [Bas00, Dig01]. La figure II.14.a est un exemple de partition optimisée pour la résolution FE, sur un cas schématique. Le nombre de nœuds/éléments locaux pour les cœurs  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$  est respectivement 25/39, 25/41 et 25/40. L'interface entre les partitions est également minimisée. En conséquence, on peut s'attendre à ce que l'efficacité parallèle lors de la résolution éléments finis soit élevée. Notons que sur des cas réalistes, qui impliquent plusieurs milliers de nœuds par cœur, une tolérance de 5% est admise (et généralement mesurée) sur l'équilibre en nombre de nœuds et d'éléments.

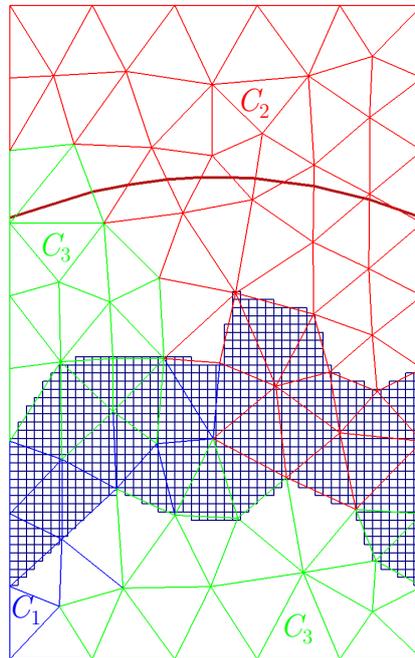
### Partitionnement CAFE

Le modèle CAFE ajoute une contrainte au partitionnement, en particulier avec l'allocation dynamique présentée ci-dessus. Étant donné les diverses interpolations et rétrocessions entre automate cellulaire et maillage, il est toujours plus optimal d'affecter les cellules au même cœur que l'élément auquel elles appartiennent. Le partitionnement de la grille de cellules est donc basé sur un partitionnement du maillage.

Cependant, l'approche standard de partitionnement n'est pas adaptée. Par exemple, sur la figure II.14.a, le nombre de cellules affectées aux cœurs  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$  est respectivement 492, 469 et 45. En conséquence, l'efficacité de la résolution CA ne sera pas optimale : le cœur  $C_3$  aura une activité proche de zéro. De plus, la plupart de la mémoire requise le sera par les cœurs  $C_1$  et  $C_2$ . Ceci peut devenir problématique pour des cas plus conséquents pour des machines à mémoire distribuée (voir fig. I.15.b). La mémoire est dans ce cas partagée équitablement entre les cœurs, ces derniers n'ayant normalement pas accès à la globalité de la mémoire si le calcul est lancé sur un nombre important de cœurs. Ceci provient du fait que les cœurs sont physiquement regroupés dans un cluster en nœuds de calcul. Chaque nœud a accès à une mémoire indépendante, et un problème lancé sur 10 nœuds ne pourra sans doute pas s'exécuter si toutes les données se retrouvent sur un nœud à cause d'un mauvais partitionnement. Le partitionnement dit "hétérogène" permet d'affecter un poids (i.e. une charge de calcul) différent à chaque entité (nœuds et éléments du maillage), selon son coût en termes de mémoire et de temps de calcul, ce qui est une approche logicielle du partitionnement. De plus, il peut être nécessaire, si les cœurs de calculs ne sont pas tous identiques, d'affecter une capacité de calcul différente à chaque cœur, ce qui constitue un partitionnement orienté matériel [Bas06]. Ce dernier ne sera pas utilisé par la suite.

En ce qui concerne le partitionnement orienté logiciel, une première stratégie est d'essayer d'équilibrer le nombre de cellules entre les unités de calcul. Le nombre de cellules par élément dépend de la forme et de la taille de l'élément. De plus, à cause de l'algorithme

d'allocation dynamique, seuls quelques éléments sont activés à un temps  $t$  et contiennent véritablement des cellules. Il est donc nécessaire d'estimer le poids de chaque élément dans la résolution CA avant de partitionner le problème.

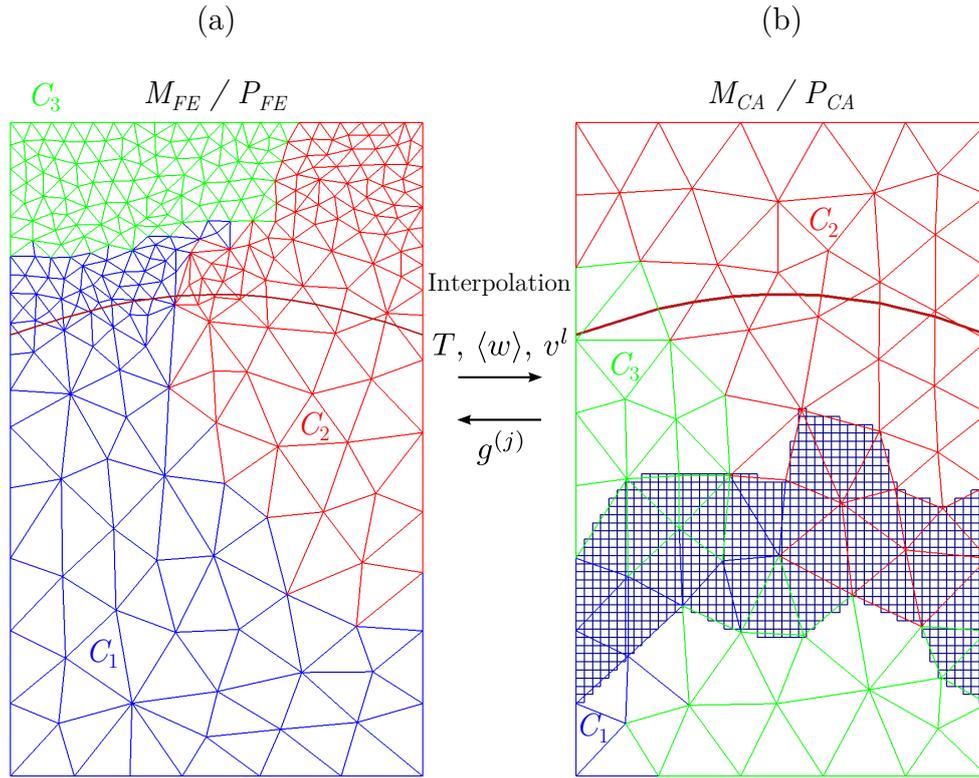


**FIGURE II.15** Partitionnement optimisé pour la résolution automate cellulaire. Un poids est donné à chaque élément en fonction du nombre de cellules qu'il contient. Le problème n'est cependant plus optimisé pour la résolution FE. Notons que le domaine de  $C_3$  n'est pas contigu.

La figure II.15 représente le même cas schématique que précédemment, mais en prenant en compte un poids par élément directement proportionnel au nombre de cellules appartenant à l'élément. Le nombre de cellules traitées par les cœurs  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$  est maintenant 382, 275 et 349. Le déséquilibre est grandement amoindri, mais toujours présent : il est dû à la grossièreté du maillage, et donc au fait que peu d'éléments peuvent être distribués entre les unités de calcul. Le problème automate cellulaire est cependant bien mieux équilibré que précédemment (figure II.14.a). Par contre, le partitionnement est loin d'être optimal pour la résolution des équations éléments finis, puisque le nombre de nœuds/éléments par cœur est maintenant 9/18, 35/58 et 29/44 pour  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$  respectivement. Le domaine de  $C_3$  n'est plus contigu, ce qui n'est pas un problème en soi, mais engendrera un surcoût de communication. Le temps de résolution FE risque d'être allongé par rapport à la partition précédente. Cela peut ne pas être important, par exemple pour des problèmes simples en thermique pure, mais ne peut être ignoré si le modèle inclut des équations avancées, en particulier la résolution d'un problème de mécanique. Une solution simple serait de donner un poids aux éléments en fonction de la répartition au niveau du temps de calcul et de la mémoire utilisée entre la partie CA et la partie FE. Mais cette approche pourrait simplement mener à un mauvais partitionnement pour les deux parties du problème...

Une autre solution, implémentée ici, utilise deux partitions différentes. Le partitionnement parallèle de la figure II.16.a,  $P_{FE}$ , est utilisé pour résoudre les équations FE sur le maillage. Le partitionnement de la figure II.16.b,  $P_{CA}$ , est quant à lui utilisé pour créer et activer la grille de cellules, et faire les interpolations/rétrocessions entre maillage

et cellules. Ces deux partitionnements sont en fait considérés comme deux maillages indépendants,  $M_{FE}$  et  $M_{CA}$ , ce qui requiert un surplus de mémoire. Cependant, plusieurs avantages résultent de cette méthode, en particulier quand un remaillage devient nécessaire. Un exemple est donné par la figure II.16.a, où on suppose que le problème FE nécessite une taille de maille plus fine au-dessus de la température d'équilibre. Cette zone étant loin de l'interface avec le grain, ce raffinement n'est pas utile au niveau du maillage "support" pour l'automate cellulaire,  $M_{CA}$ . De plus, remailler  $M_{CA}$  implique de réassigner les cellules aux nouveaux éléments selon la nouvelle topologie de maillage, ce qui ajoute un surcoût en termes de temps de calcul.



**FIGURE II.16** Approche à deux maillages et deux partitions du modèle CAFE. Une partition (a) est utilisée pour la résolution FE, différente de la partition (b) pour la résolution CA. Le maillage FE peut facilement être raffiné si besoin. Les grandeurs nécessaires sont interpolées entre les deux maillages, impliquant un surcoût de communications et de calcul.

Le lien entre les deux maillages requiert bien sûr des communications supplémentaires. Concrètement, les variables utilisées dans la résolution de l'algorithme automate cellulaire sont calculées aux nœuds de  $M_{FE}$  et interpolées aux nœuds de  $M_{CA}$  à chaque macro pas de temps. Dans la plupart des cas, les grandeurs nécessaires sont la température, la concentration en soluté et la vitesse du liquide. De même, les résultats provenant de la croissance des grains, c'est-à-dire les fractions d'enveloppes  $g^{(j)*}$ , sont rétrocedés sur le maillage  $M_{CA}$  puis interpolés aux nœuds de  $M_{FE}$ . S'il n'y a pas de remaillage, alors les nœuds de  $M_{FE}$  et  $M_{CA}$  sont coïncidents et l'interpolation se résume à un transport de données d'un cœur à l'autre. Si les deux maillages ne coïncident pas, comme c'est le cas sur la figure II.16, une interpolation linéaire est effectuée. L'impact de cette interpolation sur le temps de calcul est cependant limité en ne calculant les coefficients d'interpolation

que lorsque nécessaire, par exemple après chaque remaillage.

## Repartitionnement

Une problématique supplémentaire vient de l'allocation dynamique, qui limite la zone de calcul  $CA$  à quelques éléments sur tout le maillage. Si le lingot est entièrement solidifié, cela signifie que la zone activée (contenant des cellules) traversera tout le domaine au cours du calcul. Le partitionnement  $P_{CA}$  doit donc évoluer pour suivre et rester cohérent avec l'allocation dynamique, et garder une répartition égale des cellules entre les cœurs. La méthode de partitionnement en elle-même ne change pas par rapport au partitionnement initial. Le repartitionnement doit être limité en nombre, car s'il est souvent répété son influence sur le temps de résolution peut devenir non négligeable. Ici, une fréquence de repartitionnement est mise en place selon les cas.

## 6.4 Gestion de la mémoire

### Stockage des données

La force de la méthode automate cellulaire réside dans sa rapidité d'exécution. Une de ses faiblesses est la quantité de données stockées, ce qui peut devenir très vite problématique et dépasser la mémoire disponible. La première étape dans l'optimisation de la gestion de la mémoire consiste donc à limiter au mieux la quantité de données stockée par cellules, et pour la grille de cellules elle-même. Deux idées clés sont proposées et implémentées ici dans ce but.

Premièrement, la position des cellules dans l'espace n'est pas enregistrée directement. Habituellement, les valeurs nécessaires sont les coordonnées du centre de chaque cellule, c'est-à-dire trois réels<sup>4</sup> par cellule. Grâce à la régularité de la grille de cellules, il est en fait possible de déduire ces coordonnées à partir de l'origine du maillage, de la taille de cellule, et d'un indice unique, appelé numéro de cellule. Cet indice devra ou non être réellement stocké en mémoire pour chaque cellule, selon la méthode d'allocation mémoire (voir paragraphe suivant). Au pire, un entier non signé<sup>5</sup> sera stocké par cellule pour pouvoir retrouver sa position. Notons que cet indice limite en théorie le nombre de cellules possiblement représentables dans le calcul, mais bien que cela puisse être une limite en 32 bits (environ  $4 \cdot 10^9$  cellules), cette limite est bien au-delà des capacités de calcul avec les architectures standards actuelles en 64 bits ( $1,8 \cdot 10^{19}$  cellules, soit quasiment autant que la totalité des données numériques stockées sur Terre en 2010 en octets [Gan10]).

Deuxièmement, aucune duplication de données n'est autorisée. Par exemple, la même plage de données en mémoire représente toutes les cellules liquides, puisqu'il n'y a physiquement aucune différence entre elles. De façon analogue, les données des grains (numéro de grain, angles d'Euler et numéro de zone) sont stockées une seule fois par grain. La plupart des cellules ne font que se référer à ces données<sup>6</sup>, et y ajoutent un numéro de cellule et le numéro de l'élément FE auquel elles appartiennent. Seules les cellules en croissance ( $I_\nu = 1$ ), à l'interface de croissance des grains, stockent des informations supplémentaires

---

4. Les réels sont représentés par des flottants double précision (ou "double"), chaque double étant encodé sur 8 octets en 32 bits ou 16 octets en 64 bits. Par la suite, la plupart des calculs sont menés dans un environnement 64 bits.

5. Le type correspondant en C++ est "unsigned long".

6. Sous la forme de pointeurs C++.

pour décrire la forme locale de l'enveloppe de grain. Celles-ci correspondent aux rayons et au centre de l'octaèdre, ainsi que  $V_{\nu_{\max}}^{(j)}$  et  $V_{\nu_{\text{capt}}}^{(j)}$  pour chaque enveloppe  $(j)^*$ .

### Allocation mémoire

Un problème majeur de la gestion mémoire au niveau de l'automate cellulaire provient de la non-contiguïté de la grille de cellules. Cette non-contiguïté est due à trois raisons principales :

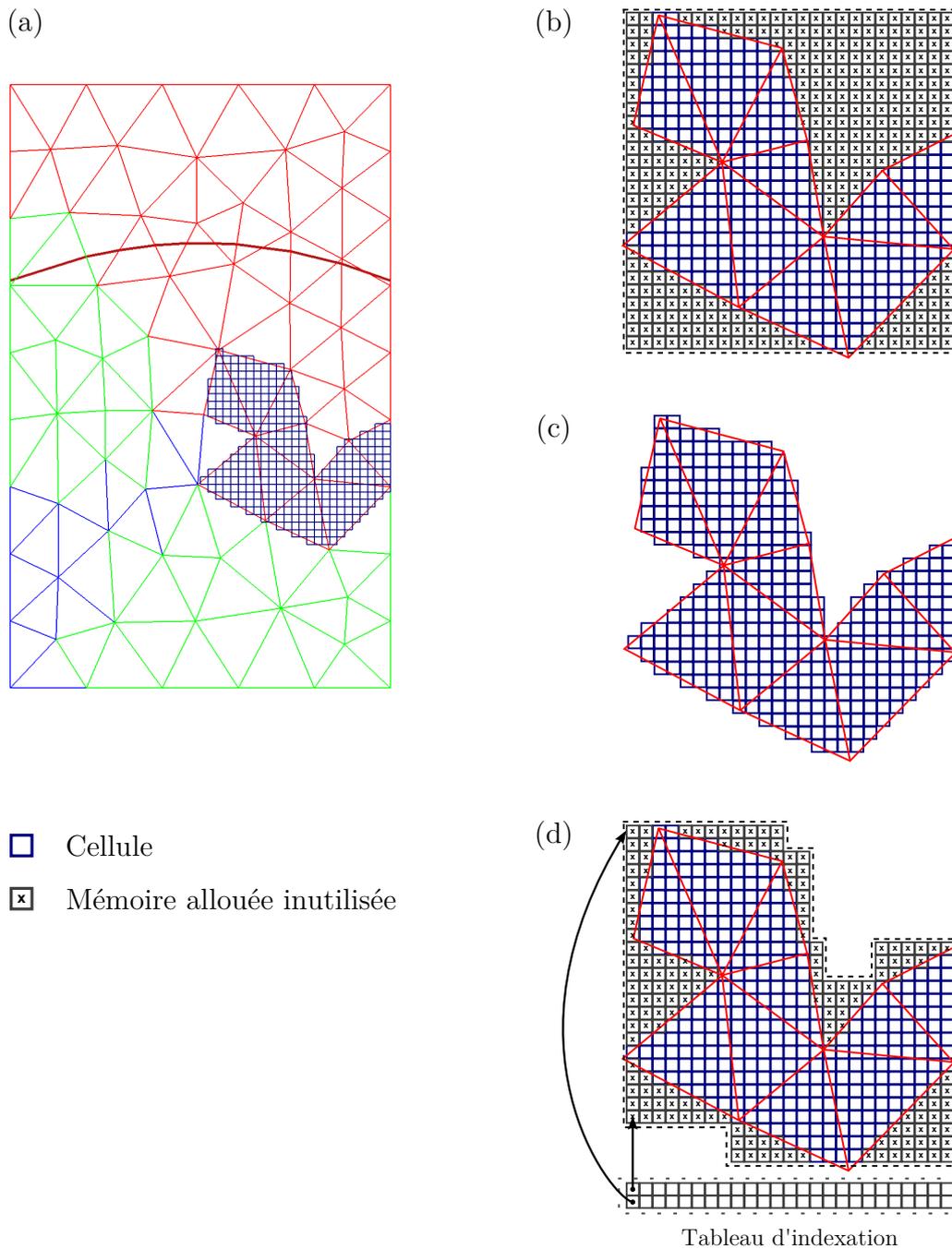
- la géométrie du lingot,
- l'allocation dynamique (avec la germination),
- le partitionnement parallèle du domaine de calcul.

La conséquence est que la grille locale de cellule à un temps  $t$  n'est pas une forme géométriquement simple, et ne peut pas être représentée par un tableau standard sans sérieux problèmes de performance. Les caractéristiques attendues de la méthode de gestion mémoire sont la faculté de pouvoir scanner rapidement à travers les cellules, la possibilité de retrouver rapidement une cellule à partir de son indice, et la limitation de la mémoire requise. Généralement, ces caractéristiques sont contradictoires et un compromis entre vitesse d'exécution et mémoire utilisée doit être trouvé. Trois approches de gestion de la mémoire sont présentées ici. Elles sont comparées qualitativement en fonction de leur vitesse d'exécution et du taux de remplissage, c'est-à-dire le ratio entre nombre de cellules (sous-entendu cellules utilisées dans le calcul) et cases mémoires allouées.

La figure II.17.a représente le même cas que précédemment, mais avec uniquement les cellules affectées au cœur  $C_2$ . La première approche se base sur un tableau standard contigu, tel que représenté sur la figure II.17.b. Une boîte englobant le sous maillage formé par les éléments locaux actifs est définie (représentée en traits pointillés) et toutes les cellules potentiellement contenues dans cette boîte sont allouées en mémoire. Les cellules ayant vraiment lieu d'être sont représentées en bleu, tandis que les cellules allouées mais inutilisées dans le calcul sont marquées d'une croix. Les éléments locaux activés pour  $C_2$  sont également tracés. L'allocation étant contiguë en mémoire, le parcours du tableau est très rapide. De plus, il n'est pas nécessaire de stocker explicitement l'indice de chaque cellule, puisque celui-ci peut être retrouvé à partir de la position de la cellule dans le tableau. Cependant, comme le tableau doit englober entièrement le maillage local activé, beaucoup de mémoire est allouée inutilement. En conséquence, le taux de remplissage  $\tau$  est de seulement 54% sur la figure II.17.b. En 3D et sur des géométries plus complexes, on peut s'attendre à ce que ce ratio soit encore plus faible. De plus, durant l'allocation dynamique, le tableau doit être entièrement réalloué en mémoire, ce qui peut faire chuter les performances.

La deuxième approche, représentée à la figure II.17.c, se base sur un tableau creux tel qu'implémenté dans la STL. Cette approche est analogue aux stratégies de gestion de matrices creuses en éléments finis. Seules les cellules réellement utiles sont allouées, mais ne se suivent pas dans la mémoire. Des informations supplémentaires sont donc nécessairement stockées pour retrouver l'emplacement mémoire suivant et précédent une entrée du tableau. Les temps d'accès et de parcours du tableau sont beaucoup plus importants qu'un tableau classique. De plus, l'indice des cellules ne peut pas être retrouvé directement à partir de leur position dans le tableau. Il faut donc stocker explicitement ces indices <sup>7</sup>, ce

7. En fait, ces indices constituent dans cette approche la clé du conteneur associatif qu'est le tableau creux.



**FIGURE II.17** (a) Cellules locales affectées au cœur de calcul  $C_2$ , et les différentes approches de gestion de la mémoire associées : (b) tableau classique, (c) tableau creux et (d) tableau en profil. Le taux de remplissage  $\tau$ , i.e. le nombre de cellules "réelles" par rapport au nombre de cases mémoire allouées est respectivement 0,54, 1,0 et 0,69.

qui constitue un surcoût conséquent en termes de mémoire. Par contre, aucune mémoire n'est allouée inutilement et le taux de remplissage est garanti d'être égal à 1.

La dernière approche consiste en une gestion en profil de la mémoire. Ceci est illustré par la figure II.17.d. Plusieurs tableaux standard (contigus en mémoire) sont alloués indépendamment selon une direction, formant plusieurs colonnes. Sur la figure II.17.d, cette direction va de bas en haut. Un autre tableau, appelé tableau d'indexation, stocke l'indice

de la première et de la dernière cellule de chaque colonne. De par le fait que ce tableau d'indexation soit d'une dimension inférieure au problème, son coût en mémoire est négligeable. En comparaison avec le tableau creux, il n'est pas nécessaire de stocker chaque indice de cellule, puisque celui-ci peut être retrouvé à partir de la position de la cellule dans la colonne et de l'entrée dans le tableau d'indexation. Cette approche permet sur la figure II.17.d d'atteindre un taux de remplissage de 69%. La vitesse d'accès et de recherche avec cette approche est très similaire voire meilleure qu'avec un tableau standard, notamment grâce au fait que moins de cellules "inutiles" soient parcourues. Finalement, cette méthode est compatible avec l'allocation dynamique puisque chaque colonne peut être réallouée indépendamment.

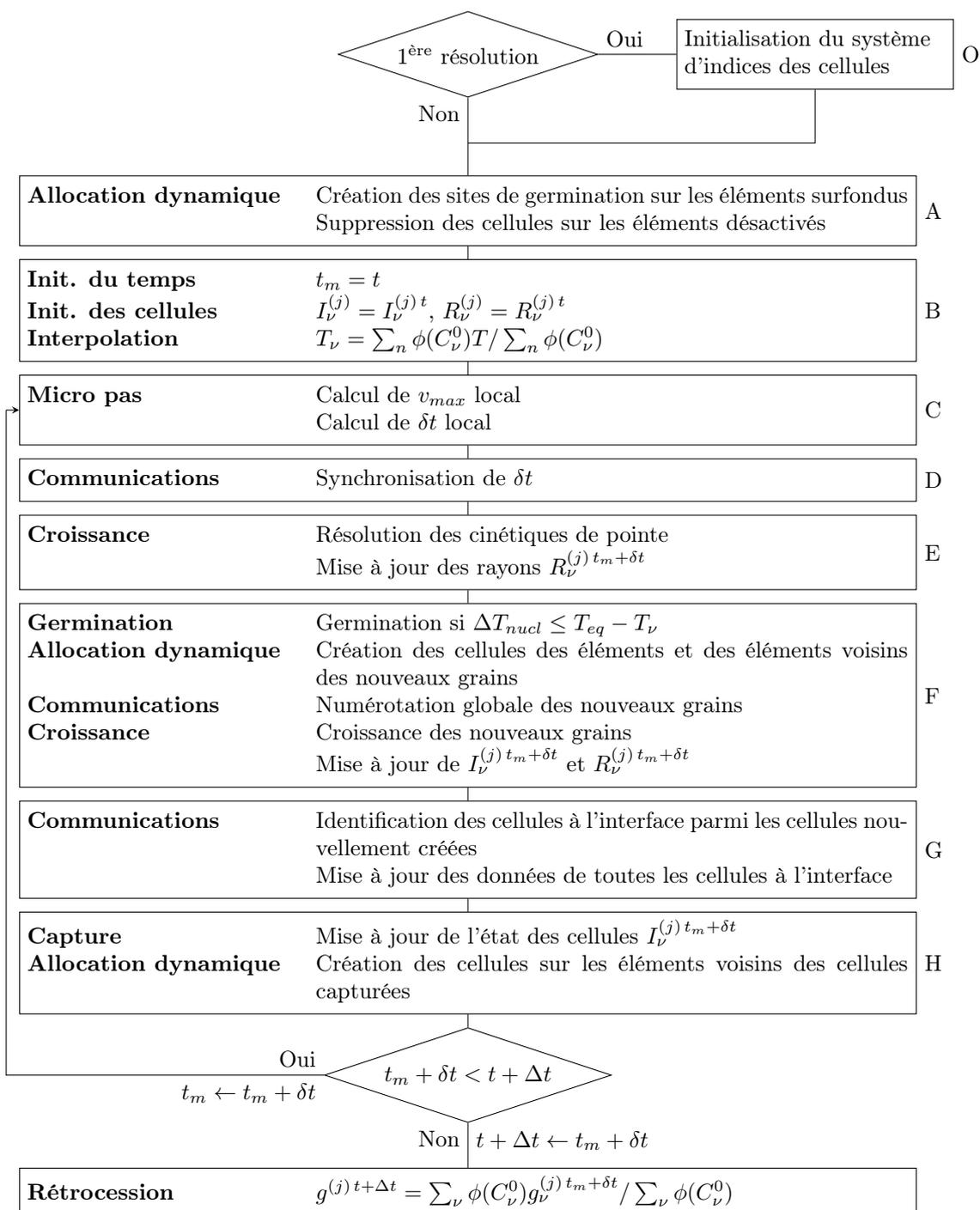
Deux autres approches alternatives, qui pourraient être à l'avenir considérées si les performances des approches ci-dessus s'avéraient insuffisantes, sont présentées en annexe D.

## 6.5 Algorithme général

La figure II.18 présente l'algorithme général détaillé de résolution de la partie automate cellulaire, pour le schéma de couplage itératif explicite présenté par la figure II.12. Rappelons que ce schéma considère la température constante sur le pas de temps macroscopique, et la résolution automate n'est effectuée qu'une seule fois par macro pas de temps. Le détail de chaque opération est donné ci-dessous.

Au début de la simulation, le système de coordonnées est initialisé (O). Premièrement, une boîte est mise en place de façon à ce qu'elle englobe la totalité du domaine. Cette boîte est bien sûr commune à tous les cœurs. Le nombre de cellules dans chaque direction est ensuite calculé à partir de la taille de cellule. Dans la suite du calcul, il sera ainsi possible de retrouver les coordonnées d'une cellule à partir d'un numéro unique (son indice), comme introduit section 6.4.

La première étape de la résolution (A) consiste à créer les sites de germination sur les éléments surfondus et à libérer les cellules de la mémoire sur les éléments désactivés, ce qui constitue la base de l'allocation dynamique. La désactivation se fait selon les critères donnés section 6.1. Puis, les diverses variables sont initialisées (B) avant de commencer la boucle sur les micro pas de temps. Celle-ci commence par le calcul de la vitesse maximale locale, et du micro pas de temps correspondant (C). Le micro pas de temps est ensuite synchronisé entre tous les cœurs (D), ce qui constitue une opération de communication supplémentaire indispensable à l'algorithme parallèle. La cinétique de pointe est résolue pour chaque cellule ayant une enveloppe de grain en train de croître (E), et les rayons des octaèdres sont mis à jour. La germination prend ensuite place (F) : les sites de germination sont scannés, et ceux ayant une surfusion de germination inférieure à la surfusion locale germent et forment de nouveaux grains. Notons qu'avec la stratégie d'allocation dynamique présentée plus haut (fig. II.13.b), il est nécessaire à ce stade de vérifier si l'élément contenant le nouveau grain était déjà activé, et si non, de l'activer et de créer les cellules associées (F). D'après les conditions d'activation (section 6.1), il est également nécessaire d'activer les éléments voisins, puisque ces derniers ont au moins un nœud avec une fraction d'enveloppe comprise entre zéro et un. Il est ensuite possible de numéroter les nouveaux grains de façon globale (F), et de résoudre leur cinétique de croissance sur le micro pas de temps (F). Le principal surcoût du calcul parallèle est dû à l'identification des cellules à l'interface avec d'autres cœurs, et de la mise à jour de leurs données (G),



**FIGURE II.18** Algorithme général de résolution de la partie automate cellulaire parallèle, pour un couplage itératif explicite. Seules les opérations principales sont représentées. Ces dernières sont regroupées en plusieurs catégories : allocation dynamique, communications parallèles, germination, croissance, capture, etc. Le détail de chaque opération A,B,...,H et O, et de l'algorithme en général, est donné dans la section 6.5.

ce qui a été présenté plus haut (figure II.14). Après cette étape, la capture éventuelle des cellules est résolue (H), ce qui peut entraîner l'activation d'un ou plusieurs nouveaux éléments (voir section 6.1). Il est donc là encore nécessaire de procéder à une réallocation et création éventuelle de nouvelles cellules (H).



# Chapitre III

## Validation du modèle

*Ce chapitre est dédié à la validation du modèle CAFE, que ce soit par confrontation avec des solutions analytiques, d'autres modèles numériques, ou l'expérience. Une première partie présente la validation de l'aspect croissance et capture CA, puis les stratégies de couplage seront validées, et enfin l'efficacité de l'implémentation parallèle sera mesurée.*

### Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Croissance et capture</b> . . . . .	<b>83</b>
1.1	Monograin analytique . . . . .	83
1.2	Compétition de croissance . . . . .	87
<b>2</b>	<b>Couplage</b> . . . . .	<b>89</b>
2.1	Lingot 1D Al-7%pds Si : suivi de front . . . . .	89
2.2	Transition colonnaire-équiaxe expérimentale . . . . .	96
2.3	Micro et macroségrégation . . . . .	100
2.4	Comparaison avec un modèle macroscopique indirect . . . . .	104
<b>3</b>	<b>Performances et calcul parallèle</b> . . . . .	<b>107</b>
3.1	Efficacité des différentes approches . . . . .	107
3.2	Scalabilité parallèle et limitations mémoire . . . . .	111
<b>4</b>	<b>Conclusion sur le modèle implémenté</b> . . . . .	<b>118</b>

---



# 1 Croissance et capture

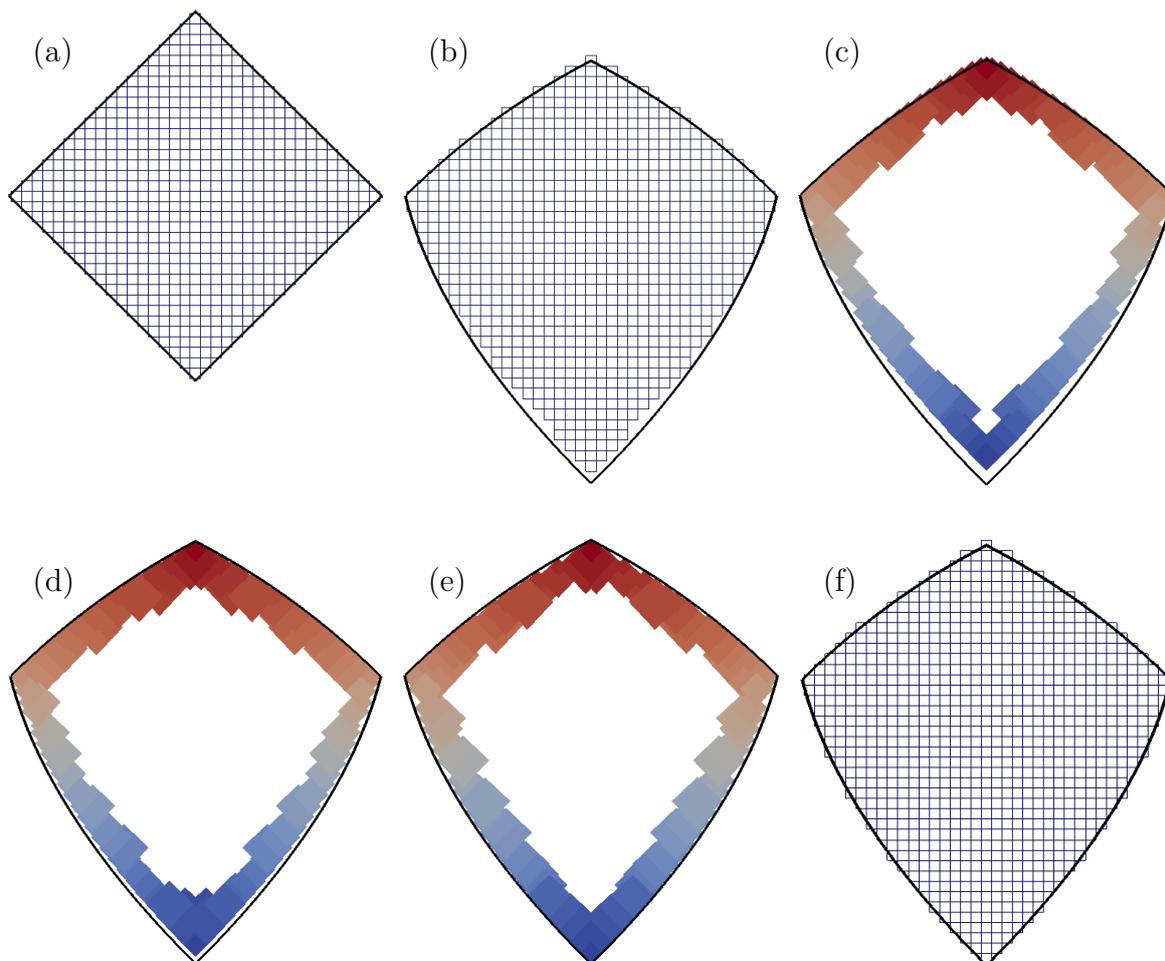
## 1.1 Monograin analytique

Le premier cas de validation du modèle CAFE est basé sur une solution analytique développée pour un grain seul [Gan96]. Celle-ci est valable pour une configuration de type Bridgman, c'est-à-dire pour un gradient de température,  $G$ , et une vitesse de refroidissement,  $\dot{T}$ , constants. Elle est basée sur la croissance des branches  $\langle 100 \rangle$  en fonction de la désorientation du grain par rapport au gradient thermique. L'enveloppe est formée par la jonction des plus grandes branches. Deux cas ont fait l'objet de comparaisons, d'abord en 2D avec des angles d'Euler nuls, puis en 3D. Les calculs ne sont pas couplés en énergie : la température est imposée sur tout le domaine. La croissance du grain n'a donc pas d'influence sur la température. Le but est ici de valider l'algorithme de croissance et de capture au niveau des cellules.

Un grain germe à une surfusion  $\Delta T_{nucl} = 2 \text{ K}$ , et croît à une vitesse  $v = a\Delta T^2$  avec  $a = 10^{-4} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-2}$ . La vitesse de refroidissement est fixée à  $\dot{T} = 0,1 \text{ K s}^{-1}$ . Les solutions sont comparées au temps  $t = 6,5 \text{ s}$  après la germination. Le cas 2D d'une température homogène,  $G = 0 \text{ K m}^{-1}$ , correspond à la figure III.1.a. Les cellules pâteuses du modèle CAFE suivent parfaitement la solution analytique, en traits pleins. On retrouve l'enveloppe géométrique de base associée aux cellules, le carré, qui représente les directions de croissance  $\langle 10 \rangle$  du cristal. Ceci s'explique simplement par le fait que, à température uniforme, la vitesse de croissance est la même dans toutes les directions  $\langle 10 \rangle$  de l'espace.

La figure III.1.b montre la même simulation dans un gradient de température vertical,  $G = 250 \text{ K m}^{-1}$ , correspondant à une vitesse des isothermes  $v_T = 4 \cdot 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ . On constate que cette fois la forme du grain définie par les cellules pâteuses est sensiblement différente de la solution analytique. La température étant interpolée au centre des cellules, la même vitesse est appliquée à toutes les branches des enveloppes de chaque cellule. Ceci introduit une certaine erreur, puisque la vitesse des branches inférieures  $[0\bar{1}]$  est normalement plus importante que les autres, la surfusion étant plus grande à cet endroit. Globalement, la vitesse de croissance vers le haut est surestimée, alors que la vitesse vers le bas est sous-estimée. Ceci est visible dans la partie inférieure du grain, où certaines cellules sont liquides (non tracées) alors que leur centre est bien dans l'enveloppe de la solution analytique. Si l'on trace la forme des enveloppes individuelles en train de croître et non plus les cellules, la différence est flagrante (fig. III.1.c). On retrouve bien la sous-estimation dans la partie inférieure, où les enveloppes n'atteignent pas la solution analytique, tandis que dans la partie supérieure, les enveloppes ont tendance à dépasser la solution analytique. Au niveau des branches primaires latérales, la prédiction CAFE est parfaite puisque le gradient étant vertical, les isothermes sont horizontales. Dans ce cas précis où les angles d'Euler sont nuls, la température au centre d'une cellule sera égale à la température aux pointes des branches latérales de son enveloppe, il n'y a donc pas d'erreur d'interpolation.

Une solution pour améliorer ce résultat consiste à ne plus interpoler la température aux centres des cellules, mais véritablement aux pointes des dendrites. Chaque branche aura alors sa vitesse propre. Le résultat est présenté sur la figure III.1.d : chaque forme d'enveloppe individuelle est déformée selon le gradient de température. La forme macroscopique est donc améliorée. Cependant, la solution n'est pas parfaite : dans la partie inférieure, la vitesse est encore sous-estimée. Ceci provient de la discrétisation du problème en temps. Bien que le gradient et la vitesse de refroidissement soient linéaires, et

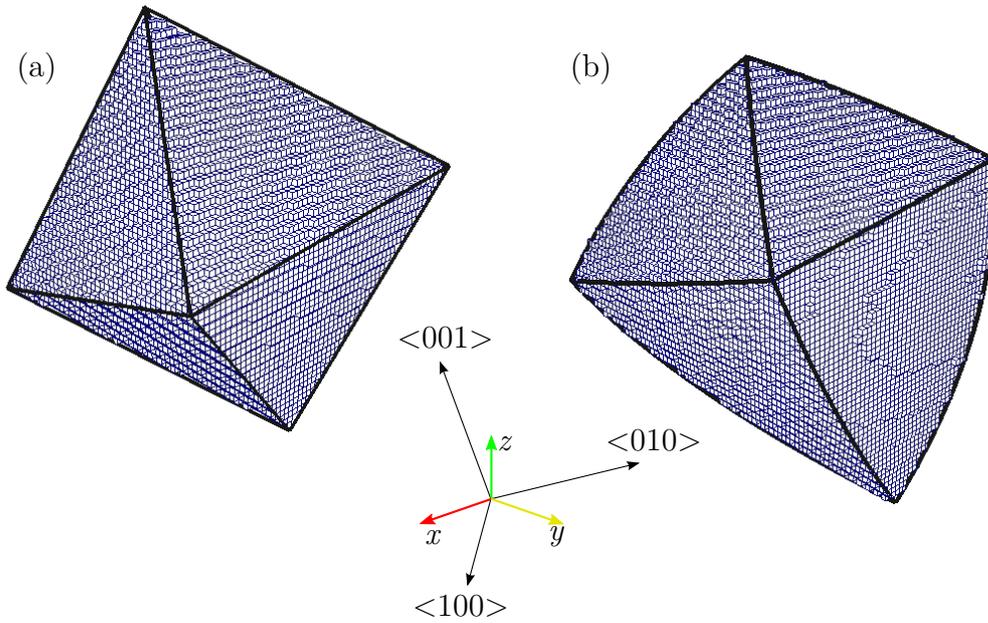


**FIGURE III.1** Prédiction analytique de la croissance d'un monograin (traits épais) en deux dimensions, dans un gradient de température vertical de (a)  $G = 0 \text{ K m}^{-1}$  ou (b, c, d, e, f)  $G = 250 \text{ K m}^{-1}$ . Les angles d'Euler sont nuls. Les cellules pâteuses sont représentées dans (a, b, f) tandis que les figures (c, d, e) montrent les enveloppes associées aux cellules à l'interface de la zone pâteuse. L'interpolation de la température se fait (a, b, c) au centre des cellules, ou (d, e, f) aux extrémités des branches  $\langle 10 \rangle$  des enveloppes. La taille de cellule est  $l_{CA} = 100 \mu\text{m}$ . Le pas de temps est fixé à  $0,5 \text{ s}$ , sauf pour (e) et (f) où  $\Delta t = 0,05 \text{ s}$ .

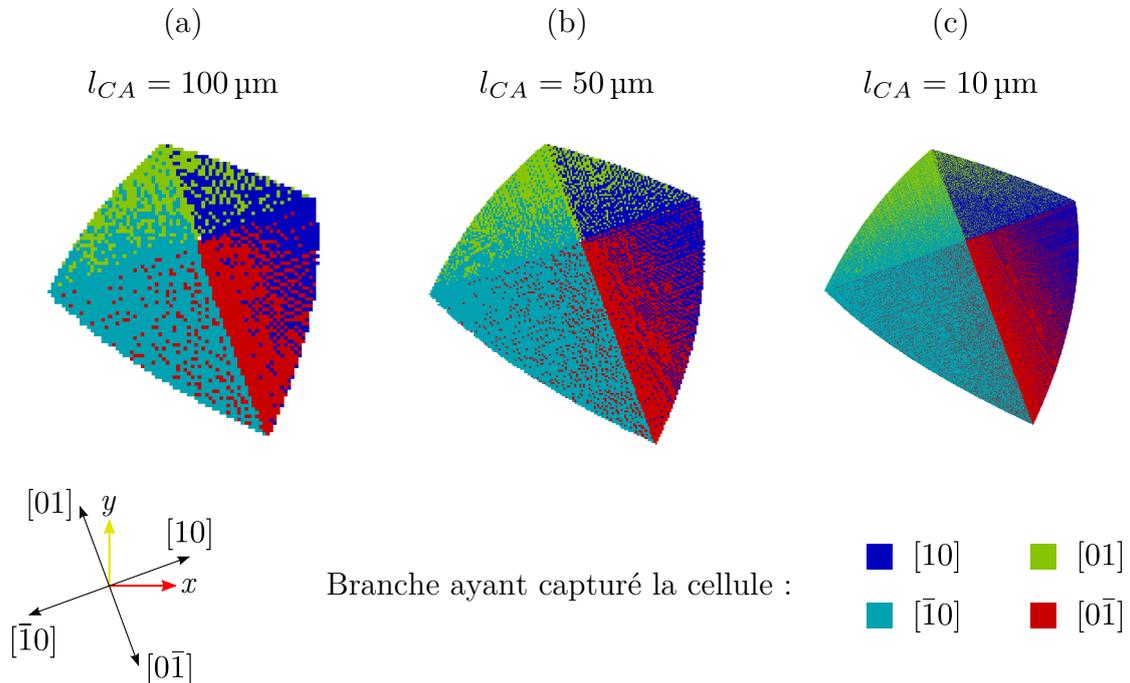
donc que l'interpolation linéaire au niveau des cellules soit juste, la vitesse de croissance est calculée de manière explicite, et est donc constante sur un micro pas de temps  $\delta t$ . La diminution du pas de temps permet donc de gagner en précision, par exemple sur la figure III.1.e avec un pas de temps dix fois plus petit. Les branches des enveloppes individuelles suivent parfaitement la solution analytique. Au niveau de l'automate, cela se traduit par le fait que toutes les cellules incluses dans le grain calculé sont effectivement pâteuses (fig. III.1.f).

D'autres tests ont été menés avec des angles d'Euler non nuls. Les résultats sont similaires, et permettent de retrouver avec un pas de temps adéquat les solutions analytiques. Le passage en 3D ne présente pas de différence. Les résultats déjà publiés [Gan97] ont été reproduits avec succès (figure III.2).

La figure III.3 représente la direction selon laquelle chaque cellule a été capturée, en



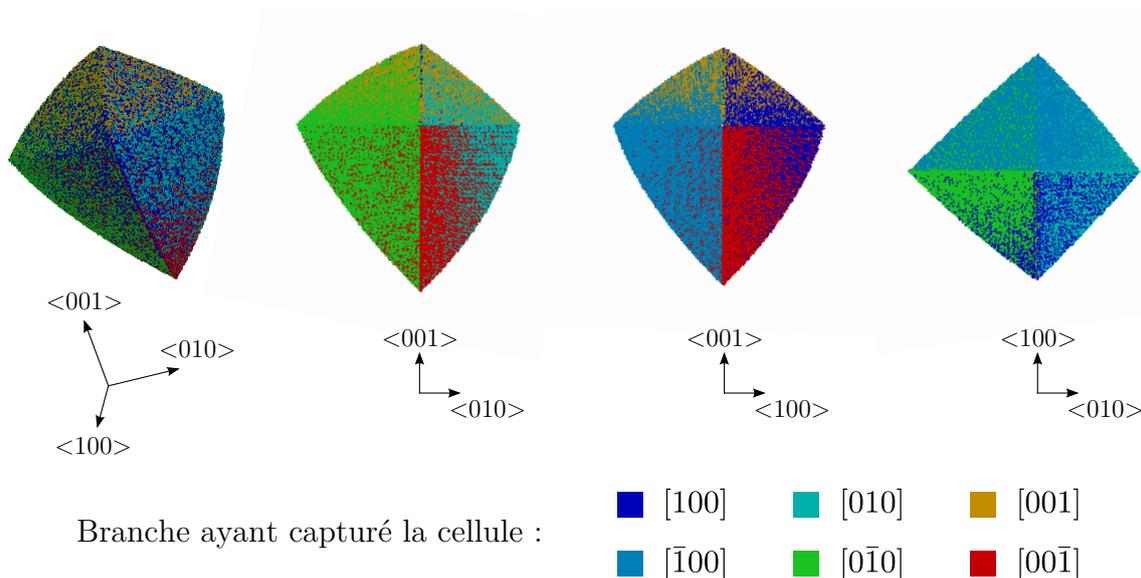
**FIGURE III.2** Prédiction de la croissance d'un monograin de façon analytique (traits épais) et avec le modèle CAFE (cellules cubiques) en trois dimensions, dans un gradient de température vertical de (a)  $G = 0 \text{ K m}^{-1}$  ou (b)  $G = 250 \text{ K m}^{-1}$ . Les angles d'Euler sont  $(\psi, \theta, \phi) = (20^\circ, 20^\circ, 20^\circ)$ . L'interpolation de la température se fait aux points des dendrites, avec  $\Delta t = 0,05 \text{ s}$  et  $l_{CA} = 100 \mu\text{m}$ .



**FIGURE III.3** Représentation pour chaque cellule de la direction l'ayant capturée en fonction de la taille de cellule, pour un angle d'Euler  $\psi = 20^\circ$  et un gradient de température  $G = 250 \text{ K m}^{-1}$ . La figure II.4 donne un exemple de l'identification de la direction de capture pour la cellule  $\mu$ , en l'occurrence [10].

2D, dans un gradient thermique vertical  $G = 250 \text{ K m}^{-1}$ , et avec un angle d'Euler  $\psi = 20^\circ$ . Le grain peut être séparé en quatre zones, correspondant au développement des faces  $(11)$ ,  $(1\bar{1})$ ,  $(\bar{1}1)$  et  $(\bar{1}\bar{1})$ . La solution analytique donne pour ces quatre zones une direction préférentielle de croissance, respectivement  $[01]$ ,  $[10]$ ,  $[0\bar{1}]$  et  $[\bar{1}0]$  [Gan96]. Ceci signifie par exemple que la face  $(1\bar{1})$  est obtenue par la croissance des bras  $[10]$ , qui sont les plus rapides dans cette zone.

Le modèle CAFE ne permet pas de retrouver exactement ce résultat, puisque pour chaque zone deux directions sont sélectionnées (dont celle donnée par la solution analytique). Par exemple, la face  $(1\bar{1})$  est définie par la croissance de bras  $[10]$  et  $[0\bar{1}]$ . Le problème vient du fait que l'automate cellulaire autorise un branchement dendritique instantané sur chaque cellule dès qu'elle est capturée. Cela permet à d'autres directions de se propager localement aussi rapidement que la direction préférentielle, ce qui numériquement résulte en l'apparition d'une seconde direction sélectionnée.



**FIGURE III.4** Direction de capture pour chaque cellule sur le monograin 3D, avec vue extérieure et coupes selon les plans  $(100)$ ,  $(010)$  et  $(001)$ . La taille de cellule est de  $50 \mu\text{m}$ , les angles d'Euler  $(20^\circ, 20^\circ, 20^\circ)$  et le gradient de  $250 \text{ K m}^{-1}$ .

La figure III.4 donne des résultats similaires en 3D, le grain étant cette fois divisé en 6 zones avec trois directions sélectionnées par zone au lieu d'une seule dans la solution analytique. Dans les plans de coupe, on retrouve les deux directions obtenues en 2D.

Pour résoudre ce problème, il faudrait donc limiter les branchements dendritiques. Une solution serait d'appliquer une cinétique différente aux pointes des octaèdres selon les directions primaires et secondaires. De façon plus réaliste, il serait possible d'initialiser la forme octaédrique au moment de la capture de telle sorte que les branches secondaires soient en retard par rapport à la branche primaire (ayant capturé la cellule), par exemple en tronquant les rayons secondaires. Ceci demanderait cependant des confrontations avec l'expérience pour valider ces résultats et relier les simulations aux dimensions des branchements.

Ce test permet cependant de valider que l'intégration de la vitesse au cours de la croissance soit correcte. Il est possible avec cet algorithme de tendre vers la solution analytique, cependant le but n'est pas d'avoir des formes d'enveloppes parfaites, mais plutôt

de représenter la structure de grains avec un maximum de cellules. Or, plus la densité de cellules augmente, moins la différence entre ces solutions est importante. L'interpolation aux pointes de dendrites, bien qu'étant laissée comme une possibilité à l'utilisateur, ne sera donc pas utilisée dans la suite de ce travail. Ce modèle est par nature discrétisé, il présente donc une erreur de l'ordre du pas de cellule.

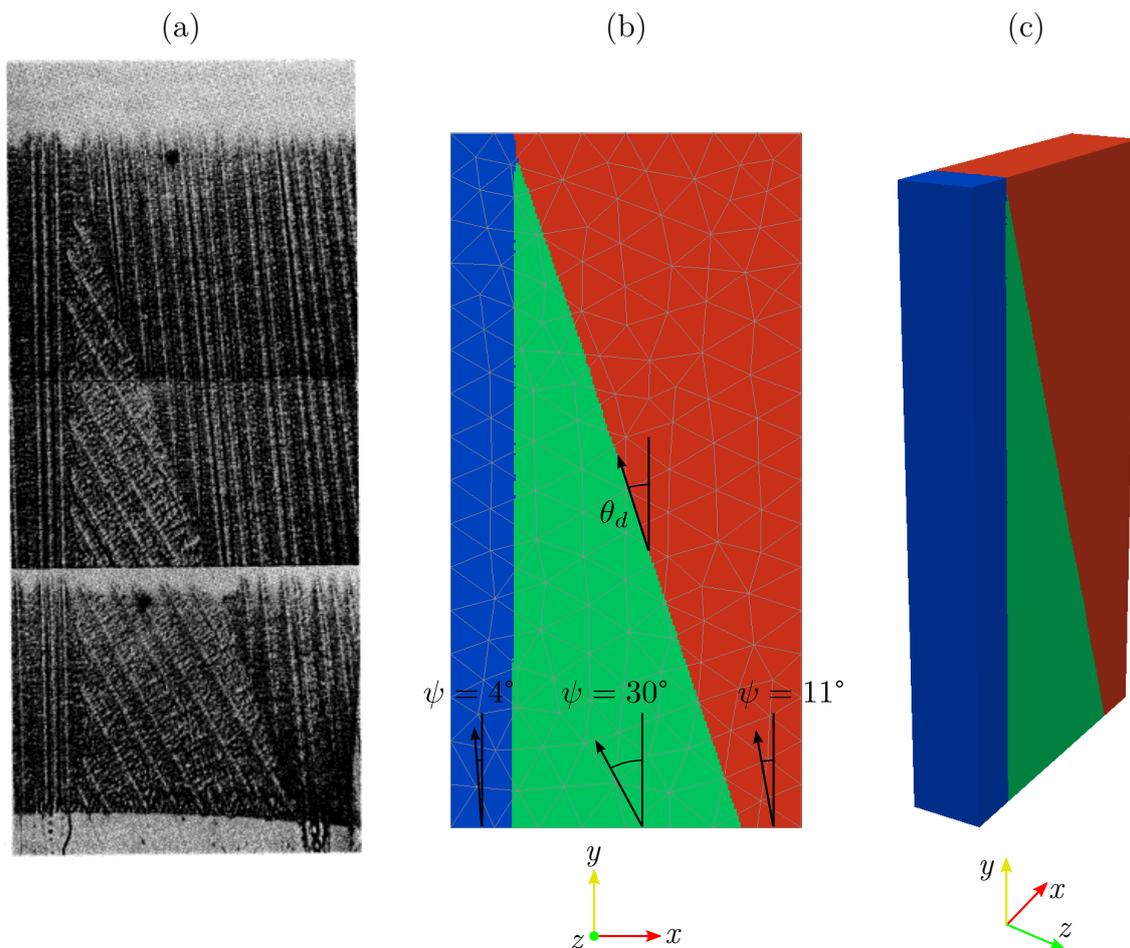
## 1.2 Compétition de croissance

Le deuxième cas de validation est basé sur une expérience menée par Esaka [Gan94], qui a observé la croissance de trois grains d'orientations cristallographiques différentes dans un gradient de température vertical,  $G = 1900 \text{ K m}^{-1}$  (fig. III.5.a). Il s'agit d'un alliage organique transparent de succinonitrile-1,3% pds acétone. La vitesse des isothermes est  $v_T = 8,6 \cdot 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ . Le domaine est un rectangle de  $4,14 \text{ mm} \times 8,31 \text{ mm}$ . La solidification du lingot se fait de bas en haut. Les angles d'Euler des trois grains sont, de gauche à droite :  $(4^\circ, 0^\circ, 0^\circ)$ ,  $(30^\circ, 0^\circ, 0^\circ)$  et  $(11^\circ, 0^\circ, 0^\circ)$ . L'intérêt de cette expérience est que tous les grains ont une direction  $[001]$  normale au plan d'observation, ce qui permet de se ramener à un problème 2D pour la compétition de croissance.

Expérimentalement, les directions  $[010]$  des grains gauche et central convergent avec un angle de  $26^\circ$  alors que celles du grain central et de droite divergent avec un angle de  $19^\circ$ . La frontière de grain à gauche est dite convergente, et celle de droite divergente. Les trois grains de gauche à droite ont une largeur initiale en bas du lingot de  $0,71$ ,  $3,43$  et  $0,71 \text{ mm}$ . L'image III.5.a est une superposition à deux instants de la solidification, afin de montrer l'état de l'interface solide-liquide avec les trois grains (en bas) et après disparition du grain central (en haut).

Une relation entre vitesse des pointes de dendrites et surfusion a été déterminée sous la forme d'une loi puissance :  $v = a_1 \Delta T^2 + a_2 \Delta T^3$ , avec  $a_1 = 8,26 \cdot 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-2}$  et  $a_2 = 8,18 \cdot 10^{-5} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-3}$ . Le but est ici de reproduire l'expérience et notamment de mesurer l'angle  $\theta_d$  formé par la frontière divergente. La température est imposée.

Dans le cas 2D, plusieurs simulations ont été effectuées avec des tailles de cellule différentes. À chaque fois, l'angle  $\theta_d$  est mesuré entre les grains du centre et de droite. Un exemple de résultat est donné à la figure III.5.b avec une taille de cellule  $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ , soit une densité de  $1600$  cellules par  $\text{mm}^2$ . Les mesures sont reportées sur la figure III.6, en fonction de la densité de cellules. Pour de faibles densités, c'est-à-dire une grande taille de cellule, la différence avec l'expérience est importante. Par contre, avec une densité assez grande, l'angle  $\theta_d$  tend vers la valeur expérimentale de  $19^\circ$ . Ceci vient du mécanisme de compétition entre les grains : le grain central, étant plus désorienté par rapport au gradient thermique, présente une surfusion plus importante à son interface avec le liquide que les autres grains. La vitesse de croissance des dendrites dans la direction  $\langle 100 \rangle$  est donc plus grande, et le front solide est moins avancé comparativement au grain droit. On le voit notamment sur la figure III.5.a. Des dendrites secondaires vont donc pouvoir se développer au-dessus du grain central, et gagner petit à petit du terrain sur lui. Il faut donc, pour reproduire ce phénomène, que la taille des cellules soit inférieure à l'espacement dendritique secondaire  $\lambda_2$ . En réalité, seules les branches secondaires actives interviennent dans ce processus [Gan94], c'est-à-dire celles qui sont sorties de la couche de liquide enrichi en soluté présente devant l'interface. Statistiquement, ces branches sont espacées de plusieurs  $\lambda_2$ . Pour représenter fidèlement la solidification d'un matériau, il faudra donc choisir la taille des cellules en conséquence. Ici, l'erreur sur l'angle du joint de grain est

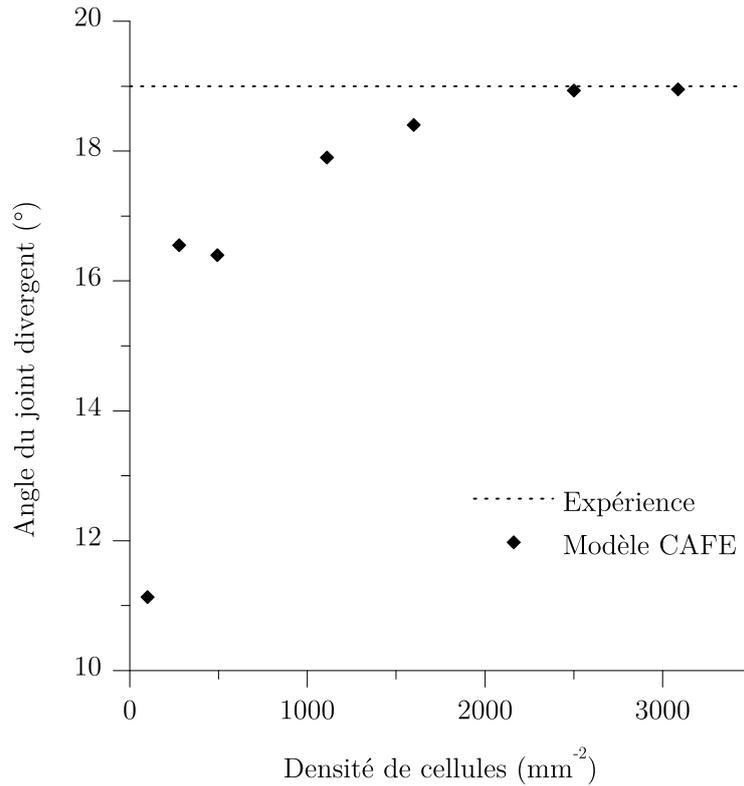


**FIGURE III.5** Croissance de trois grains d'un alliage succinonitrile-1,3%pds acétone : comparaison (a) des résultats expérimentaux et (b) de la simulation CAFE en deux dimensions et (c) en trois dimensions, avec une taille de cellule de  $25\ \mu\text{m}$ .

acceptable à partir d'une densité de 1111 cellules par  $\text{mm}^2$ , soit une taille de cellule de  $30\ \mu\text{m}$ . L'erreur sur  $\theta_d$  est alors de  $1,1^\circ$ . De façon générale, une taille de  $100\ \mu\text{m}$  permet de modéliser correctement la plupart des métaux.

Concernant la frontière convergente, là aussi une densité minimum de cellules est requise pour retrouver les résultats expérimentaux. Cependant, avec une taille de cellule trop petite, l'angle de la frontière prédit a tendance à diverger. Ceci vient d'un autre phénomène, qui est dû à la forme géométrique d'enveloppe associée aux cellules. En effet, les grains ne croissent pas sous la forme de carrés (ou d'octaèdres) parfaits, mais plutôt d'étoiles à quatre branches qui seraient plus représentatives de l'évolution des dendrites secondaires et tertiaires. Ceci recoupe la discussion du paragraphe précédent sur le branchement dendritique, et pourra faire l'objet d'un travail futur, mais l'erreur induite est assez faible pour la négliger.

En ajoutant une épaisseur de  $1\ \text{mm}$  au lingot, on retrouve en trois dimensions les mêmes résultats, par exemple sur la figure III.5.c. Quelques artefacts sont visibles de part et d'autre, c'est-à-dire que la symétrie n'est pas parfaite : cela vient de l'ordre dans lequel les cellules sont scannées, qui a une influence en cas d'égalité parfaite lors de la capture (ce qui est le cas ici). D'une manière générale, il faut garder à l'esprit que les résultats obtenus sont valables au mieux à une cellule près.



**FIGURE III.6** Angle de la frontière divergente entre le grain central et le grain de droite en fonction de la densité de cellules en 2D.

Ce test, allié à la croissance d'un monograin, permet de valider l'algorithme de croissance du modèle automate cellulaire présenté ci-dessus, en prouvant qu'il intègre bien la cinétique de croissance des grains, ainsi que la compétition aux joints de grain.

## 2 Couplage

### 2.1 Lingot 1D Al-7%pds Si : suivi de front

L'objectif dans cette section est de valider les algorithmes de couplage en énergie présentés au chapitre II, et notamment de quantifier les erreurs introduites par les différentes approximations au niveau du couplage itératif. De plus, l'approche consistant à calculer les chemins de solidification aux nœuds du maillage plutôt qu'aux cellules doit être validée, puisqu'elle est présentée pour la première fois dans ce travail.

La procédure se base sur la solution donnée par un modèle de suivi de front 1D [Gan00b]. Ce modèle permet de suivre l'interface entre la zone pâteuse et le liquide libre, et entre l'eutectique et la zone pâteuse. La fraction de solide dans la zone pâteuse est donnée par l'approximation de Gulliver-Scheil avec un diagramme linéarisé, soit :

$$g_{(1)}^{s_1} = 1 - \left( \frac{T_m - T}{T_m - T_{eq}} \right)^{1/(k-1)} \quad (\text{III.1})$$

Rappelons que ce chemin de solidification est tronqué au-dessus d'une certaine température, inférieure à la température d'équilibre thermodynamique, puisque la présence de la

zone (1) dépend de la surfusion de croissance et de germination. Cette troncature découle de l'utilisation des fractions de zones,  $g^{(1)}$  en l'occurrence, dans le calcul des fractions de phases (équ. II.48).

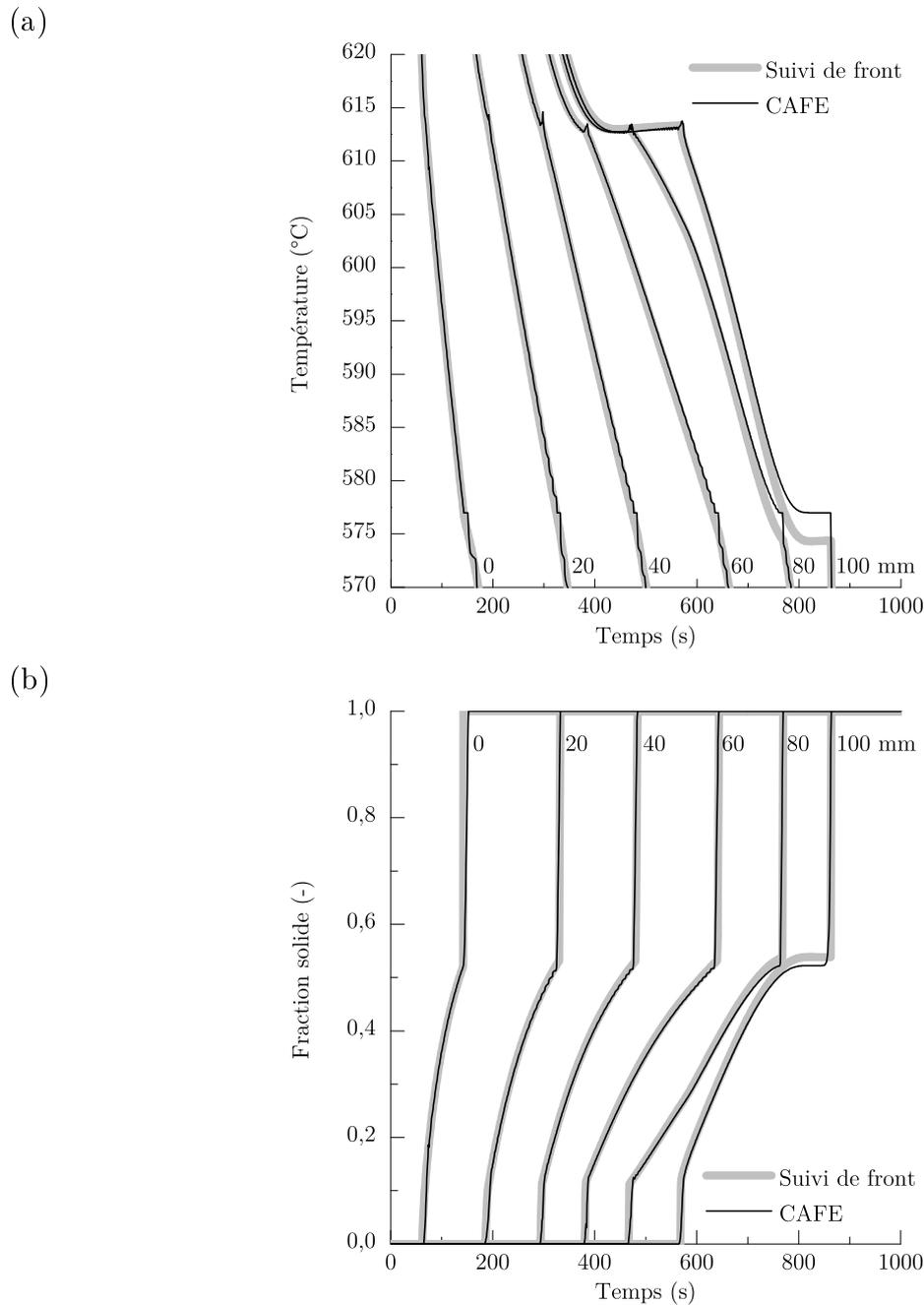
Les compositions des phases sont calculées à partir des équations II.64, II.56, II.58 et II.59. La macroségrégation n'est ici pas prise en compte, et la modélisation FE est donc réduite à la résolution de l'équation de conservation de l'énergie (équ. II.1). La cinétique de croissance suit une loi puissance (équ. II.47). Enfin, l'enthalpie des phases est donnée par une capacité calorifique et une chaleur latente constantes (équ. II.49).

Ce modèle suivi de front est utilisé pour suivre la solidification d'un lingot 1D d'Al-7%pds Si de 100 mm de long. La chaleur est extraite par une face du lingot, à la position  $x = 0$  mm, et avec une condition aux limites de type Fourier. Les autres faces du lingot sont adiabatiques. Les paramètres de la simulation CAFE sont reportés dans le tableau III.1. Les autres paramètres numériques sont donnés dans le tableau III.2, et feront l'objet d'une discussion section 2.1. Il n'y a pas de germination dans le volume, seuls des cristaux sur la face gauche (en  $x = 0$  mm) où a lieu l'extraction de chaleur germent à la température d'équilibre de la phase. Le modèle CAFE étant dans ce travail uniquement implémenté en deux et trois dimensions, une largeur de 1 mm est donnée au lingot en 2D, et une section de 1 mm x 1 mm en 3D.

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité	Réf.
Conductivité thermique	$\kappa$	70	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	
Capacité calorifique	$\rho C_p$	$3 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$	
Chaleur latente	$\rho L$	$9,5 \cdot 10^8$	$\text{J m}^{-3}$	
Température de fusion	$T_m$	663,5	$^{\circ}\text{C}$	
Température de liquidus	$T_{eq}^{s1}$	618	$^{\circ}\text{C}$	
Température eutectique	$T_{eq}^{s2}$	577	$^{\circ}\text{C}$	
Pente de liquidus	$m$	-6,5	$\text{K \%pds}^{-1}$	
Coefficient de partage	$k$	0,13	-	
Composition moyenne	$w_0$	7	%pds	
Cinétique de pointe	$a_1^{s1}$	$2,9 \cdot 10^{-6}$	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-k_1^{s1}}$	
	$k_1^{s1}$	2,7	-	
	$a_1^{s2}$	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-k_1^{s2}}$	
	$k_1^{s2}$	2,0	-	
Germination (refroidisseur)	$\Delta T_{nucl}^{s1}$	0,0	$^{\circ}\text{C}$	
<i>Germes fixés à <math>x = 0</math></i>	$\Delta T_{nucl}^{s2}$	0,0	$^{\circ}\text{C}$	
Germination (volume)	$n^{s1}$	0	$\text{m}^{-3}$	
	$n^{s2}$	0	$\text{m}^{-3}$	
<i>Conditions initiales / aux limites</i>				
Température initiale	$T_0$	800,0	$^{\circ}\text{C}$	
Coefficient de transfert	$h_{ext}$	500,0	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$	
Température extérieure	$T_{ext}$	100,0	$^{\circ}\text{C}$	
Longueur du lingot	$l_z$	0,1	m	
Temps de solidification	$t_{fin}$	1000	s	

**TABLE III.1** Paramètres de la simulation du lingot 1D Al-7%pds Si [Gui04b] pour validation de l'algorithme de couplage en énergie. Les autres paramètres numériques sont donnés dans le tableau III.2.

### Une seule structure et couplage non itératif



**FIGURE III.7** Évolution (a) de la température et (b) de la fraction solide à différentes positions du lingot, tel que prédit par le suivi de front (gris clair) et le modèle CAFE avec le suivi des enveloppes dendritiques seulement et un couplage non itératif (noir).

La figure III.7 présente la température et la fraction de solide prédites à plusieurs points équidistants le long du lingot, à partir de l'interface avec le refroidisseur ( $x = 0$  mm) et jusqu'à la fin du lingot ( $x = 100$  mm). Les courbes en gris clair correspondent aux résultats du calcul suivi de front 1D, et les courbes en noir aux prédictions du modèle CAFE avec suivi des enveloppes d'une seule structure, la structure dendritique  $s_1$ , et un couplage non itératif en énergie. Ce cas correspond aux résultats précédents de la littérature [Gui04a],

hormis le fait que la conversion enthalpie-température est ici effectuée aux nœuds du maillage et non pas aux cellules.

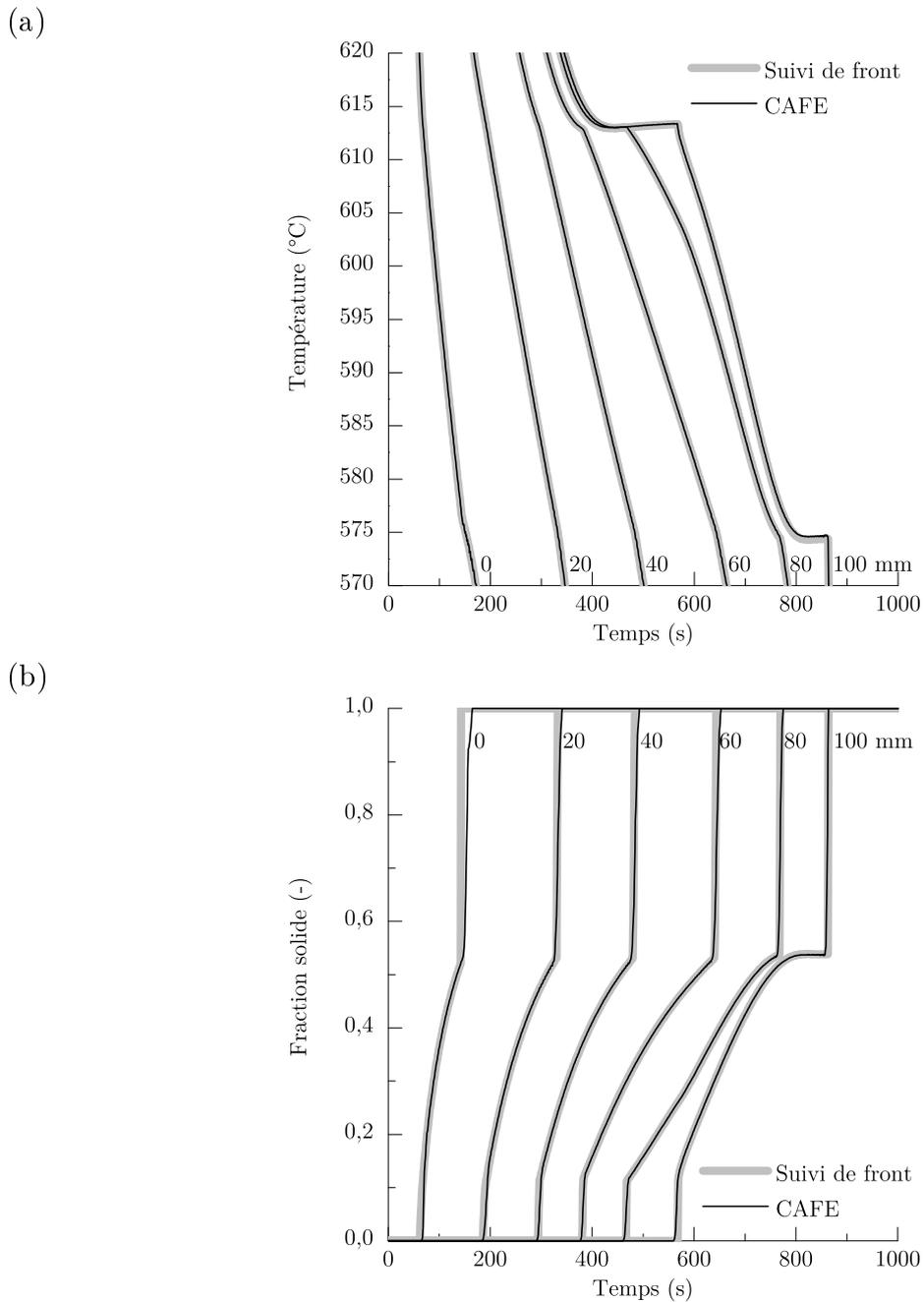
La plus grande différence se trouve au niveau de la transformation eutectique ( $T_{eut} = 577^\circ\text{C}$ ) sur la figure III.7.a. Dans le modèle suivi de front, le grain eutectique a une cinétique propre, menant à une surfusion de l'ordre de  $3^\circ\text{C}$ . Ceci est particulièrement observable sur la courbe  $x = 100\text{ mm}$ , où le plateau eutectique est clairement en dessous de la température eutectique. Au contraire, dans les simulations CAFE, aucune surfusion eutectique n'est prédite. L'enveloppe de la structure eutectique n'étant pas ici suivie au niveau de l'automate cellulaire, la transformation eutectique est considérée isotherme à  $T = T_{eut}$ . Concrètement, quand la température locale atteint la température eutectique, la fraction d'enveloppe eutectique est imposée à  $g^{(2)*} = 1$ . En conséquence, le plateau eutectique se trouve à la température eutectique.

Concernant la partie supérieure des courbes de température, un bon accord est trouvé entre les prédictions CAFE et le suivi de front. On retrouve donc ici les mêmes résultats que précédemment [Gui04a], mais en calculant le chemin de solidification aux nœuds. Les plateaux autour de  $613^\circ\text{C}$  correspondent à la formation de la structure dendritique, avec une surfusion de l'ordre de  $5^\circ\text{C}$ . Cette surfusion est également observable sur les courbes d'évolution de la fraction solide en fonction du temps, figure III.7.b, où la fraction de solide passe brusquement de 0 à environ 0,13 suite à la procédure de troncature du chemin de solidification.

Deux types d'oscillations sont relevées sur les courbes prédites par le modèle CAFE. Le premier type prend place au niveau des plateaux dendritiques, vers  $613^\circ\text{C}$ . Ils sont dus aux changements de pentes (en particulier  $dT/dH$ ) dans la conversion de l'enthalpie en température, et peuvent être évités en raffinant les paramètres numériques, notamment le pas de temps. Le deuxième type d'oscillations apparaît autour de la solidification eutectique, sous la forme de marches en température. Ces oscillations sont également dues à un changement de pente, mais sont principalement causées par la taille de maille qui est ici relativement grande. Quand un nœud est atteint par le front eutectique, sa température est bloquée à  $T_{eut}$  jusqu'à ce que la fraction solide atteigne un. Ce blocage a une influence sur les éléments connectés au nœud : chaque marche de température correspond à un nœud atteint par le front eutectique.

### Plusieurs structures et couplage itératif

La figure III.8 montre la comparaison entre les prédictions des modèles suivi de front et CAFE avec le nouvel algorithme de couplage itératif complet, et le suivi des enveloppes de plusieurs structures. Par rapport à la figure précédente, l'amélioration est claire : la surfusion eutectique est bien représentée et les oscillations ne sont plus visibles. L'accord avec les prédictions du suivi de front en est largement meilleur. Une différence est tout de même observable sur les courbes d'évolution de la fraction de solide (fig. III.8.b), en particulier à la position  $x = 0\text{ mm}$ . Cette différence est due à la transformation eutectique qui est très rapide dans cette zone : le point à  $0\text{ mm}$  est celui où les grains dendritique et eutectique apparaissent, la chaleur latente peut donc être très vite extraite par le refroidisseur, qui est en contact avec le lingot à cet endroit. La fraction solide peut en conséquence augmenter très rapidement. Suivre ces phénomènes plus précisément avec le modèle CAFE est possible, mais demande de raffiner les paramètres numériques que sont la taille de maille et le pas de temps.



**FIGURE III.8** Évolution (a) de la température et (b) de la fraction solide à différentes positions du lingot, comme prédit par le suivi de front (gris clair) et le modèle CAFE avec le suivi des enveloppes dendritiques et eutectiques et un couplage itératif complet (noir).

### Comparaison quantitative

Le tableau III.2 donne un résumé des comparaisons quantitatives entre les températures prédites par le suivi de front et le modèle CAFE multistructures pour différents algorithmes. Les cas de la série (a) correspondent à l'algorithme non itératif, tel qu'utilisé précédemment dans la littérature, mais avec suivi des enveloppes dendritiques et eutectiques et calcul des chemins de solidification aux nœuds du maillage. Les cas (b) correspondent au couplage itératif complet : par exemple, les prédictions obtenues avec

Cas	Réf.	1	2	3	4	5	6	3D
$l_{CA}$ ( $\mu\text{m}$ )	100	<b>10</b>	<b>500</b>	100	100	100	100	100
$\Delta t$ (s)	0,1	0,1	0,1	<b>0,01</b>	0,1	0,1	0,1	0,1
$\varepsilon$ (-)	$4 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$	<b><math>4 \cdot 10^{-4}</math></b>	<b>1</b>	$4 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$
$l_{FE}$ (m)	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	<b><math>5 \cdot 10^{-4}</math></b>	$10^{-3}$

(a) *Couplage non itératif*

Cas	Réf. a	1a	2a	3a	4a	5a	6a	3Da
$ \Delta T _m$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,1652	0,1601	0,1580	0,0393	-	-	0,2926	0,1590
$ \Delta T _{\sigma}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,3631	0,3228	0,3474	0,0515	-	-	0,6077	0,3149
$ \Delta T _{\max}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	14,8	11,3	12,2	0,840	-	-	20,4	10,4
Temps CPU	24min02	1h58	25min47	2h04	-	-	39min15	50min24

(b) *Couplage itératif complet*

Cas	Réf. b	1b <sup>a</sup>	2b	3b	4b	5b	6b	3Db
$ \Delta T _m$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,0438	-	0,0557	0,0397	0,0435	0,0836	0,0412	0,0455
$ \Delta T _{\sigma}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,0568	-	0,0820	0,0551	0,0585	0,1425	0,0499	0,0559
$ \Delta T _{\max}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,681	-	0,901	0,804	0,766	4,527	0,532	0,575
Temps CPU	1h24	-	1h10	5h27	5h01	47min44	7h11	11h29

(c) *Couplage itératif explicite*

Cas	Réf. c	1c	2c	3c	4c	5c	6c	3Dc
$ \Delta T _m$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,0537	0,0403	0,0881	0,0518	0,0547	0,1008	0,0536	0,0436
$ \Delta T _{\sigma}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,0640	0,0567	0,113	0,0625	0,0657	0,1489	0,0658	0,0543
$ \Delta T _{\max}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	0,517	1,037	1,332	0,526	0,505	4,707	0,884	0,488
Temps CPU	33min18	1h49	33min37	1h39	44min42	31min17	1h03	1h02

a. Ce cas n'a pu converger avec ces paramètres.

**TABLE III.2** Erreur sur la température prédite par le modèle CAFE par rapport au suivi de front, pour différents algorithmes de couplage et différents paramètres numériques : taille de cellule,  $l_{CA}$ , pas de temps,  $\Delta t$ , critère de convergence,  $\varepsilon$ , et taille de maille,  $l_{FE}$ . Sont donnés l'erreur moyenne,  $|\Delta T_m|$ , son écart-type,  $|\Delta T_{\sigma}|$ , et l'erreur maximale,  $|\Delta T|_{\max}$ .

le cas Réf.b sont tracées sur la figure III.8. Enfin, les cas (c) correspondent au couplage itératif explicite, où l'algorithme automate cellulaire n'est résolu qu'une seule fois par pas de temps macroscopique, mais où une convergence est quand même effectuée sur la résolution de l'équation de conservation de l'énergie.

Pour chaque cas sont donnés, par rapport aux résultats du modèle suivi de front : l'erreur moyenne sur la température,  $|\Delta T_m|$ , son écart type,  $|\Delta T_{\sigma}|$ , et l'erreur maximum,  $|\Delta T|_{\max}$ . Pour chaque série de cas (a), (b) et (c), un cas référence Réf. est choisi pour pouvoir mettre en exergue l'influence des paramètres numériques sur les résultats. Chaque cas  $i \in [1,6]$  fait varier un paramètre par rapport au cas référence. Le cas noté 3D reprend les mêmes paramètres que la référence, mais en trois dimensions.

**Pas de temps** Sans itérations (série (a)), le pas de temps macroscopique est le paramètre qui a le plus fort impact sur les résultats. Diviser le pas de temps de référence (0,1s) par 10 permet de diviser l'erreur moyenne par quatre (cas 3a), l'écart-type par sept et de réduire l'erreur maximale à moins de  $1^{\circ}\text{C}$ . Notons que ces résultats sont du même ordre que ce qui

est obtenu avec les couplages itératifs (cas Réf.b et Réf.c). Ceci justifie l'hypothèse initiale qu'un pas de temps assez petit permet de se passer d'une résolution itérative [Gui04a]. Le pas de temps de référence est ici trop grand pour atteindre un bon accord entre suivi de front et modèle CAFE, puisque l'erreur maximale atteint 14,8°C pour le cas Réf.a. Précisons tout de même que cette erreur est relevée pour tous les cas vers 870 s, quand l'eutectique atteint le point à 100 mm du lingot, qui est le dernier point solidifié. Après quoi la température chute brutalement puisqu'aucune chaleur latente n'est libérée par la suite. Ce changement brutal de pente relativise l'erreur maximale, et finalement l'erreur moyenne est plus significative ici.

Pour les algorithmes avec itérations, le pas de temps n'a quasiment aucune influence sur les résultats (cas 3b et 3c), ce qui est cohérent. Notons que le temps de résolution augmente par contre considérablement par rapport aux références Réf.b et Réf.c. Par contre, si l'on compare les cas Réf.b et 3a, l'approche itérative complète permet d'obtenir les mêmes ordres d'erreur avec un pas de temps 10 fois plus grand et un temps de résolution diminué de 25%. Finalement, la nouvelle approche de couplage itératif explicite (cas Réf.c) permet de retrouver quasiment la même précision que le couplage itératif complet (cas Réf.b) mais avec un temps de résolution très proche de l'algorithme non itératif (cas Réf.a).

**Critère de convergence** Concernant le critère de convergence, il est clair qu'un plus petit critère sur le résidu donne de meilleurs résultats. Cependant, un compromis raisonnable doit être trouvé, car un critère très petit n'améliore pas forcément les résultats de manière notable, mais peut énormément augmenter le temps de résolution. C'est le cas sur les exemples 4b et 4c où l'erreur sur la température reste inchangée, mais où le temps de résolution est plus important en comparaison aux cas Réf.b et Réf.c. Les cas 5b et 5c ( $\varepsilon = 1$ ) correspondent à une convergence immédiate, mais le système étant évalué au moins deux fois pour calculer le nouveau résidu, les erreurs restent plus faibles qu'avec l'algorithme non itératif (cas Réf.a).

**Taille de cellule** Sans itérations, le pas de cellule a une influence très limitée sur les résultats (cas 1a et 2a). Comme attendu, une taille de cellule plus petite permet de diminuer l'erreur. L'amélioration principale se trouve sur l'erreur maximale, mais même avec une taille de 10  $\mu\text{m}$  (cas 1a), celle-ci reste supérieure à 10°C. La taille de cellule a un effet plus important avec les algorithmes itératifs (cas 2b, 1c et 2c) mais limité. Ceci vient du fait que le chemin de solidification est calculé aux nœuds. Pour ce cas très simple, le gradient température est quasi-1D selon la direction de croissance. Aussi, tant que la taille de cellule reste inférieure à la taille de maille, l'influence de  $l_{CA}$  est quasiment inexistante sur ce cas.

**Taille de maille** La conversion enthalpie-température étant effectuée aux nœuds, la taille de maille a par contre une grande influence sur les courbes de température. Concernant l'algorithme non itératif (cas 6a), les changements ne sont pas ceux attendus : le maillage le plus fin donne les plus grandes erreurs. En fait, il est commun pour retrouver les mêmes ordres d'erreur de devoir diviser le pas de temps par deux si la taille de maille est divisée par deux. Ici, le pas de temps de référence était déjà trop important pour avoir des prédictions correctes avec un maillage  $l_{FE} = 10^{-3}$  m (Réf.a). Il est donc logique qu'un maillage plus fin,  $l_{FE} = 5 \cdot 10^{-4}$  m, entraîne de moins bons résultats (6a). Par contre, le couplage itératif complet permet d'améliorer encore la concordance avec le suivi

de front (cas 6b par rapport à Réf.b). La limitation est donc bien ici le maillage et non le critère de convergence. Le temps de résolution est cependant beaucoup plus élevé. Le couplage itératif explicite (cas 6c) permet quant à lui de garder le même ordre de temps de résolution qu'en absence d'itérations, sans augmenter notablement l'erreur commise.

**Dimension** Les cas de référence ont également été résolus en 3D, pour les trois couplages (3Da, 3Db et 3Dc). Les erreurs sont globalement plus faibles qu'en 2D, la moyenne des valeurs en chaque point se faisant sur un plus grand nombre de nœuds. Le suivi de front n'étant développé qu'en une dimension, les capteurs sont placés au centre de la section 3D dans les simulations CAFE.

**Temps de calcul et conclusion** Il ressort de cette étude que l'algorithme itératif explicite permet d'améliorer fortement la précision du calcul sans augmenter de façon dramatique les temps de résolution. En comparant les cas Réf.a et Réf.c, l'erreur moyenne est divisée par trois alors que le temps de calcul n'est augmenté que de 38%. De plus, cet algorithme permet de stabiliser notablement la résolution et sera l'approche utilisée systématiquement par la suite. Le couplage itératif complet reste le plus précis, mais la différence par rapport au couplage itératif explicite est trop faible pour justifier son temps de calcul très important. De plus, la quantité de mémoire nécessaire à la résolution de la partie CA est quasiment doublée, ce qui est très limitant sur des grands domaines. Notons finalement que le couplage non itératif donne des résultats acceptables dans la plupart des cas (ici,  $\Delta T_m < 0,5^\circ\text{C}$ ) si le pas de temps choisi est raisonnablement petit.

## 2.2 Transition colonnaire-équiaxe expérimentale

Cette section est dédiée à l'étude d'un cas expérimental de transition colonnaire-équiaxe sur un lingot d'Al-7%pds Si [Gan00a]. Cette expérience a déjà fait l'objet de modélisations [Gan00b, Mar03]. Le lingot est cylindrique, de 35 mm de rayon. La hauteur du lingot mesurée à la fin de la solidification est de 170 mm. La partie inférieure est en contact avec un refroidisseur en cuivre. Des thermocouples sont placés à 20, 40, 60, 80, 100, 120 et 140 mm du refroidisseur. Une coupe verticale de la structure de grains est donnée à la figure I.3.

La thermomécanique n'étant pas résolue dans le modèle CAFE, le retrait dû à la solidification ne peut être représenté. Pour pallier partiellement ce défaut, un domaine de 173 mm est utilisé pour les simulations, qui est plus grand que le lingot final, mais plus petit que le lingot initial liquide (177 mm). Ceci s'est déjà avéré nécessaire par le passé [Gan00b]. La température dans le lingot au niveau du refroidisseur ( $z = 0$  mm) est déduite par une extrapolation au second ordre des données mesurées à 20, 40, 60 et 80 mm du bas. Cette température extrapolée est imposée sur la face inférieure du domaine pour la simulation CAFE. Comme précédemment [Gan00b], un faible flux de chaleur  $J_0 = -3000 \text{ W m}^{-2}$  est imposé sur la face supérieure du lingot dans la première partie de la simulation, tant que  $t < 900$  s. Les autres faces sont supposées adiabatiques. L'enthalpie des différentes phases est tabulée d'après la chaleur massique et la chaleur latente données dans la littérature (équ. II.50), ainsi que la conductivité thermique des phases [Gan00b]. La macroségrégation est ici négligée, ce qui est justifié pour un alliage Al-Si, ainsi que la convection. Le chemin de solidification est calculé d'après le modèle de Gulliver-Scheil avec un diagramme linéarisé, en utilisant les équations III.1, II.64,

II.56, II.58 et II.59. Comme précédemment, le chemin de solidification est tronqué par l'introduction des fractions de zones,  $g^{(j)}$ , dans l'équation II.48. La vitesse de croissance est calculée avec une loi puissance (équ. II.47) et les mêmes paramètres que précédemment (tableau III.1).

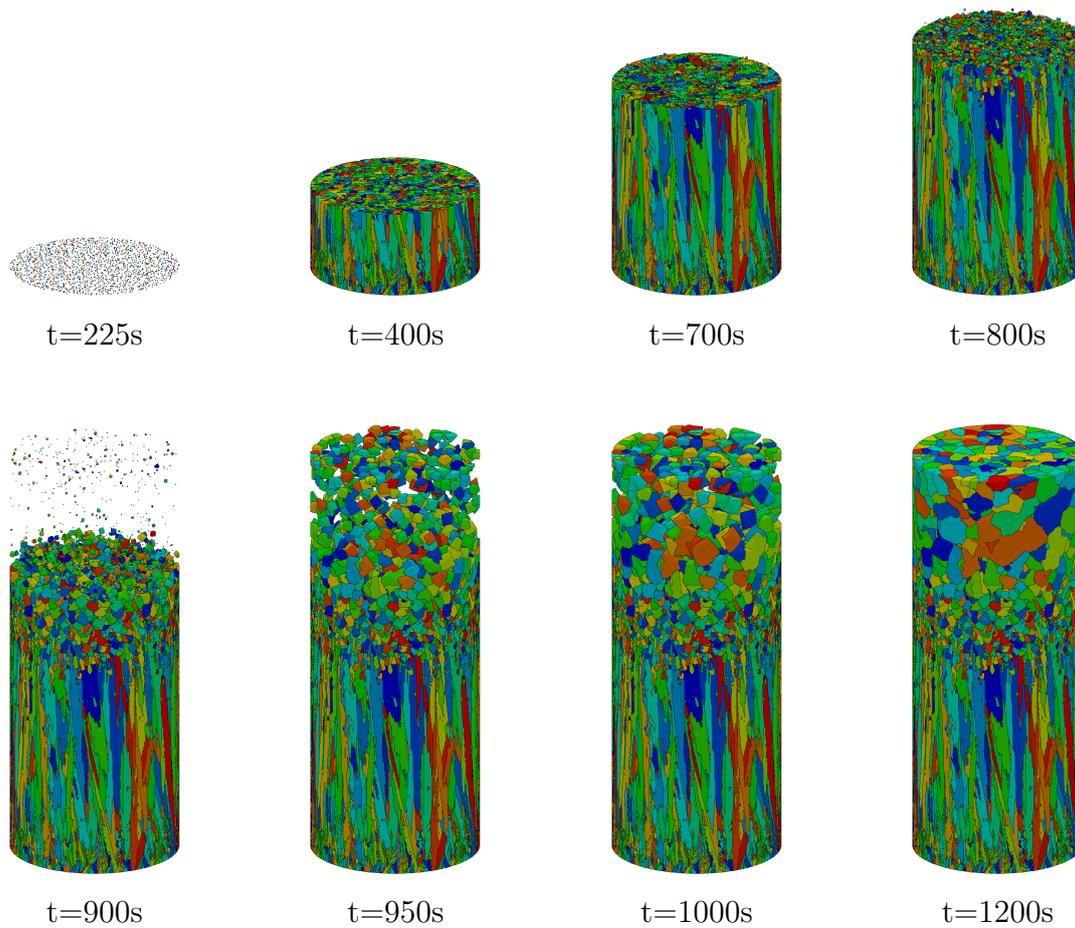
Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Taille de maille	$l_{FE}$	$3,0 \cdot 10^{-3}$	m
Taille de cellule	$l_{CA}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$	m
Pas de temps	$\Delta t$	0,1	s
Germination (refroidisseur)	$\Delta T_N^{s_1}$	0,0	°C
$s_1$ = dendritique	$\Delta T_\sigma^{s_1}$	0,0	°C
	$n^{s_1}$	$5 \cdot 10^5$	$m^{-2}$
Germination (refroidisseur)	$\Delta T_N^{s_2}$	0,0	°C
$s_2$ = eutectique	$\Delta T_\sigma^{s_2}$	0,0	°C
	$n^{s_2}$	$5 \cdot 10^5$	$m^{-2}$
Germination (volume)	$\Delta T_N^{s_1}$	5,19	°C
$s_1$ = dendritique	$\Delta T_\sigma^{s_1}$	0,5	°C
	$n^{s_1}$	$10^9$	$m^{-3}$
Germination (volume)	$n^{s_2}$	0	$m^{-3}$
$s_2$ = eutectique			
Hauteur du lingot	$l$	0,173	m
<i>Conditions initiales / aux limites</i>			
Refroidisseur	$T$ expérimental imposé		
Face supérieure, $t < 900$ s	$J_0$	-3000	$W m^{-2}$
Face supérieure, $t \geq 900$ s	$J_1$	0	$W m^{-2}$
Température initiale	$T_0$	745,3	°C

**TABLE III.3** Paramètres pour la simulation CAFE de la transition colonnaire-équiaxe sur un lingot cylindrique 3D d'Al-7%pds Si [Gan00a].

Les paramètres numériques sont donnés dans le tableau III.3. Les enveloppes des grains de deux structures sont suivies : dendritique ( $s_1$ ) et eutectique ( $s_2$ ). Les cinétiques de croissance de ces structures sont les mêmes que celles données dans le tableau III.1. Des germes dans le volume sont tirés pour la structure dendritique uniquement. Une deuxième loi gaussienne est définie spécifiquement sur la face inférieure du lingot en contact avec le refroidisseur, pour les structures dendritique et eutectique. La taille de cellule est de  $250 \mu m$ , soit environ  $43 \cdot 10^6$  cellules sur tout le domaine. Étant donné les ressources requises par ce type de calcul, celui-ci a été effectué sur 16 cœurs en 3 jours et 6 heures. Le couplage non itératif est utilisé ici, avec un pas de temps macroscopique  $\Delta t = 0,1$  s.

La figure III.9 présente une vue extérieure du lingot à différents temps de solidification. Chaque couleur correspond à un grain dendritique. La structure eutectique se forme par-dessus, et n'est pas représentée ici. N'étant pas observable expérimentalement, le suivi de la structure eutectique permet simplement de prendre en compte la surfusion eutectique.

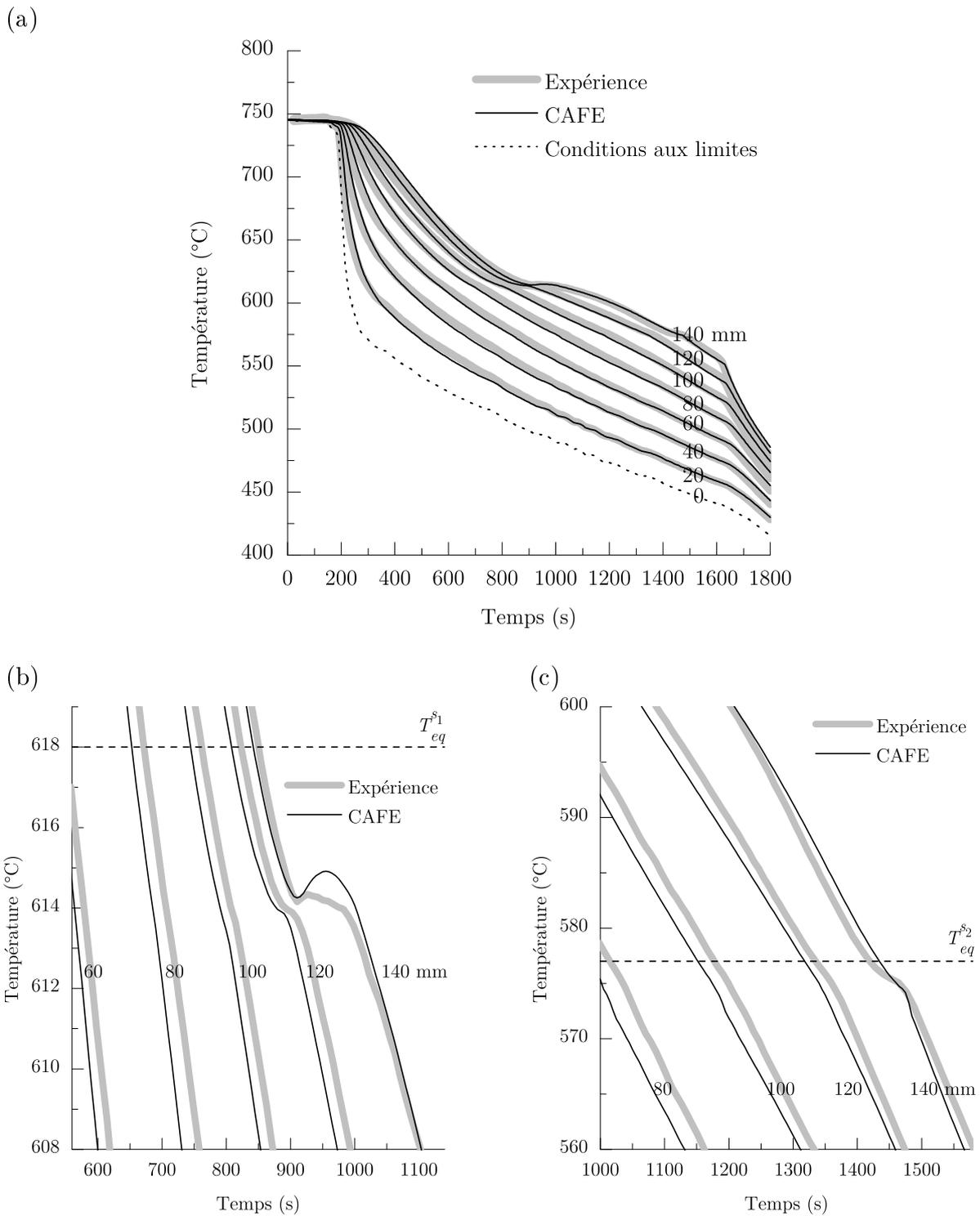
Comme on le voit sur la figure III.9, les grains forment au tout début de la solidification une structure équiaxe : beaucoup de grains germent sur la surface en contact avec le refroidisseur, vu la loi de germination donnée à cet endroit. Par la suite, les grains dont les directions  $\langle 100 \rangle$  sont alignées avec le gradient thermique vertical se développent au détriment des autres, et une structure colonnaire apparaît. Enfin, la diminution du gradient



**FIGURE III.9** Vue 3D de la structure de grains dendritiques prédite par le modèle CAFE à différents temps de la transition colonnaire-équiaxe.

thermique devant l'interface entraîne la germination de nouveaux grains dans le volume de liquide libre entre 800 et 950 s, résultant en une transition colonnaire-équiaxe. Notons que cette transition est prédite plus tôt que dans l'expérience, puisqu'elle est mesurée à 118 mm du refroidisseur (fig. I.3), mais prédite par le modèle CAFE à 108,3 mm. De plus, la taille des grains équiaxes dans la partie haute est plus importante qu'expérimentalement. L'ajustement des paramètres de la loi de germination n'a pas permis de prédire une structure plus fine à ce niveau. Ces différences peuvent être expliquées par plusieurs causes. Premièrement, le modèle n'inclut pas le phénomène de sédimentation des grains, qui peut avoir un impact important sur la taille moyenne des grains. Deuxièmement, la loi de germination est purement statistique, or, comme discuté dans le chapitre I, il a été suggéré dans la littérature que la transition colonnaire-équiaxe était plutôt due à la fragmentation des bras de dendrites quand le gradient devient faible dans le liquide. Enfin, d'autres phénomènes physiques tels la macroségrégation et le retrait ont certainement une influence sur la transition colonnaire-équiaxe.

La figure III.10 montre l'évolution de la température, telle que mesurée expérimentalement et prédite par le modèle CAFE. L'accord est globalement très bon. Les différences sont dues aux mêmes raisons que celles mentionnées ci-dessus, avec en plus le fait que la température imposée en bas du lingot n'est qu'une extrapolation des données expérimentales. Cette température imposée est tracée en pointillés sur la figure III.10.a. Le



**Figure III.10** Courbes de température mesurées (gris clair) et prédites par le modèle CAFE (noir) le long du lingot, avec (a) l'histoire complète de solidification et des zooms autour (b) de la température de liquidus,  $T_{eq}^{s1}$ , et (c) de la température eutectique,  $T_{eq}^{s2}$ .

retrait à la solidification est supposé avoir une influence importante sur ces courbes. La transition colonnaire-équiaxe est clairement observable à travers la recalescence prédite et mesurée sur la courbe à 140 mm du refroidisseur, avec une surfusion de l'ordre de 5°C

(fig. III.10.b). Cette recalescence ne peut être prédite sans représentation de la structure, et n'a jamais pu atteindre un tel accord avec l'expérience avec des simulations 2D. Le plateau eutectique est également visible sur la courbe à 140 mm du bas, avec une certaine surfusion (fig. III.10.c).

Le couplage aux nœuds et la parallélisation de l'algorithme CAFE ont permis de résoudre la solidification de deux structures avec un temps de calcul raisonnable. La transition colonnaire-équiaxe telle que prédite ici a atteint un très bon accord avec l'expérience. Le suivi du développement de chaque grain dendritique individuel permet de prédire cette transition sans critère explicite. Les grains colonnaires sont simplement bloqués lors de la croissance par les nouveaux grains ayant germé devant le front. Il a été discuté dans la littérature de l'importance de l'interaction solutale dans la transition colonnaire-équiaxe [Mar03], mais les résultats obtenus ici montrent que le blocage mécanique suffit pour modéliser cette transition correctement. Il pourra en être autrement sur des alliages avec une forte ségrégation extradendritique des espèces chimiques, et/ou une densité de grains équiaxe plus élevée.

### 2.3 Micro et macroségrégation

Les cas présentés ci-dessus sont basés sur des modèles de microségrégation simples (loi des leviers, Gulliver-Scheil), sans macroségrégation, et avec des cinétiques de croissance simplifiées. Le cas étudié ici est basé sur une expérience menée par Gandin *et al.* [Gan08] sur une goutte d'Al-14%<sub>pds</sub> Cu en lévitation électromagnétique. La goutte a un rayon de 2,65 mm, et est refroidie progressivement en abaissant la puissance dans les bobines servant également à la lévitation. Cette expérience a déjà été modélisée auparavant, avec un modèle 1D analytique axisymétrique [Gan08]. Les frontières liquide libre-zone pâteuse et zone pâteuse-eutectique sont suivies avec les modèles KGT et de Jackson-Hunt, respectivement. La fraction de solide interne à la zone pâteuse ainsi que les phénomènes de ségrégation sont résolus avec le modèle de Wang-Beckermann. Un bon accord avec l'expérience, en particulier avec les courbes de refroidissement, a été trouvé.

L'objectif est ici de reproduire ces résultats avec le modèle CAFE 3D, et ainsi de valider la représentation de la diffusion dans le solide et le liquide. Le tableau III.4 reprend tous les paramètres matériau et numériques pour cette simulation. Un grain dendritique et un grain eutectique germent au centre de la goutte, avec des surfusions imposées d'après les mesures expérimentales. La température initiale est également tirée de l'expérience. Le coefficient de transfert thermique avec l'extérieur a été déterminé de façon à retrouver l'évolution en température au début du refroidissement. La convection est négligée, la macroségrégation est donc due uniquement à la diffusion. Les coefficients de diffusion solutale du cuivre dans l'aluminium solide et liquide sont calculés d'après une loi d'Arrhénius :

$$D = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{\mathfrak{R}t}\right) \quad (\text{III.2})$$

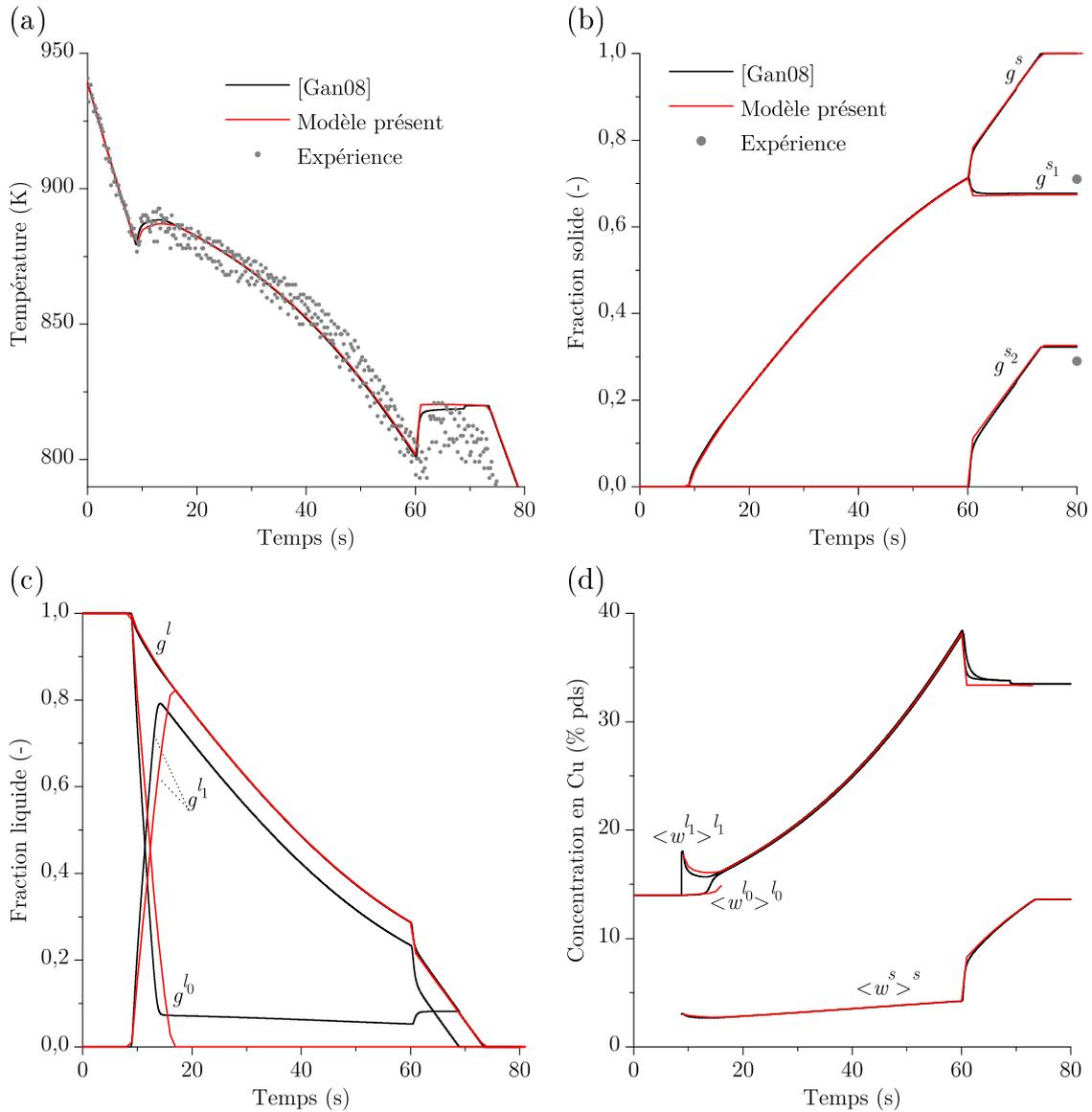
avec  $D_0$  le coefficient pré-exponentiel,  $Q$  l'énergie d'activation et  $\mathfrak{R}$  la constante des gaz parfaits.

Le modèle de microségrégation utilisé ici est le modèle de Wang-Beckermann, avec la fraction d'enveloppe calculée à partir de  $\lambda_1$ , comme présenté au chapitre II, section 3.3. La valeur de  $\lambda_1$  a déjà été étudiée sur ce cas et est reprise de la littérature [Mos10]. L'espacement dendritique secondaire est quant à lui mesuré expérimentalement.

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Chaleur latente	$\rho L$	$10^9$	$\text{J m}^{-3}$
Capacité calorifique	$\rho C_p$	$3 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
Coefficients de Gibbs-Thomson	$\Gamma^\alpha$	$2,41 \cdot 10^{-7}$	K m
	$\Gamma^\beta$	$0,55 \cdot 10^{-7}$	K m
<i>Diffusion de Cu dans l'Al liquide :</i>			
Facteur pré-exponentiel	$D_0^l$	$1,05 \cdot 10^{-7}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Énergie d'activation	$Q^l$	23804	$\text{J mol}^{-1}$
<i>Diffusion de Cu dans l'Al solide :</i>			
Facteur pré-exponentiel	$D_0^s$	$6,47 \cdot 10^{-5}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Énergie d'activation	$Q^s$	134911	$\text{J mol}^{-1}$
<i>Structure dendritique :</i>			
Température de liquidus	$T_{eq}^{s1}$	895	K
Pente du liquidus hypoeutectique	$m^\alpha$	-3,854	$\text{K \%pds}^{-1}$
Coefficient de partage	$k$	0,17	-
Espacement dendritique primaire	$\lambda_1$	$5\lambda_2$	m
Espacement dendritique secondaire	$\lambda_2$	$2,5 \cdot 10^{-5}$	m
Surfusion de germination	$\Delta T_{nucl}^{s1}$	15,0	$^\circ\text{C}$
<i>Structure eutectique :</i>			
Température eutectique	$T_{eq}^{s2}$	821	K
Composition de l'eutectique	$w_{eut}$	33,2	$\% \text{pds}$
Pente du liquidus hypereutectique	$m^\beta$	3,5	$\text{K \%pds}^{-1}$
Longueur de la ligne eutectique	$w'$	46,5	$\% \text{pds}$
Fraction de phase primaire dans l'eutectique	$g_{eut}^\alpha$	0,54	-
Angle de contact avec le liquide	$\theta^\alpha$	60	$^\circ$
	$\theta^\beta$	65	$^\circ$
Paramètre $P'$ du modèle Jackson-Hunt	$P'$	$3,36 \cdot 10^{-2}$	-
Surfusion de germination	$\Delta T_{nucl}^{s2}$	20,0	$^\circ\text{C}$
<i>Conditions initiales / aux limites :</i>			
Composition nominale en Cu	$w_0$	14	$\% \text{pds}$
Température initiale	$T_0$	939	K
Température extérieure	$T_{ext}$	293	K
Coefficient de transfert	$h_{ext}$	29	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
<i>Paramètres numériques :</i>			
Taille de maille	$l_{FE}$	$7 \cdot 10^{-5}$	m
Taille de cellule	$l_{CA}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	m
Pas de temps	$\Delta t$	$10^{-2}$	s
Rayon du domaine	$R$	$2,65 \cdot 10^{-3}$	m

**TABLE III.4** Paramètres pour la simulation de la solidification d'une goutte d'Al-14%pds Cu [Gan08]. Les phases primaires et secondaires sont notées respectivement  $\alpha$  et  $\beta$ . Les structures dendritiques et eutectiques sont notées  $s_1$  et  $s_2$ .

Les simulations CAFE sont menées en 3D sur un huitième de sphère. La figure III.11 représente l'évolution de la température, des fractions des structures solides et liquides, et des compositions intrinsèques des phases en fonction du temps, pour le modèle CAFE et pour le modèle 1D axisymétrique [Gan08]. Au niveau de la température, l'évolution



**FIGURE III.11** Évolution de (a) la température, (b) les fractions des structures dendritique  $s_1$  et eutectique  $s_2$ , (c) les fractions des structures liquides libre  $l_0$  et interdendritique  $l_1$  et (d) la composition moyenne des structures. Les courbes rouges sont celles obtenues avec le modèle CAFE actuel, et les courbes noires avec le modèle 1D axisymétrique [Gan08]. Les données expérimentales sont indiquées avec le symbole  $\bullet$ .

est bien retrouvée et les deux recalescences dendritique et eutectique sont correctement prédites. Concernant les fractions de structures solides  $s_1$  et  $s_2$ , ainsi que la fraction totale  $g^s = g^{s_1} + g^{s_2}$ , les prédictions sont en très bon accord (fig. III.11.b). On remarque notamment une refusion de la structure dendritique lors de l'apparition de l'eutectique, à  $t = 60$ s. Par contre, les fractions des structures liquides montrent certaines différences (fig. III.11.c). La plus importante est que dans le modèle 1D axisymétrique, il reste une quantité de liquide libre  $g^{l_0}$  tout au long de la solidification, qui ne disparaît qu'avec la croissance de l'eutectique. Ce phénomène est dû à l'enrichissement en soluté du liquide libre, qui bloque complètement la croissance dendritique. L'eutectique finit donc par croître directement dans le liquide libre. Au contraire, dans le modèle CAFE présent, l'enveloppe

du grain englobe rapidement tout le domaine et à  $t = 17$  s, tout le liquide restant est interdendritique  $l_1$ . Le liquide libre ne s'enrichit donc pas suffisamment vite pour bloquer la croissance dendritique. Cette différence vient de deux points :

- le grain adopte dans le modèle CAFE une forme octaédrique, les bras principaux peuvent donc facilement atteindre le bord du domaine. Dans le modèle axisymétrique, l'enveloppe de grain est sphérique, ce qui permet d'enrichir le liquide libre de façon homogène.
- le calcul CAFE est multidimensionnel tandis que le modèle axisymétrique est 1D. Les phénomènes de diffusion numérique font que le soluté peut partiellement “s'échapper” de la zone de liquide libre, ce qui est impossible en 1D.

Enfin, concernant la composition, les prédictions sont en très bon accord pour le liquide interdendritique  $l_0$  et le solide, sachant que la composition du solide tracée  $\langle w^s \rangle^s$  correspond à la moyenne sur la structure dendritique et eutectique. Pour le liquide  $l_1$ , on retrouve les résultats discutés ci-dessus indiquant que l'enrichissement en soluté est beaucoup plus lent avec le modèle CAFE, et disparaît rapidement.

Le tableau III.5 présente la fraction d'eutectique,  $g^{s2}$ , à la fin de la solidification, telle que mesurée expérimentalement et calculée avec plusieurs modèles. L'approximation de Gulliver-Scheil ne considère aucune surfusion, et une diffusion nulle dans le solide, d'où une fraction d'eutectique éloignée de l'expérience. Le modèle 1D axisymétrique utilisé dans la comparaison ci-dessus [Gan08] prend en compte la surfusion dendritique et eutectique ainsi que la diffusion dans le solide, et prédit ainsi une fraction  $g^{s2}$  plus proche de la valeur expérimentale. Enfin, le modèle CAFE axisymétrique utilisé précédemment [Mos10] ne permet de suivre que la croissance dendritique, aussi la surfusion de germination et de croissance eutectique sont nulles.

	Expérience	Gulliver-Scheil	[Gan08]	[Mos10]	Modèle présent			
					(1)	(2)	(3)	(4)
$\Delta T_{nucl}^{s1}$ (°C)	15,0	0	15,0	15,0	15,0	15,0	15,0	0,0
$\Delta T_{nucl}^{s1}$ (°C)	20,0	0	20,0	0,0	20,0	0,0	20,0	0,0
$D^s$ (m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	>0	0	>0	>0	>0	>0	0	0
$g^{s2}$ (-)	0,29	0,353	0,322	0,335	0,323	0,334	0,335	0,347

**TABLE III.5** Fraction finale d'eutectique,  $g^{s2}$ , mesurée expérimentalement et calculée avec plusieurs modèles : approximation de Gulliver-Scheil, modèle 1D semi-analytique [Gan08], modèle CAFE axisymétrique avec une seule structure [Mos10], et modèle CAFE 3D présent.

Le modèle CAFE présent introduit la possibilité de suivre plusieurs structures, aussi le cas (1) correspond aux mêmes conditions que le modèle semi-analytique [Gan08], et la fraction d'eutectique prédite (0,323) en est très proche (0,322). Le cas (2) permet de mettre en avant le rôle de la surfusion de germination eutectique : la fraction finale d'eutectique est plus élevée (0,334), car la transformation eutectique commence plus tôt. Dans le cas (1) avec surfusion de germination, la recalescence eutectique permet de refondre partiellement la structure dendritique (fig. III.11), mais pas suffisamment pour atteindre une fraction d'eutectique aussi élevée. Malgré le fait que le cas (2) prenne en compte la surfusion de croissance eutectique, la valeur de  $g^{s2}$  est presque identique à celle prédite par le modèle CAFE précédent [Mos10], où ni la surfusion de croissance ni de germination étaient intégrées.

Le cas (3) met en avant le rôle de la diffusion dans le solide, qui mène à une fraction dendritique plus importante au moment où la transformation eutectique prend place. Enfin, le cas (4) s'approche de l'approximation de Gulliver-Scheil, puisque les surfusions de germination et la diffusion dans le solide sont nulles. La fraction  $g^{s2}$  prédite (0,347) est cependant légèrement plus faible qu'avec l'approximation de Gulliver-Scheil, car les surfusions de croissance sont tout de même prises en compte. Il apparaît donc que, pour ce cas, la diffusion dans le solide et les surfusions de germination sont indispensables pour s'approcher de l'expérience. Le modèle CAFE multistruktures présenté ici permet de prendre en compte ces surfusions de germination dendritique et eutectique, ce qui avait déjà été identifié comme une amélioration nécessaire [Mos10] pour retrouver des fractions de structures correctes. Les résultats présentés dans le tableau III.5 montrent que les prédictions du modèle semi-analytique [Gan08] peuvent en effet être retrouvées avec cette approche multistruktures.

## 2.4 Comparaison avec un modèle macroscopique indirect

Une comparaison est présentée ici avec un modèle 1D macroscopique indirect [Her06]. Ceci complète la comparaison avec un modèle microscopique indirect (section 2.3 ci-dessus) et avec un modèle microscopique direct (chapitre IV, section 1). Notons qu'une comparaison similaire a déjà été réalisée [Mos10]. Le modèle CAFE avait dans cette étude été modifié afin de représenter la croissance d'une enveloppe sphérique, pour être comparée avec celle du modèle 1D [Her06].

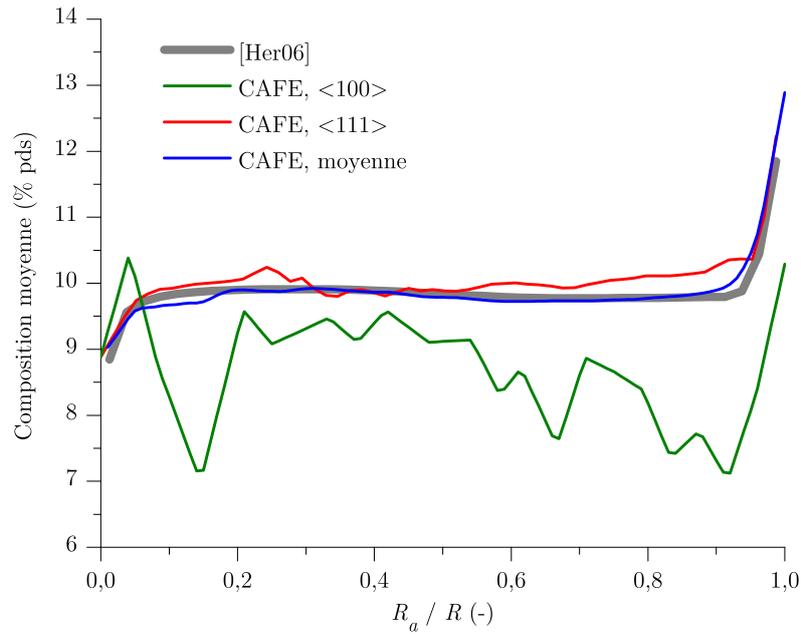
Le modèle macroscopique indirect faisant l'objet de la comparaison est basé sur la méthode des volumes finis, avec un maillage monodimensionnel régulier, pour résoudre les équations classiques de conservation (énergie, soluté). La frontière zone pâteuse-zone liquide est suivie par une méthode de suivi de front, avec une cinétique de type Ivantsov. Le modèle est appliqué à une expérience de solidification d'une goutte de 125  $\mu\text{m}$  de rayon par atomisation, d'un alliage Al-10%<sub>pds</sub> Cu [Her06]. Les paramètres du calcul sont donnés dans le tableau III.6. Les conditions aux limites  $h_{ext}$  et  $T_{ext}$  correspondent à un refroidissement d'environ  $-2000 \text{ K s}^{-1}$ . Un grain dendritique germe au centre du domaine avec une surfusion de 30 K. La transformation eutectique est considérée isotherme, à la température eutectique. Le domaine simulé peut donc être limité à un huitième de sphère. Concernant le modèle CAFE, un remaillage est mis en place sur le maillage  $M_{FE}$  servant à la résolution des équations macroscopiques, tandis que le maillage  $M_{CA}$  servant de support à la grille de cellules reste fixe (voir fig. II.16). La taille de maille est calculée avec un estimateur d'erreur à partir du hessien du champ de composition moyenne [Ham08]. Un exemple de maillage raffiné est donné à la figure III.13.a, ainsi que les champs de fraction solide, composition moyenne en cuivre et température à un instant donné de la simulation CAFE.

La figure III.12 présente le profil de composition à la fin de la solidification, prédit par le modèle 1D et par le modèle CAFE, en fonction de la position normalisée  $R_a/R$ . Concernant le modèle CAFE, le profil de composition est tracé selon les directions  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ . La moyenne est également mesurée par intégration surfacique de  $\langle w \rangle$  sur des sphères de rayon  $R_a$ . Le modèle 1D est quant à lui axisymétrique, ce qui revient à considérer une enveloppe de grain sphérique : le profil de composition ne dépend donc pas de la direction selon laquelle il est tracé. On constate sur la figure III.12 que cette approximation ne permet pas de comparer directement le modèle 1D avec l'enveloppe octaédrique

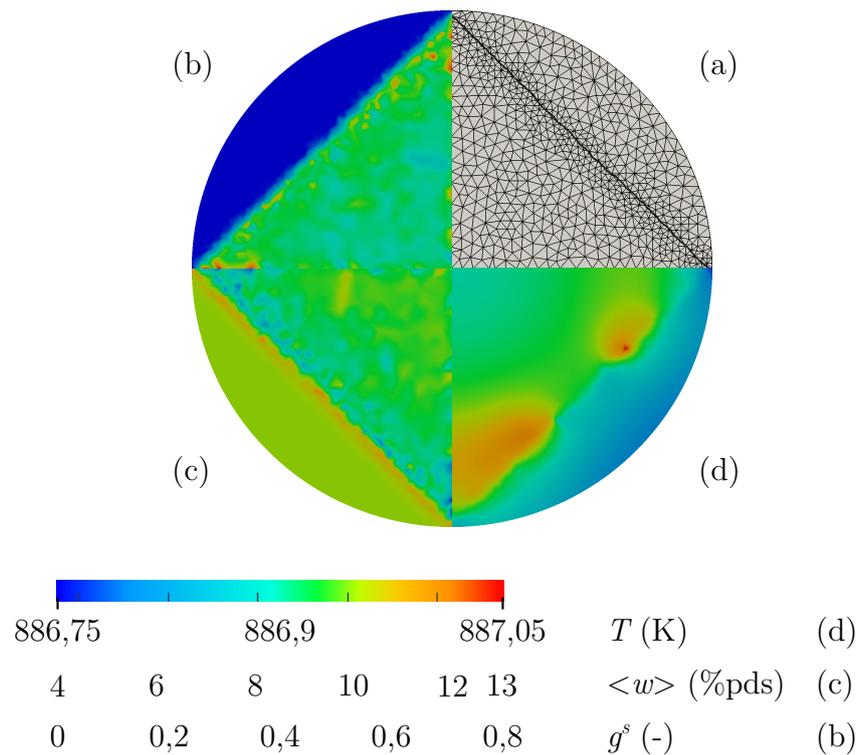
Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Chaleur latente	$\rho L$	$9,5 \cdot 10^8$	$\text{J m}^{-3}$
Capacité calorifique	$\rho C_p$	$3 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
Coefficient de Gibbs-Thomson [Mos10]	$\Gamma$	$2,41 \cdot 10^{-7}$	K m
Diffusion de Cu dans l'Al liquide	$D_0^l$	$1,05 \cdot 10^{-7}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
	$Q^l$	23804	$\text{J mol}^{-1}$
Diffusion de Cu dans l'Al solide	$D^s$	0,0	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Conductivité thermique	$\kappa^l$	100,0	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
	$\kappa^s$	192,5	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
Température de fusion	$T_m$	933,5	K
Température de liquidus	$T_{eq}^{s1}$	899,9	K
Température eutectique	$T_{eq}^{s2}$	817,74	K
Pente du liquidus	$m$	-3,37	$\text{K \%pds}^{-1}$
Coefficient de partage	$k$	0,17	-
Espacement dendritique primaire	$\lambda_1$	$20 \cdot 10^{-6}$	m
Espacement dendritique secondaire	$\lambda_2$	$20 \cdot 10^{-6}$	m
Surfusion de germination	$\Delta T_{nucl}^{s1}$	30,0	K
<i>Conditions initiales / aux limites :</i>			
Composition nominale en Cu	$w_0$	10,0	%pds
Température initiale	$T_0$	900,9	K
Coefficient d'échange thermique	$h_{ext}$	490	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
Température extérieure	$T_{ext}$	373	K
Rayon du domaine	$R$	$125 \cdot 10^{-6}$	m
<i>Paramètres numériques :</i>			
Taille de maille (maillage $M_{FE}$ )	$l_{FE}$	$3 \cdot 10^{-6} - 5,8 \cdot 10^{-6}$	m
Taille de maille (maillage $M_{CA}$ )	$l_{FE}$	$3 \cdot 10^{-6}$	m
Taille de cellule	$l_{CA}$	$10^{-6}$	m
Pas de temps	$\Delta t$	$10^{-5}$	s

**TABLE III.6** Paramètres pour la comparaison avec un modèle macroscopique indirect [Her06], sur une goutte atomisée d'Al-10%pds Cu.

prédite par le modèle CAFE. Dans ce dernier, le profil de composition est plus ségrégré selon la direction  $\langle 100 \rangle$ , puisque c'est selon cette direction que la croissance est la plus rapide. Le soluté peut donc être facilement rejeté loin de la pointe. Par contre, selon la direction  $\langle 111 \rangle$ , le profil de composition est moins ségrégré que le modèle 1D, qui se situe entre ces deux extrêmes. Le comportement est cependant qualitativement correct. La moyenne par intégration sur les surfaces sphériques permet de retrouver quantitativement quasiment le même profil de composition. Le remaillage du modèle CAFE permet de bien représenter la forte ségrégation au centre et à l'extérieur de la goutte. Par contre, les oscillations sur le profil  $\langle 100 \rangle$  de la figure III.12 laissent penser que la stabilisation de la résolution de la conservation du soluté (équ. II.9) peut être améliorée. Actuellement, seul le terme convectif est stabilisé, par la méthode SUPG. Il serait intéressant à l'avenir d'introduire des méthodes de stabilisation du terme diffusif [Hac10].



**FIGURE III.12** Profil de composition à la fin de la solidification, pour le modèle axisymétrique macroscopique indirect [Her06], et pour le modèle CAFE selon les directions  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  et en moyenne, en fonction de la distance au centre normalisée.



**FIGURE III.13** (a) Maillage et frontière du grain, (b) fraction de solide, (c) composition moyenne et (d) température pour la simulation CAFE 3D sur le plan (010), sur le cas comparé au modèle macroscopique indirect [Her06], à l'instant où la fraction volumique de grain atteint 0,3.

### 3 Performances et calcul parallèle

Les figures présentées dans la section II.6 sont des cas schématiques pour faciliter la compréhension, mais ne se prêtent pas à des mesures de performance vu la simplicité du problème. Les résultats présentés ici sont mesurés sur un cas similaire à l'expérience de transition colonnaire-équiaxe (section 2.2), qui consiste en la solidification d'un lingot cylindrique d'Al-7%*pds* Si, en 2 ou 3 dimensions. Dans un premier temps sera mesuré l'impact des diverses optimisations sur le temps de calcul, puis la scalabilité du code sera étudiée.

#### 3.1 Efficacité des différentes approches

Par rapport au cas présenté précédemment, les paramètres de la simulation (notamment les propriétés thermodynamiques) ont été simplifiés et reportés dans le tableau III.7. Seule la diffusion thermique est ici considérée. De plus, l'algorithme de germination-croissance automate cellulaire n'est appliqué que sur la structure dendritique, la structure eutectique étant considérée comme une réaction isotherme à l'équilibre, prenant place à la température eutectique  $T_{eut}$ .

Les résultats en termes de performances de calcul sont donnés dans le tableau III.8, sur un domaine 2D de 7 x 17,3 cm. Tous les cas ont été lancés sur 8 cœurs de calcul, sauf ceux spécifiés par un astérisque qui ont été lancés en séquentiel (sur un seul cœur). Le temps de calcul est distingué en trois parties :

- la résolution des équations éléments finis, soit ici l'équation de conservation de l'énergie, qui inclut assemblage des matrices et résolution du système linéaire,
- la résolution de l'algorithme automate cellulaire,
- les opérations diverses, regroupant toutes les autres étapes (p.ex. le repartitionnement ou l'interpolation entre deux maillages).

L'efficacité parallèle, définie par l'équation I.20, sera la grandeur utilisée ici pour mesurer les performances de l'algorithme.

#### Allocation dynamique séquentielle : cas (1) et (2)

L'algorithme d'allocation dynamique optimisé présenté dans la section 6.1 est valable en parallèle et en séquentiel. Le cas (1) du tableau III.8 correspond à l'algorithme non optimisé déjà présent dans la littérature [Gan99] utilisé pour résoudre le problème sur un seul cœur, tandis que le cas (2) reprend le nouvel algorithme d'allocation optimisé. Conformément à la figure II.13.a, dans le cas (1) des cellules sont créées sur tout le domaine de liquide surfondu, alors que dans le cas (2), une unique rangée d'éléments devant le front de croissance est remplie de cellules (figure II.13.b). Bien que le temps de résolution FE ne varie pas, l'algorithme CA est 4,3 fois plus rapide dans le cas (2). Cette amélioration dépend bien entendu de la quantité de liquide surfondu présente dans le problème, et donc par extension du gradient de température et de la vitesse de refroidissement. Ici, le nombre de cellules est en moyenne 3,7 fois inférieur dans le nouvel algorithme.

#### Allocation dynamique parallèle : cas (5) et (6)

La même observation peut être faite pour un calcul parallèle en comparant les cas (5) et (6). La résolution CA est ici seulement 4,2 fois plus rapide dans le second cas, à

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Taille de maille	$l_{FE}$	$2,5 \cdot 10^{-3}$	m
Taille de cellule	$l_{CA}$	$10^{-4}$	m
Pas de temps	$\Delta t$	0,1	s
Temps de solidification	$t_{fin}$	1200	s
Conductivité thermique	$\kappa$	70	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
Capacité calorifique	$\rho C_p$	$3 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
Chaleur latente	$\rho L$	$9,5 \cdot 10^8$	$\text{J m}^{-3}$
Température de fusion	$T_m$	660,2	°C
Température de liquidus	$T_{eut}$	577	°C
Pente de liquidus	$m$	-6,5	$\text{K \%pds}^{-1}$
Coefficient de partage	$k$	0,13	-
Cinétique de pointe	$a_1$	$2,9 \cdot 10^{-6}$	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-k_1}$
	$k_1$	2,7	-
Composition moyenne	$w_0$	7	%pds
Température initiale	$T_0$	660,85	°C
Flux de chaleur	$J_{ext}$	$-2 \cdot 10^5$	$\text{J m}^{-2} \text{s}^{-1}$

**TABLE III.7** Paramètres du cas-test 2D pour la mesure des performances des algorithmes en calcul parallèle.

cause d'autres phénomènes dus à l'implémentation parallèle de l'algorithme. Cependant, l'amélioration apportée par le nouvel algorithme est toujours importante.

### Partitionnement du problème FE : cas (1) et (4)

La seule différence entre les cas (1) et (4) est le nombre de processeurs sur lesquels le problème est résolu, respectivement 1 et 8. Le partitionnement dans le cas (4) est ici optimisé pour le problème éléments finis, c'est-à-dire que le maillage est partitionné pour équilibrer le nombre de nœuds et d'éléments traités par chaque cœur. L'efficacité parallèle concernant la partie FE est ici  $Eff(8) = 0,78$ , ce qui est acceptable. Cependant, l'efficacité parallèle du problème CA est de 0,25, ce qui est très faible. Le cas (4) correspond au schéma II.14.a : le nombre de cellules n'est pas correctement réparti entre les cœurs, le partitionnement vis-à-vis de la grille de cellules est donc très mauvais. L'efficacité parallèle sur le temps global est limitée par l'efficacité CA à 0,27. Les mêmes conclusions peuvent être tirées en comparant les cas (3) et (7), qui reprennent l'algorithme d'allocation dynamique optimisé.

### Partitionnement optimisé : cas (6), (7) et (8)

Les cas (6), (7) et (8) du tableau III.8 résument les bénéfices que l'on peut tirer de la méthode à deux maillages et deux partitions présentée dans la section 6.3. Le cas (7) correspond à un partitionnement standard, équilibré pour la résolution FE d'une manière similaire à la figure II.14.a, utilisé pour résoudre l'entièreté du modèle CAFE. Le cas (8) correspond à un partitionnement optimisé pour le problème CA, similaire à la figure II.15, utilisé également pour résoudre la totalité du modèle CAFE. Enfin, le cas (6) correspond à la méthode à deux partitions (sans remaillage) présentée par la figure II.16.

Cas	Allocation dynamique optimisée	Partition FE optimisée	Partition CA optimisée	Gestion mémoire	Temps FE (s)	Temps CA (s)	Temps divers (s)	Temps total (s)
(1)*		x	x	creux	637	6162	1122	7921
(2)*	x	x	x	creux	615	1444	1013	3072
(3)*	x	x	x	profil	598	918	964	2480
(4)		x		creux	102	3064	454	3620
(5)		x	x	profil	103	924	377	1404
(6)	x	x	x	<b>profil</b>	<b>103</b>	<b>220</b>	<b>343</b>	<b>666</b>
(7)	x	x		profil	102	582	275	959
(8)	x		x	profil	264	221	445	930
(9)	x	x	x	standard	103	581	364	1048
(10)	x	x	x	creux	103	333	357	793

**TABLE III.8** Temps de résolution pour différentes approches sur la solidification verticale d'un lingot 2D d'Al-Si. Tous les cas sont exécutés sur 8 cœurs de calcul (AMD Opteron™ 2,3 GHz, 64 bits, 512 ko de cache), hormis ceux notés avec \* qui sont exécutés sur un seul cœur. Le temps d'écriture des fichiers sortie n'est pas inclus.

Il apparaît que la résolution du problème CA avec un partitionnement optimisé pour la partie FE (cas (7)) est 2,6 fois plus lente qu'avec un partitionnement optimisé pour la partie CA. L'efficacité parallèle de l'algorithme CA, calculé en comparaison avec le cas séquentiel correspondant (3), est très faible : 0,20. L'efficacité parallèle FE et totale sont respectivement de 0,73 et 0,32. Cette dernière est encore une fois limitée par la résolution CA.

De façon analogue, la résolution FE avec un partitionnement optimisé pour la partie CA (cas (8)) est 2,6 fois plus lente qu'avec un partitionnement optimisé pour la partie FE. En plus de cela, le temps divers est singulièrement augmenté puisque ce temps regroupe des opérations qui sont effectuées principalement au niveau du maillage éléments finis : modèle de microségrégation, conditions aux limites, etc. L'efficacité parallèle de l'automate est améliorée (0,52) mais celle du problème FE est grandement diminuée (0,28) et l'efficacité totale en pâtit (0,33). Finalement, le temps de résolution global du problème est quasiment le même que dans le cas (7), même si ce temps est réparti différemment.

Le cas (6) est le seul cas optimisé pour la résolution CA et FE. Comme attendu, les temps de résolution des parties CA et FE du problème sont optimaux. Le temps divers est par contre augmenté de 25% à cause des communications et opérations supplémentaires nécessaires pour transporter les variables d'une partition à l'autre. Le temps total de résolution est cependant diminué de 1/3 par rapport aux cas (7) et (8). Notons aussi que l'on s'attend à ce que cette différence devienne plus importante à mesure que le nombre de cœurs augmente. En comparant avec le cas (3), l'efficacité parallèle FE, CA et totale sont respectivement 0,73, 0,52 et 0,47.

### Gestion de la mémoire : cas (6), (9) et (10)

Le cas (9) du tableau III.8 correspond à la gestion de la mémoire avec un tableau contigu standard, représenté par la figure II.17.b. Le cas (10) correspond à l'approche avec un tableau creux, représenté par la figure II.17.c. Enfin, le cas (6) discuté dans le paragraphe ci-dessus correspond au tableau en profil représenté par la figure II.17.d. Logiquement, la seule différence est au niveau des temps de résolution CA. Notons que le tableau standard (cas (9)) est 2,6 fois plus lent que le tableau en profil : ceci est principalement dû à l'allocation dynamique qui n'est pas adaptée à cette méthode, puisque le tableau standard doit être complètement réalloué et recopié à chaque fois qu'un élément du maillage est activé. En comparaison, le tableau creux est seulement 1,5 fois plus lent que le tableau en profil est peut être utilisé comme alternative viable si la mémoire disponible est très limitée. La même conclusion peut être tirée en comparant les cas séquentiels (2) et (3), où le tableau creux est 1,6 fois plus lent. Cependant, cette approche n'est pas envisageable sur de gros cas où ses performances chutent rapidement. La complexité de l'algorithme du tableau creux n'augmente en effet pas de façon linéaire en fonction du nombre de cellules  $n_{cell}$ , mais suivant  $n_{cell} \times \log n_{cell}$ .

### Conclusion sur les optimisations des algorithmes : cas (1) et (6)

En guise de conclusion partielle, nous pouvons comparer le cas (1), qui correspond à l'algorithme historique séquentiel, et le cas (6), qui implémente les optimisations et le calcul parallèle introduits dans ce chapitre. Le temps total de résolution sur 8 cœurs a été divisé par 11,9. On l'a vu, cette amélioration a été possible en passant bien sûr au calcul parallèle, mais surtout grâce aux optimisations des algorithmes séquentiel et parallèle.

## 3.2 Scalabilité parallèle et limitations mémoire

### Utilisation de la mémoire

Un autre aspect très important à considérer est le taux de remplissage des méthodes de gestion de la mémoire. Si celui-ci est trop faible, les ressources de calculs peuvent rapidement devenir insuffisantes pour des cas importants en termes de volume de données. Les performances présentées ici ont été mesurées sur le même cas 3D étudié plus haut pour la transition colonnaire-équiaxe. Le lingot est cylindrique, de diamètre 7 cm et de hauteur 17,3 cm. Le volume correspondant est d'environ 0,65 ℓ. La taille de cellule doit idéalement être de l'ordre de 250 à 100 μm, ce qui signifie de 42 à 250 millions de cellules.

Les grandeurs représentatives de la performance de l'implémentation parallèle peuvent être définies facilement, par exemple l'efficacité par l'équation I.20. Cependant, elles ne peuvent être généralement mesurées que sur un certain domaine en termes de nombre de cœurs, à cause des limitations au niveau du temps de calcul et de la mémoire. Des paramètres numériques donnés (p.ex. taille de maille, taille de cellule) qui sont appropriés pour une résolution sur un seul cœur ne seront par représentatifs de la performance du code sur 128 cœurs, principalement car le problème sera trop petit pour être correctement partitionné en 128 sous domaines. De façon analogue, il n'est pas possible de résoudre sur un seul cœur un très gros cas, à cause de la mémoire qui est limitée et du temps de calcul. En conséquence, un problème est significatif sur un domaine donné en terme de nombre de cœurs. Une alternative consiste non pas à essayer d'accélérer le temps de résolution d'un cas donné en augmentant le nombre de cœurs (ce qui correspond aux équations I.19 et I.20), mais d'augmenter la complexité du problème avec le nombre de cœurs, sans augmenter le temps de résolution [Gus88]. Une efficacité parfaite correspond alors à la résolution d'un cas deux fois plus complexe sur deux fois plus de cœurs, avec le même temps de résolution. La difficulté de ce type d'approche réside dans l'estimation de la complexité du problème, qui dépend de plusieurs paramètres (taille de maille, pas de temps, etc.) de façon non linéaire.

Pour avoir une idée générale du comportement et de la scalabilité du code, c'est-à-dire son habilité à être utilisé sur un nombre quelconque de cœurs, deux domaines ont été définis et sont donnés dans le tableau III.9. Le premier domaine concerne les faibles nombres de cœurs (1 à 32) tandis que le deuxième domaine est dimensionné pour un nombre plus important de cœurs (8 à 256). Tous les paramètres physiques et la mise en données sont les mêmes que dans le cas présenté dans la partie précédente (tableau III.3).

Domaine	Taille de maille (m)	Taille de cellule (m)	Domaine (m <sup>3</sup> )
1-32 cœurs	$3,24 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$6,54 \cdot 10^{-4}$
8-256 cœurs	$1,71 \cdot 10^{-3}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$	

**TABLE III.9** Paramètres numériques pour la mesure des performances parallèles en 3D. Deux domaines se chevauchant sont définis : de 1 à 32 cœurs et de 8 à 256 cœurs. Le nombre total de cellules dans le domaine est respectivement 5,2 et 42 millions.

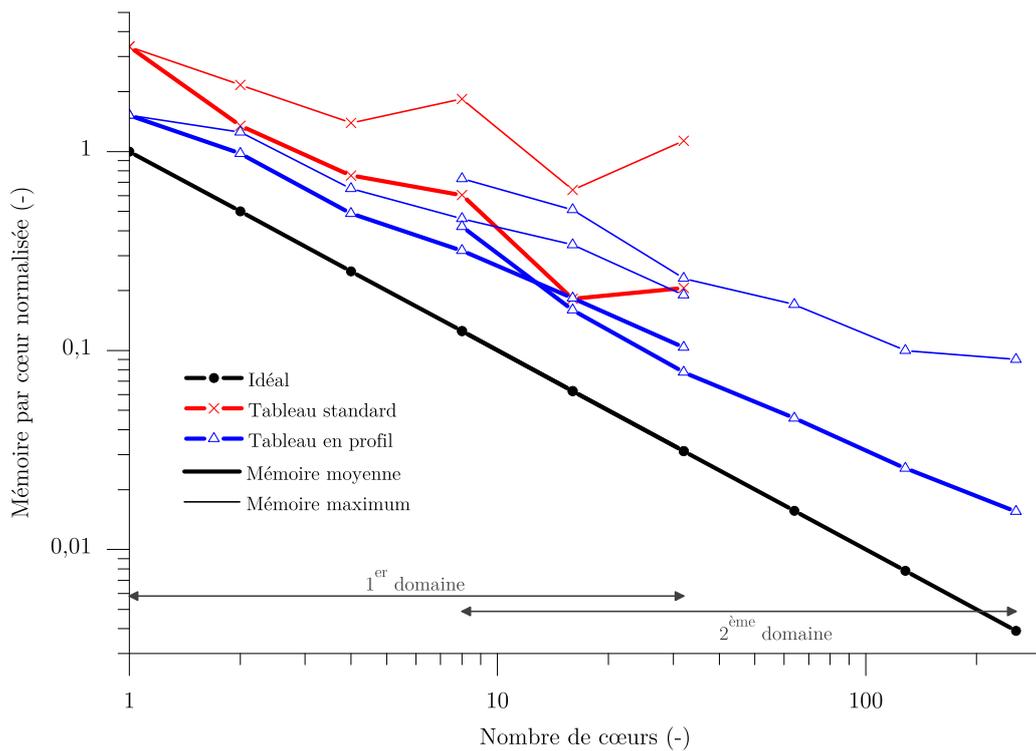
La figure III.14 présente la mémoire normalisée moyenne, définie par :

$$Mem(p) = \frac{\sum_i n_{alloc}(i)}{p} \times \frac{1}{Mem_0} \quad (\text{III.3})$$

où  $n_{alloc}(i)$  est le nombre total de cases mémoires allouées pour les cellules sur le cœur  $i$  (voir figure II.17), et  $Mem_0$  la mémoire minimale nécessaire à la résolution du cas. Cette dernière est calculée avec  $Mem_0 = \tau \sum_j^k n_{alloc}(j)$ , où  $k$  est le plus petit cas du domaine en termes de nombre de cœurs ( $k = 1$  pour le premier domaine, et  $k = 8$  pour le deuxième) et  $\tau$  le taux de remplissage moyen, défini par la figure II.17. La mémoire maximale normalisée est également représentée sur la figure III.14 :

$$Mem_{max}(p) = \frac{\max(n_{alloc}(i))}{Mem_0} \quad (III.4)$$

Ces deux grandeurs sont moyennées sur 1000 pas de temps, correspondant à l'intervalle de solidification 230-330s. Elles sont représentées pour deux approches de gestion de la mémoire présentées plus haut : le tableau standard et le tableau en profil. Le cas idéal correspond à un partitionnement parfait des cellules entre les cœurs, et à aucune allocation inutile. Cette deuxième condition revient à avoir un taux de remplissage de 100%, tel celui qui serait obtenu avec un tableau creux. Cependant, le cas présent est trop gros pour être résolu avec la méthode du tableau creux, qui donne des temps de calcul irréalisables ici. La qualité du partitionnement est quant à elle observable pour  $p$  cœurs en comparant la mémoire utilisée en moyenne pour un cœur,  $Mem(p)$  (traits épais), et la mémoire utilisée par le cœur qui en demande le plus,  $Mem_{max}(p)$  (traits fins). Un partitionnement parfait voudrait dire que ces deux courbes soient quasiment confondues.



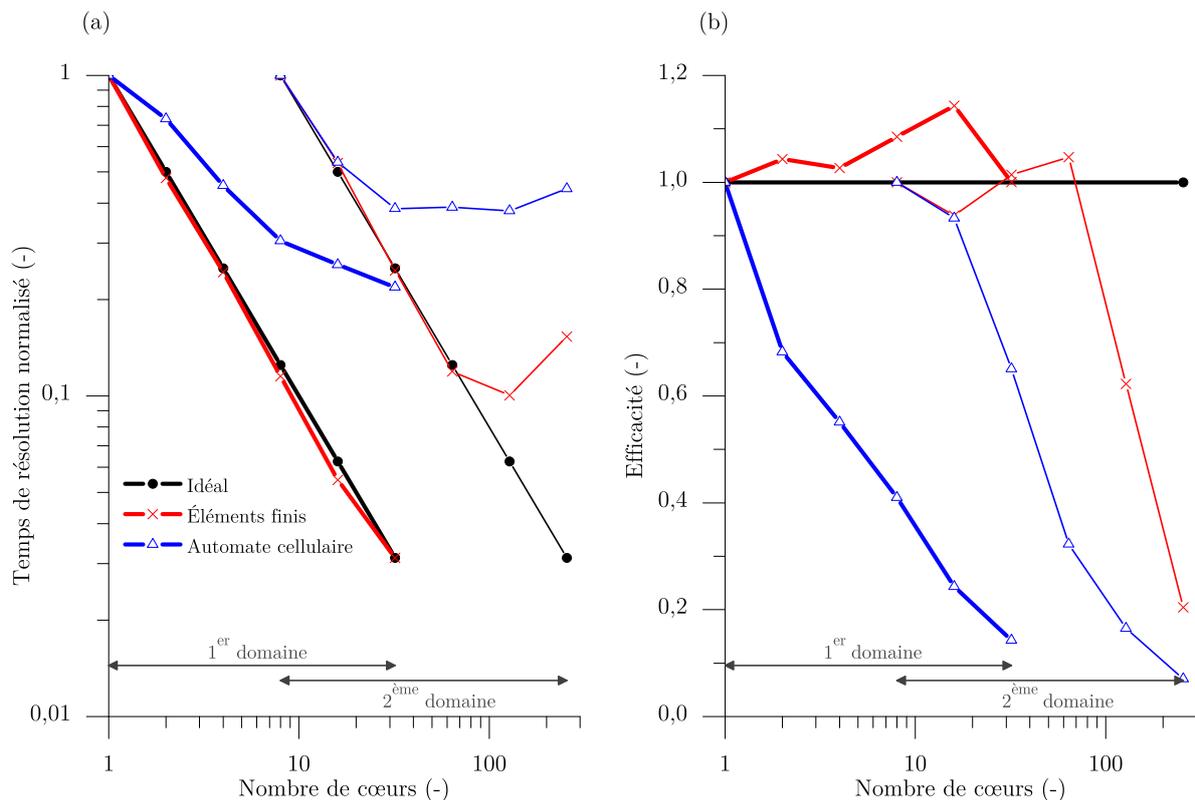
**FIGURE III.14** Utilisation mémoire pour les approches avec un tableau standard et un tableau en profil. Sont tracées la mémoire moyenne par cœur et la mémoire maximale entre tous les cœurs de calcul, ainsi que le comportement idéal. Les faibles performances du tableau standard n'ont pas permis de l'utiliser sur le deuxième domaine.

Concernant le tableau standard, l'utilisation mémoire sur un cœur est déjà 3,4 fois plus élevée que dans l'idéal, c'est-à-dire que le taux de remplissage est d'environ 30%. Quand

le nombre de cœurs de calcul augmente, l'utilisation mémoire moyenne par cœur diminue de façon erratique. Par contre, la mémoire maximum évolue peu, et reste supérieure à 1,0 (excepté sur 16 cœurs). Ceci signifie qu'il y a toujours au moins un cœur de calcul qui utilise plus de mémoire que la mémoire totale théoriquement nécessaire pour résoudre le problème sur un seul cœur. Cela constitue un problème important dans la mesure où augmenter le nombre de cœurs ne permet pas de diminuer la mémoire requise. La scalabilité de cette approche est donc très mauvaise. De plus, cela pourra avoir un impact sur le temps de résolution. Pour ces raisons, le tableau standard n'a pu être utilisé pour résoudre le problème avec les paramètres du deuxième domaine.

Concernant le tableau en profil, la mémoire utilisée sur un seul cœur est 1,5 fois plus élevée que dans l'idéal, donc un taux de remplissage de 66%. Plus important, le comportement global de l'évolution de la mémoire utilisée en fonction du nombre de processeurs est proche de l'idéal : à chaque fois que le nombre de cœurs est doublé, la mémoire moyenne par cœur est divisée par 1,78 (contre 2 dans l'idéal), et la mémoire maximum est divisée par 1,57. On trouve donc deux courbes linéaires en échelle log-log. Les courbes se superposent bien à l'intersection des deux domaines, on peut donc s'attendre à ce que ce comportement continue après 256 cœurs.

### Temps de résolution



**FIGURE III.15** (a) Temps de résolution normalisé et (b) efficacité parallèle par domaine, avec l'approche à deux partitions.

**Temps FE** La figure III.15 présente les temps de résolution et l'efficacité avec la gestion de la mémoire par le tableau en profil, le couplage itératif explicite et la méthode des deux

partitionnements. Les résolutions éléments finis et automate cellulaire sont distinguées et normalisées pour chaque domaine de mesure. Le comportement idéal est également reporté. La résolution éléments finis a par ailleurs été extensivement testée et optimisée [Bal12, Dig01], aussi on retrouve logiquement un comportement très proche de l'idéal, voire même d'hyper accélération, jusqu'à 64 cœurs. Au-delà, l'efficacité chute fortement, et la résolution FE est même plus lente sur 256 cœurs que sur 64. Cet effet peut provenir de deux causes : soit le problème à résoudre n'est pas assez important pour être partagé entre un tel nombre de cœurs (cause logicielle) ; soit la mesure elle-même est faussée (cause matérielle).

Le tableau III.10 donne le temps moyen de résolution des principales parties du modèle CAFE par pas de temps, sur les mêmes 1000 pas de temps que la figure III.15. La résolution de la méthode éléments finis est divisée en deux : l'assemblage des matrices et la résolution du système linéaire. Concernant ces deux parties, l'évolution des temps de résolution est quasiment linéaire en fonction du nombre de cœurs, jusqu'à 64 cœurs. Notons que les temps des deux domaines sont comparables : la taille de maille étant divisée par deux, le nombre de nœuds (donc d'inconnues) est multiplié par 8. Étant donné que le pas de temps est inchangé, on peut considérer que la complexité du problème FE est environ multipliée par 8. Au niveau de l'assemblage, on retrouve bien le même temps d'exécution sur un cœur pour le premier domaine et sur 8 cœurs pour le deuxième domaine. Par contre, la résolution du système linéaire est plus que doublée. En fait, cette résolution n'augmente pas linéairement en fonction du nombre d'inconnues, puisqu'il s'agit d'une méthode itérative, qui demande un plus grand nombre d'itérations pour converger quand le nombre de nœuds augmente.

Concernant le premier domaine, l'efficacité de la résolution du système linéaire est d'environ 1, sauf sur 16 cœurs où elle monte à 1,2, et sur 32 cœurs où elle est de 0,8 seulement. Une explication est que le problème est effectivement trop petit pour être partitionné sur un tel nombre de cœurs. Sur 16 cœurs, il est probable que le problème local résolu par chaque cœur soit assez petit pour bénéficier des effets de cache du microprocesseur, menant à l'hyper accélération observée. Sur 32 cœurs, le coût des communications devient plus important par rapport au coût de résolution, et l'efficacité chute. L'assemblage des matrices suit quant à lui une accélération linéaire en fonction du nombre de cœurs.

Cet effet est également observé sur le deuxième domaine, de façon plus marquée. Concernant la résolution du système linéaire, l'efficacité sur 64 cœurs est de 0,95, puis de 0,40 et 0,10 sur 128 et 256 cœurs, respectivement. Sur 64 cœurs, les effets de cache sont atteints, et au-delà, l'efficacité chute rapidement. Il s'agit ici d'un problème 3D, ce qui signifie que le nombre moyen de cœurs voisins ne se stabilise que vers 256 environ. Le régime stationnaire n'est donc pas atteint, et le nombre de cœurs voisins augmente avec le nombre de cœurs total. En conséquence, le coût des communications augmente également, et la chute d'efficacité est plus importante quand ces communications deviennent prépondérantes. Concernant l'assemblage des matrices, l'accélération est linéaire sauf pour 256 cœurs où l'efficacité est de 0,78.

En conclusion, les causes de la chute de l'efficacité FE sont logicielles. Les temps reportés dans le tableau III.10 sont moyennés par pas de temps, or, à chaque pas de temps, l'algorithme non linéaire de Newton-Raphson implique que l'assemblage et la résolution FE sont effectués plusieurs fois, soit environ 5 fois par pas de temps pour ce cas. Sur un grand nombre de cœurs, l'assemblage et la résolution FE sont donc très rapides, ce qui

<b>Domaine 1</b>						
Nombre de cœurs	1	2	4	8	16	32
Assemblage FE (s)	5,25	2,60	1,31	0,64	0,30	0,16
Système linéaire FE (s)	1,46	0,72	0,38	0,16	0,073	0,057
Résolution CA (s)	1,32	0,92	0,60	0,40	0,34	0,29
<b>Domaine 2</b>						
Nombre de cœurs	8	16	32	64	128	256
Assemblage FE (s)	5,11	2,42	1,14	0,57	0,31	0,20
Système linéaire FE (s)	3,55	2,20	0,99	0,47	0,55	1,12
Résolution CA (s)	2,80	1,50	1,07	1,08	1,06	1,06

**TABLE III.10** Temps moyen par macro pas de temps pour l’assemblage des matrices éléments finis, la résolution des systèmes linéaires et la résolution de l’algorithme automate cellulaire. Les valeurs sont moyennées sur 1000 pas de temps, et correspondent aux données de la figure III.15.

signifie bien que le problème local géré par chaque cœur est trop petit. Notons cependant que le cluster utilisé pour ces calculs<sup>1</sup> n’a pas permis, à cause de sa taille, de réserver exclusivement des nœuds de calcul pour les cas sur 128 et 256 cœurs. Des interférences avec d’autres calculs en cours ont donc pu fausser partiellement ces deux mesures. Il faudra à l’avenir revoir la définition des deux domaines à la hausse en termes de complexité, et utiliser un cluster plus conséquent pour ces mesures de temps de résolution. Gardons à l’esprit que les calculs sur 32 cœurs du premier domaine et sur 128 et 256 cœurs du second domaine ne sont pas représentatifs d’un calcul réel.

**Temps CA** La résolution automate cellulaire a quant à elle un comportement moins optimal. Sur le premier domaine, le temps de résolution diminue de façon monotone jusqu’à 32 cœurs, où la résolution n’est toutefois que 3,9 fois plus rapide qu’en séquentiel. L’efficacité est donc de 0,14, ce qui est loin de l’idéal. Pour le deuxième domaine et sur 16 cœurs, l’efficacité est aussi bonne que la partie FE (0,93), mais elle diminue très rapidement par la suite puisqu’à 256 cœurs, le temps de résolution CA est seulement 2,3 fois plus rapide que sur 8 cœurs, donc une efficacité de 0,07. À ce niveau, on ne peut pas dire que la scalabilité du code soit bonne, contrairement à l’étude précédente (section 3.1). En fait, on constate avec le tableau III.10 que le temps de résolution stagne au-dessus de 32 cœurs. Deux aspects influençant l’efficacité sont à considérer : l’équilibrage de la charge de calcul entre les cœurs, et les surcoûts liés aux communications, mais, on l’a vu avec l’étude sur les temps FE, les communications ne sont pas significatives pour les petits nombres de cœurs des deux domaines.

L’efficacité sur 16 cœurs pour le deuxième domaine laisse cependant penser que, là encore, une partie de la chute d’efficacité vient de la taille trop petite du problème à résoudre. Entre les deux domaines, la taille de cellule est divisée par deux (donc leur nombre multiplié par 8). De plus, même si le macro pas de temps est inchangé, le nombre de micro pas de temps est multiplié par deux. La complexité du problème CA est donc multipliée environ par 16. Or, le cas sur 16 cœurs du deuxième domaine est résolu en un temps équivalent au cas sur 1 cœur du premier domaine. De même, le cas sur 32

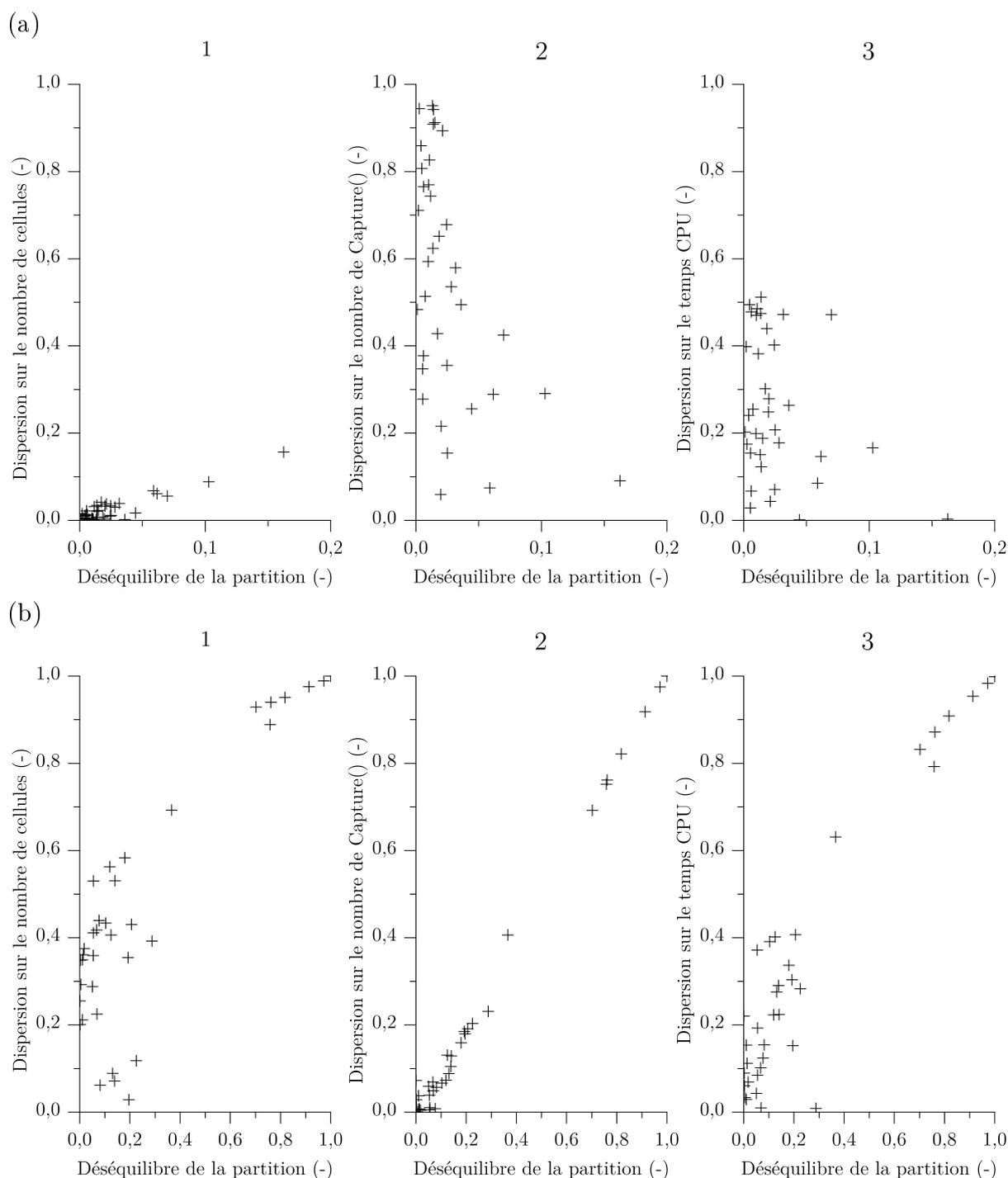
1. Il s’agit du cluster CEMEF-MINES ParisTech, totalisant à ce jour 1480 cœurs sur 159 nœuds.

cœurs du deuxième domaine est équivalent au cas sur 2 cœurs du premier domaine. Il semble donc qu'il soit difficile d'accélérer la résolution CA en augmentant le nombre de cœurs, mais qu'en revanche, pour un temps de calcul donné, la précision de la résolution puisse être augmentée en utilisant plus de cœurs. C'est d'ailleurs ce qui est généralement recherché par l'utilisateur, et qui correspond à l'approche de Gustafson [Gus88]. Des tests supplémentaires pour des nombres de cœurs plus importants mériteraient d'être menés, par exemple sur 256 cœurs avec une taille de cellule divisée par deux par rapport au deuxième domaine.

Concernant l'équilibrage de la charge, le partitionnement est également une source d'étude très riche. Nous avons supposé dans tout ce qui précède qu'un problème CA était équilibré si le nombre de cellules était le même sur tous les cœurs de calcul. Or, en réalité, chaque cellule a un coût qui lui est propre, et on pourrait en particulier distinguer cellules entièrement liquides, cellules avec enveloppe en train de croître, et cellules non évolutives (dont l'état est  $I_\nu = 2$ ). Sur la figure III.15, le cas sur deux cœurs est typique d'une mauvaise estimation des coûts : il s'agit en effet du cas où le partitionnement est le plus simple (et donc le meilleur), et où le nombre de cellules à l'interface est le plus réduit. Or l'efficacité n'est que de 0,68. La figure III.16 permet d'expliquer ce résultat. Il s'agit de la dispersion,  $1 - x_{\min}/x_{\max}$ , de plusieurs variables  $x$  en fonction du déséquilibre de la partition, qui est la dispersion sur le poids donné aux éléments et nœuds du maillage. Ces valeurs sont mesurées juste après chaque repartitionnement, soit tous les 50 pas de temps, sur l'intervalle 240-420 s de solidification. Le calcul est lancé sur deux cœurs, avec des paramètres numériques plus grossiers que le tableau III.9 :  $l_{FE} = 0,012$  m et  $l_{CA} = 2 \cdot 10^{-3}$  m. Enfin, la germination dans le volume a été désactivée, afin qu'elle n'influence pas le temps de résolution.

La figure III.16.a correspond à l'hypothèse qui est faite dans tout le reste de cette étude, à savoir que le poids de chaque élément dépend linéairement du nombre de cellules contenues dans cet élément. Logiquement, quand le déséquilibre de la partition est faible (c'est-à-dire que le poids est bien réparti), le nombre de cellules est également bien réparti (a.1). De plus, la dispersion sur le nombre de cellules est bien égale au déséquilibre de la partition. Par contre, le nombre d'appels à la fonction `Capture()`, qui teste si l'enveloppe octaédrique englobe une cellule voisine et qui calcule les rayons du nouvel octaèdre, est très déséquilibré (a.2) : cela est bien sûr dû au fait que l'on ne prend pas en compte le type de chaque cellule dans le calcul des poids. Or, cette fonction est très coûteuse, et c'est sans doute en partie pour cela qu'il n'y a pas de relation linéaire entre le déséquilibre de la partition et la dispersion sur le temps de calcul (a.3). Cette dispersion indique si la charge de calcul est bien répartie entre les cœurs. L'absence de relation, comme on le voit sur la figure III.16.a.3, signifie que le poids de chaque élément calculé pour le partitionnement ne correspond pas au coût réel en termes de temps de calcul. En conséquence, la bonne répartition de la charge de calcul n'est pas garantie, et l'efficacité chute très rapidement avec un grand nombre de cœurs.

La figure III.16.b reprend le même exemple, mais en calculant le poids uniquement à partir du nombre d'appels à la fonction `Capture()`. Le nombre de cellules est logiquement mal réparti (b.1), et le problème reste le même au niveau du temps de calcul (b.3), bien qu'une tendance se dessine pour les grands déséquilibres de partition. Le problème semble d'ailleurs plus difficile à partitionner, ce qui est logique puisque la zone de capture est plus restreinte que la zone contenant les cellules. Il apparaît donc absolument nécessaire, pour améliorer l'efficacité de la partie CA, de déterminer une fonction coût représentative



**FIGURE III.16** Dispersion  $(1 - x_{\min}/x_{\max})$  du nombre de cellules, du nombre de tentatives de capture (i.e. nombre d'appels à la fonction Capture), et du temps de calcul en fonction du déséquilibre en poids de la partition, sur deux cœurs. Le poids pour le partitionnement est attribué (a) aux cellules et (b) à la fonction de capture.

du problème, et qui permette de donner un poids juste à chaque élément du maillage. Cependant, ce travail est loin d'être simple puisque l'algorithme comprend plusieurs aspects, principalement la germination, la croissance, la capture et la rétrocession. Le coût de chaque aspect est inconnu, et est susceptible de varier selon les cas. Le poids d'un

élément devra donc *a priori* dépendre du nombre de cellules, du nombre de sites de germination, et du nombre d'appels à la fonction Capture(). Par rapport à la méthode des éléments finis, le coût de calcul de cette dernière est beaucoup plus prédictif. En effet, d'après la définition de la méthode, le nombre de lignes et de colonnes des matrices locales du système linéaire, et donc le nombre d'opérations à effectuer, dépendent directement du nombre de nœuds et d'éléments locaux. En conséquence, la fonction coût est simple, et si le nombre de nœuds et d'éléments est bien réparti, l'efficacité parallèle sera bonne (à condition que le problème soit assez conséquent pour négliger le coût des communications, ce qui n'était clairement pas le cas sur 128 et 256 cœurs).

Notons que, d'autre part, l'allocation dynamique présentée ci-dessus permet de réduire fortement le nombre de cellules considérées à un instant  $t$ , en limitant au maximum le nombre d'éléments activés. Or ce sont ces éléments qui doivent être répartis entre les cœurs, donc plus le domaine de calcul se restreint plus le partitionnement est difficile. Ceci est de plus en plus vrai à mesure que le nombre de cœurs augmente. Il sera donc peut-être nécessaire à l'avenir de partitionner le problème automate cellulaire de façon complètement indépendante du problème éléments finis. La grille de cellules pourrait par exemple être découpée en plusieurs domaines, qui ne suivent pas forcément la topologie du maillage. La difficulté essentielle serait alors de pouvoir interpoler facilement et rapidement les grandeurs calculées aux nœuds vers les cellules, et inversement. Pour finir, bien que cela ait été partiellement fait dans ce travail, une analyse plus fine des temps d'exécution de chaque partie du code pourrait être effectuée.

Pour ce qui est de l'implémentation actuelle, le calcul parallèle permet de mener à bien des simulations avec un grand nombre de cellules, puisque la mémoire est relativement bien partagée, par contre le temps de calcul reste le facteur limitant. D'une manière générale, l'optimisation des algorithmes (en particulier l'allocation dynamique) permet de réduire grandement le temps de calcul, mais en contrepartie rend la parallélisation du code plus complexe et moins efficace. Il aurait été possible d'obtenir de très bonnes efficacités parallèles en ne faisant aucune allocation dynamique par exemple, mais le temps de calcul absolu aurait peut-être été plus grand. Il faut donc garder à l'esprit que l'efficacité présentée ici est calculée par rapport à un algorithme séquentiel très optimisé.

## 4 Conclusion sur le modèle implémenté

La confrontation des prédictions du modèle CAFE avec des résultats analytiques et expérimentaux a permis de valider l'implémentation parallèle 3D de l'algorithme automate cellulaire-éléments finis. Une première comparaison avec une enveloppe analytique dans un gradient de température [Gan96] a montré que la procédure de croissance et de capture au niveau des cellules permettait, notamment grâce à la méthode dite d'octaèdres décentrés, de s'affranchir de l'anisotropie induite par la grille régulière et de pouvoir considérer des angles d'Euler quelconques.

Une deuxième comparaison avec l'expérience d'Esaka [Gan94] a été réalisée pour valider la formation des joints de grains lors de la compétition de croissance. Il a été notamment mis en avant que la taille de cellules se doit d'être assez petite pour pouvoir représenter cette compétition, typiquement de l'ordre de quelques  $\lambda_2$ .

Le nouvel algorithme de couplage a ensuite été comparé avec une solution 1D donnée par un modèle de suivi de front [Gan00b]. Cette comparaison a montré l'intérêt de suivre le développement des enveloppes de grain de plusieurs structures de solidification, dendri-

tique et eutectique en l'occurrence. La nouvelle approche consistant à calculer le chemin de solidification aux nœuds du maillage plutôt qu'aux cellules a permis de retrouver les résultats précédents de la littérature. Additionnellement, les algorithmes de couplage itératif complet et explicite ont été testés. Le couplage itératif explicite se révèle être d'un grand intérêt, de par le faible surcoût en termes de temps de calcul et de mémoire qu'il engendre. L'accord avec le suivi de front est, avec ce couplage, excellent, et permet de réduire très fortement les oscillations numériques lors du passage des fronts de structures.

Le couplage aux nœuds a été également validé sur une expérience de transition colonnaire équiaxe [Gan00a] modélisée en 3D. Il s'agit de la première application du modèle CAFE en trois dimensions couplé en énergie. Ce calcul a été rendu possible grâce *i-* à l'implémentation parallèle, *ii-* à l'optimisation du calcul automate cellulaire, notamment à travers l'allocation dynamique, et *iii-* à la diminution de la charge de calcul liée au modèle de microségrégation, qui est ici résolu aux nœuds. Ce modèle 3D a permis de calculer une structure de grains et une transition colonnaire-équiaxe proches de l'expérience, et des évolutions de température reproduisant bien les phénomènes de recalescence.

Le couplage avec des modèles de microségrégation plus avancés a été validé par comparaison avec les résultats de modèles 1D axisymétriques, microscopique indirect [Gan08] et macroscopique indirect [Her06]. Les cinétiques de croissance dendritique et eutectique, et le couplage avec la diffusion de soluté dans le solide et le liquide avec les équations de Wang-Beckermann ont permis de retrouver les résultats de la littérature.

Enfin, l'implémentation parallèle a été testée. Sur un faible nombre de cœurs (<64), les diverses optimisations ont permis de réduire notablement le temps de calcul. La scalabilité du code en termes de mémoire est bonne : elle a été validée jusqu'à 256 cœurs. Par contre, l'efficacité en termes de temps de calcul pour des problèmes 3D chute assez rapidement, et l'augmentation du nombre de cœurs ne permet d'accélérer que très peu le problème à partir de 32 cœurs. En revanche, à temps de calcul fixe, l'augmentation du nombre de cœurs permet de résoudre des problèmes plus complexes. Ce comportement reste à confirmer avec des mesures plus représentatives, sur des cas plus importants. Il faudra à l'avenir améliorer et optimiser de façon plus fine les communications et les algorithmes, et mettre au point une fonction coût représentative du temps de calcul.



# Chapitre IV

## Applications

*Ce chapitre regroupe trois applications du modèle CAFE : premièrement, sur une goutte atomisée d'Al-10%*pds* Cu où les résultats sont comparés avec un modèle champ de phase. Deuxièmement, le modèle est utilisé pour modéliser un benchmark expérimental de macroségrégation. Enfin, le calcul parallèle est mis en application sur un lingot de silicium industriel.*

### Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Comparaison avec un modèle Champ de Phase . . . . .</b>	<b>123</b>
1.1	Définition du cas-test . . . . .	123
1.2	Convergence . . . . .	124
1.3	Microstructure . . . . .	128
1.4	Calibrage du modèle CAFE . . . . .	130
1.5	Comparaisons supplémentaires . . . . .	140
1.6	Conclusion et domaines de validité . . . . .	146
<b>2</b>	<b>Benchmark expérimental de macroségrégation . . . . .</b>	<b>148</b>
2.1	Cas expérimental . . . . .	148
2.2	Mise en données . . . . .	149
2.3	Comparaison . . . . .	154
2.4	Conclusion de l'étude . . . . .	163
<b>3</b>	<b>Application au silicium photovoltaïque . . . . .</b>	<b>165</b>
3.1	Procédé EMIX . . . . .	165
3.2	Modélisation . . . . .	167
3.3	Résultats . . . . .	171

---



# 1 Comparaison avec un modèle Champ de Phase

L'objectif est ici de comparer le modèle CAFE avec le modèle champ de phase implémenté dans Micress<sup>®</sup> [Eik06, Eik09] sur un cas commun de solidification dendritique équiaxe. Le but est d'observer le comportement du modèle CAFE à une petite échelle, de valider ou infirmer certaines de ses hypothèses de construction, mais également de voir comment un modèle direct microscopique peut permettre de calibrer un modèle mésoscopique. Ce genre de comparaison d'une échelle à l'autre est rare dans la littérature, bien qu'en théorie ces passages semblent naturels (voir p.ex. le tableau I.2). On peut noter le passage de modèles atomiques (Monte-Carlo, dynamique moléculaire) à des modèles continus (champ de phase) [Hoy03], mais il s'agit d'utiliser l'énergie de surface et le coefficient de mobilité pour des modèles à l'échelle supérieure, et non de comparer directement les prédictions de deux modèles sur un même cas. Mosbah *et al.* ont, comme cela a été présenté section III.2.4, comparé le modèle CAFE (macroscopique direct) au modèle d'Heringer *et al.* (macroscopique indirect) sur une goutte atomisée de 125  $\mu\text{m}$  de rayon [Mos10, Her06]. Le modèle CAFE a également déjà été comparé à des modèles microscopiques indirects, par exemple dans la section III.2.3 de ce document.

Par contre, le modèle CAFE n'a jamais fait l'objet d'une comparaison avec un modèle microscopique direct (tel le champ de phase). Les comparaisons automate cellulaire-champ de phase de la littérature concernent uniquement le modèle automate cellulaire microscopique, dont un exemple est donné à la figure I.9 [Yin11, Cho12].

## 1.1 Définition du cas-test

Le problème principal de cette comparaison est la définition d'un cas-test, qui soit suffisamment petit pour être géré par le champ de phase, mais suffisamment grand pour que les hypothèses du modèle CAFE (prise de moyenne, etc.) aient un sens.

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Énergie de surface	$\sigma_0$	$2,45 \cdot 10^{-1}$	$\text{J m}^{-2}$
Coefficient d'anisotropie statique	$\varepsilon^{\sigma}$	0,288	-
Coefficient d'anisotropie cinétique	$\varepsilon^M$	0,10	-
Diffusion de Cu dans l'Al liquide	$D^l$	$4,37 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Diffusion de Cu dans l'Al solide	$D^s$	0,0	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Surfusion de germination	$\Delta T_{nucl}$	10,0	K
<i>Conditions initiales / aux limites :</i>			
Composition nominale en Cu	$w_0$	10,0	%pds
Température initiale	$T_0$	890	K
Flux de chaleur	$J_{vol}$	$-1,91 \cdot 10^9$	$\text{J m}^{-3} \text{s}^{-1}$

**TABLE IV.1** Paramètres pour le cas-test commun champ de phase-CAFE. Les autres données physiques sont les mêmes que dans le tableau III.6.

Le cas-test défini ici se base sur une expérience d'atomisation d'une goutte d'Al-10%pds Cu [Her06], déjà présentée plus haut (section III.2.4). Pour simplifier le problème, un seul grain est supposé germer au centre du domaine, ce qui permet de réduire l'étude à un huitième de sphère par symétrie. La taille expérimentale des gouttes, 250  $\mu\text{m}$  de diamètre, est relativement grande pour un calcul champ de phase 3D. Aussi, deux

cas seront étudiés : une goutte de 39  $\mu\text{m}$  de rayon, et une goutte de 125  $\mu\text{m}$  de rayon. Bien que le cas 3D soit le plus intéressant, des calculs 2D seront également menés. La vitesse de refroidissement a cependant été réduite par rapport aux  $-2000 \text{ K s}^{-1}$  expérimentaux à  $-637 \text{ K s}^{-1}$ . Le problème est qu'une forte vitesse de refroidissement entraîne une microstructure très fine, et en particulier un rayon de pointe de dendrite très petit. Or, les prédictions du champ de phase ne sont quantitatives que si la taille de la grille est suffisamment petite pour avoir une bonne définition de la courbure, qui est maximale au niveau de la pointe.

Les paramètres du cas-test sont donnés dans le tableau IV.1. Les propriétés thermodynamiques ont été simplifiées pour faciliter la comparaison. Notons que le modèle champ de phase implémenté dans Micress<sup>®</sup> est isotherme, la conductivité thermique n'est donc utilisée que dans le modèle CAFE. Il sera montré plus loin que la résolution de la diffusion de la chaleur n'a aucune influence sur les résultats, ce qui est logique étant donné la taille très réduite du domaine. Le flux de chaleur imposé  $J_{vol}$  est volumique, c'est-à-dire qu'il apparaît directement dans le second terme de l'équation II.1. La convection étant négligée, l'équation de conservation de l'énergie devient dans ce cas :

$$\rho_0 \frac{\partial \langle H \rangle}{\partial t} - \nabla \cdot (\langle \kappa \rangle \nabla T) = J_{vol} \quad (\text{IV.1})$$

L'énergie de surface et les coefficients d'anisotropie sont quant à eux utilisés uniquement dans le modèle champ de phase, comme expliqué ci-dessous.

## 1.2 Convergence

Ici sont identifiés les paramètres numériques susceptibles d'influencer les résultats des deux modèles. Une étude de convergence sur ces paramètres est effectuée.

### Modèle Champ de phase

Le modèle champ de phase peut se résumer, pour un alliage binaire et deux phases et moyennant certaines hypothèses [Eik09], à l'équation :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -M^\phi [b\Delta G - \sigma^r K^\phi] \quad (\text{IV.2})$$

$b$  et  $K^\phi$  étant définis par la forme de  $\phi$  à l'interface. Dans cette équation se trouvent la mobilité du champ de phase,  $M^\phi$ , et la rigidité de l'interface,  $\sigma^r$ . L'anisotropie de ces deux grandeurs est traitée comme suit :

$$M^\phi = M_0^\phi a^M(\vec{n}) \quad (\text{IV.3})$$

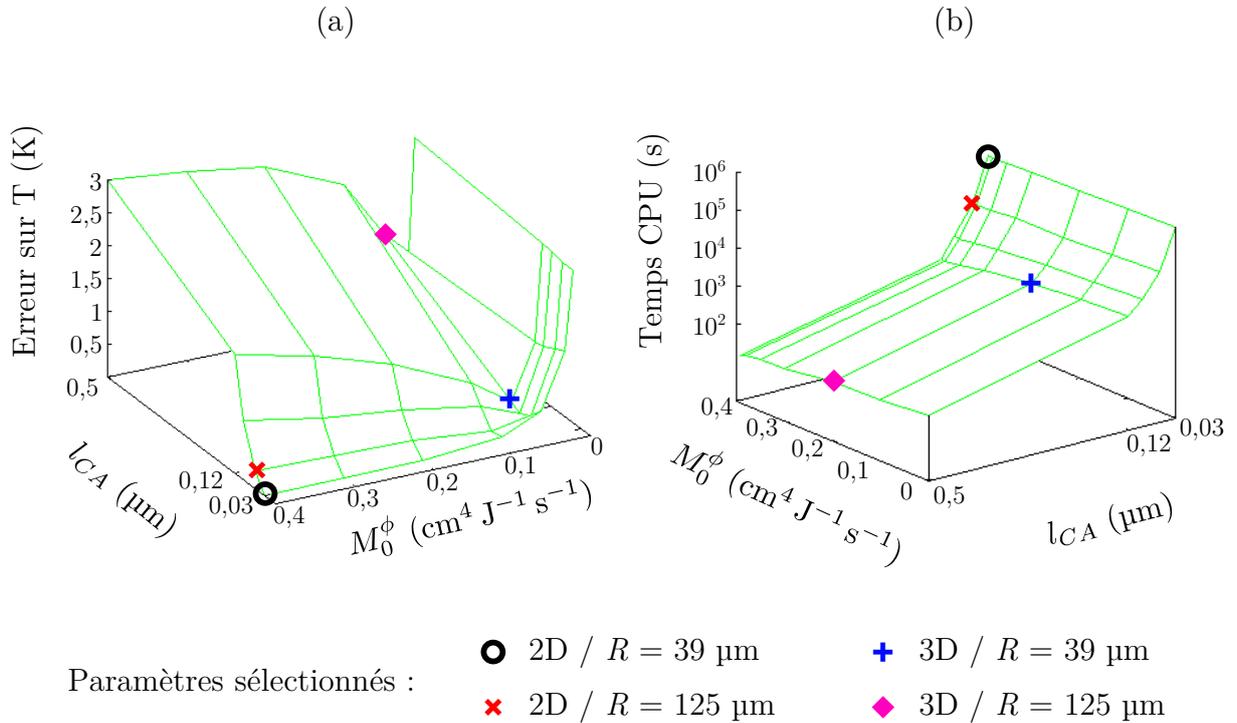
$$\sigma^r = \sigma_0 a^{\sigma^r}(\vec{n}) \quad (\text{IV.4})$$

où  $\sigma_0$  est donné dans le tableau IV.1, et  $a^M$  et  $a^{\sigma^r}$  les fonctions d'anisotropie définies pour un matériau cubique par [Nap02, Eik06] :

$$a^M(\vec{n}) = 1 + \varepsilon^M (4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) - 3) \quad (\text{IV.5})$$

$$a^{\sigma^r}(\vec{n}) = 1 + \varepsilon^{\sigma^r}(4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) - 3) \quad (\text{IV.6})$$

avec  $\varepsilon^M$  et  $\varepsilon^{\sigma^r}$  les coefficients d'anisotropie donnés dans le tableau IV.1. Le coefficient  $M_0^\phi$  peut en théorie être relié au coefficient de mobilité, mais les contraintes numériques font qu'il est souvent impossible de considérer une valeur assez grande pour être physique. Aussi, une étude sur  $M_0^\phi$  est nécessaire pour atteindre une convergence. La taille des cellules de la grille champ de phase, notée  $l_{CA}$  par analogie avec la grille automate cellulaire, doit également être considérée. En effet, le modèle champ de phase introduit une interface diffuse, dont l'épaisseur est notée  $W_{PF}$ . Or, pour résoudre correctement la courbure de l'interface, cette épaisseur doit être relativement petite par rapport à une longueur dite capillaire. Le point critique est évidemment la pointe de dendrite, où la courbure est maximale. Des analyses empiriques ont montré que la condition  $W_{PF} < 0,2r$  permet généralement d'avoir une définition suffisante de la pointe [Ech04]. Dans toutes les simulations qui suivent, la taille de l'interface a été fixée à 5 cellules, i.e.  $W_{PF} = 5l_{CA}$ . Étudier la convergence sur  $l_{CA}$  revient donc directement à étudier la convergence sur  $W_{PF}$ . Enfin, le pas de temps étant adaptatif, son influence ne sera pas étudiée ici.



**FIGURE IV.1** (a) Erreur moyenne sur la température par rapport au cas de référence pour 0,1 s de solidification en fonction du coefficient de mobilité,  $M_0^\phi$ , et de la taille de la grille,  $l_{CA}$ , et (b) temps de résolution correspondant. Le cas de référence correspond à la plus grande mobilité et la plus petite taille de grille. Les autres paramètres sont donnés dans la table IV.2. Les paramètres numériques sélectionnés pour les différentes simulations champ de phase sont indiqués sur le graphique, bien que cette analyse de convergence n'ait été réalisée que pour le cas 2D /  $R = 39 \mu\text{m}$ .

Étant donnée la définition du cas-test, il n'y a pas de régime stationnaire atteint au cours de la solidification, en particulier à cause du fait que le domaine soit de dimension

finie. Il n'est donc pas possible de comparer les résultats champ de phase à une solution analytique, par exemple. Dans cette étude, il a été choisi de présenter systématiquement l'influence des différents paramètres numériques et des propriétés physiques sur la température : en effet, son évolution découle de quasiment tous les phénomènes (vitesse de croissance, ségrégation, etc.) et permet de les résumer de manière concise. Aussi, pour étudier la convergence des résultats, le cas avec les paramètres numériques les plus fins (taille de grille petite,  $l_{CA} = 0,03 \mu\text{m}$ , et mobilité élevée,  $M_0^\phi = 0,4 \text{ cm}^4 \text{ J}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) est considéré convergé. Pour les autres jeux de paramètres, l'erreur sur la température prédite est calculée pour la 0,1 première seconde de solidification, correspondant à la propagation dendritique dans la totalité du domaine, et moyennée sur un échantillon de 100 points. Vu les temps de calcul, cette étude n'a pu être faite qu'en 2D, sur la plus petite goutte ( $R = 39 \mu\text{m}$ ).

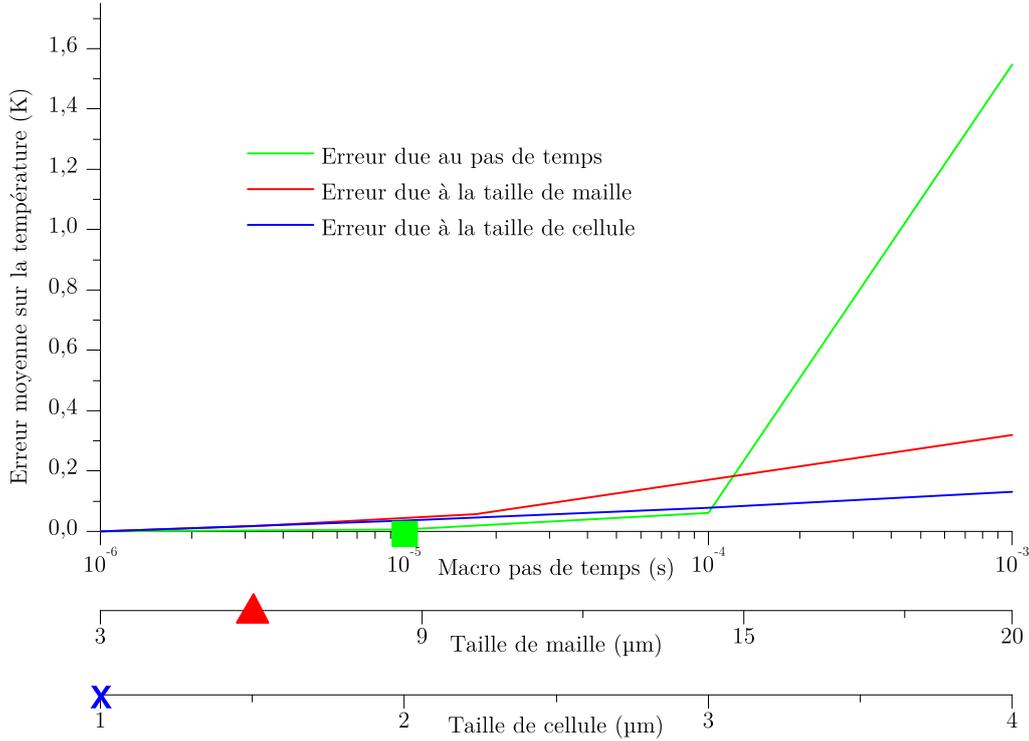
Les résultats sont reportés sur la figure IV.1, ainsi que les temps de calcul correspondants. On peut constater que, pour une taille de cellule assez petite, il y a bien convergence quand  $M_0^\phi$  augmente. Par contre, si  $l_{CA}$  est trop petit, on observe une divergence. De façon analogue, en fixant  $M_0^\phi$  assez grand, une convergence apparaît en fonction de  $l_{CA}$ . Il est aussi intéressant de noter que l'on observe des minimums locaux avec une erreur moyenne relativement faible, malgré des paramètres numériques grossiers (par exemple pour toute la série  $M_0^\phi = 0,05 \text{ cm}^4 \text{ J}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ). Au niveau des temps de calcul, il est clair que la taille de la grille  $l_{CA}$  a la plus grande influence, et sera le facteur limitant dans les simulations 3D. Malheureusement, comme discuté juste au-dessus, une taille de cellule trop grossière ne permet pas d'atteindre une convergence sur  $M_0^\phi$ . Il sera donc nécessaire d'utiliser les minimums locaux. Les paramètres sélectionnés pour les différentes simulations (2D / 3D et 39 / 125  $\mu\text{m}$ ) sont identifiés sur le graphe et reportés dans le tableau IV.2. Notons que cette figure de convergence est susceptible de changer pour les autres simulations, cependant le temps de calcul, surtout en 3D, est prohibitif. Nous reviendrons plus loin sur la convergence des simulations 3D par rapport au rayon de la pointe, section 1.4.

## Modèle CAFE

**Paramètres numériques** Comme cela a été introduit auparavant, les trois paramètres numériques clés du modèle CAFE pouvant avoir une influence sur les résultats sont le pas de temps macroscopique,  $\Delta t$ , la taille de cellule,  $l_{CA}$ , et la taille de maille,  $l_{FE}$ . De façon analogue au champ de phase, la convergence vis-à-vis de ces trois paramètres a été étudiée par rapport aux résultats obtenus avec des paramètres fins ( $\Delta t$ ,  $l_{CA}$  et  $l_{FE}$  petits).

Les résultats sont donnés à la figure IV.2. L'étude est menée sur le cas 3D, pour  $R = 125 \mu\text{m}$ . Pour chaque paramètre étudié, les autres paramètres sont fixés aux valeurs données dans le tableau IV.2, qui correspondent aux valeurs sélectionnées par la suite pour les simulations. Ces valeurs sont indiquées sur la figure IV.2 par les symboles vert, rouge et bleu. Puis, pour le paramètre étudié, la plus petite valeur est considérée comme convergée. L'erreur moyenne sur la température est calculée comme pour le champ de phase. Par rapport à l'étude de convergence du champ de phase, on constate que globalement cette erreur est beaucoup plus faible dans les gammes de paramètres choisies. Le pas de temps a la plus grande influence sur les résultats, comme cela a déjà été constaté au chapitre précédent.

Pour le cas  $R = 39 \mu\text{m}$ , le même type d'étude a été mené. Vu les temps de calcul très réduits par rapport au champ de phase, il est possible avec le modèle CAFE d'atteindre une convergence sur tous les cas, même en 3D. Avec le modèle champ de phase, seul le



**FIGURE IV.2** Erreur moyenne sur la température prédite par le modèle CAFE par rapport aux cas de référence pour 0,1s de solidification, en fonction du pas de temps, de la taille de maille et de la taille de cellule. Les cas de références correspondent aux plus petites valeurs pour le paramètre étudié, les autres paramètres étant fixés à ceux donnés dans le tableau IV.2 pour le cas 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  et mis en évidence par des symboles.

cas 2D /  $R = 39 \mu\text{m}$  a pu donner lieu à une étude de convergence.

**Diffusion thermique** Le modèle champ de phase utilisé dans cette comparaison est isotherme, contrairement au modèle CAFE où la résolution de la conservation de l'énergie considère la diffusion thermique. Afin de vérifier que cette différence n'a pas d'influence sur les résultats, l'algorithme de résolution CAFE a été partiellement modifié. Dans un premier temps, la variation d'enthalpie est calculée à chaque nœud du maillage avec  $\rho_0 \partial \langle H \rangle / \partial t = J_{vol}$ . À partir de cette enthalpie et des fractions de zones données par l'automate cellulaire, les fractions de phases et la température sont calculées à chaque nœud, avec l'équation II.48. À ce stade, la température peut varier d'un point à l'autre du domaine. Puis, la température "moyenne",  $\bar{T}$ , est calculée par intégration :

$$\bar{T} = \frac{\int T dV}{V} \quad (\text{IV.7})$$

avec  $V$  volume total du domaine. Cette température est ensuite imposée en chaque nœud du maillage. Enfin, l'enthalpie est recalculée pour satisfaire cette température et les fractions de phases présentes :  $\langle H \rangle = C_p \bar{T} + g^{LIQ} L$ . Cette procédure revient à imposer un coefficient de diffusion thermique infini.

Avec cette approche, la différence moyenne sur la température prédite sur 0,1s de solidification est, par rapport au cas standard utilisant les coefficients de diffusions donnés dans le tableau III.6, de 0,06 K sur la goutte 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$ . Cette très faible différence

vient du fait que le domaine est petit par rapport aux longueurs de diffusion thermique, et qu'en conséquence, l'approximation d'un domaine isotherme est justifiée. Par la suite, les calculs CAFE seront effectués avec la résolution classique de la conservation de l'énergie (équ. IV.1).

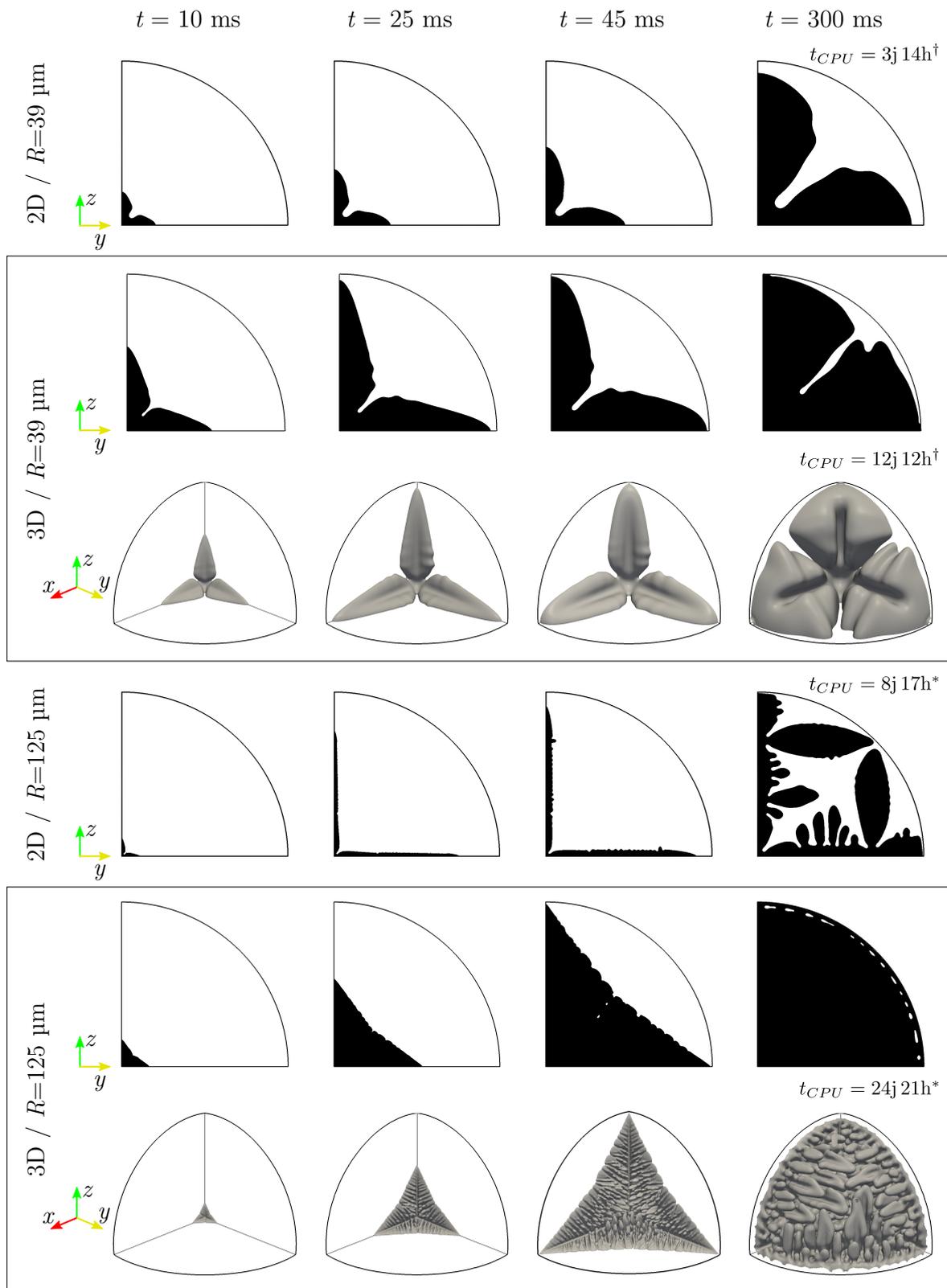
Paramètre	Symbole	CAFE	PF	Unité
2D / $R = 39 \mu\text{m}$				
taille de cellule	$l_{CA}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-8}$	m
taille de maille	$l_{FE}$	$1,8 \cdot 10^{-6}$	-	m
mobilité	$M_0^\phi$	-	$4 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^4 \text{J}^{-1} \text{s}^{-1}$
2D / $R = 125 \mu\text{m}$				
taille de cellule	$l_{CA}$	$10^{-6}$	$6 \cdot 10^{-8}$	m
taille de maille	$l_{FE}$	$5,8 \cdot 10^{-6}$	-	m
mobilité	$M_0^\phi$	-	$4 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^4 \text{J}^{-1} \text{s}^{-1}$
3D / $R = 39 \mu\text{m}$				
taille de cellule	$l_{CA}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-7}$	m
taille de maille	$l_{FE}$	$1,8 \cdot 10^{-6}$	-	m
mobilité	$M_0^\phi$	-	$5 \cdot 10^{-10}$	$\text{m}^4 \text{J}^{-1} \text{s}^{-1}$
3D / $R = 125 \mu\text{m}$				
taille de cellule	$l_{CA}$	$10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-7}$	m
taille de maille	$l_{FE}$	$5,8 \cdot 10^{-6}$	-	m
mobilité	$M_0^\phi$	-	$5 \cdot 10^{-10}$	$\text{m}^4 \text{J}^{-1} \text{s}^{-1}$
Pas de temps	$\Delta t$	$10^{-5}$	$10^{-10} - 0,1$	s
Épaisseur de l'interface	$W_{PF}$	<i>variable</i>	$5l_{CA}$	m
Espacement primaire	$\lambda_1$	<i>cf. discussion</i>	-	m
Espacement secondaire				
$R = 39 \mu\text{m}$	$\lambda_2$	$5,5 \cdot 10^{-6}$	-	m
$R = 125 \mu\text{m}$	$\lambda_2$	$10^{-5}$	-	m

**TABLE IV.2** Paramètres numériques sélectionnés pour les modèles CAFE (correspondant pour le cas 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  aux grands symboles bleu, rouge et vert de la figure IV.2) et champ de phase (correspondant aux symboles noir, rouge, bleu et magenta de la figure IV.1).

### 1.3 Microstructure

La figure IV.3 représente l'évolution de la microstructure telle que prédite par le modèle champ de phase, en deux et trois dimensions, pour les gouttes de 39 et 125  $\mu\text{m}$  de rayon, à différents temps de solidification. Pour les cas 3D, une coupe est également donnée selon le plan (Oyz). Sur les images 2D et les coupes, la zone noire représente le solide et la zone blanche le liquide. Sur les images 3D, la surface grise représente l'interface solide-liquide.

Constatons en premier lieu un changement notable entre les simulations 2D et 3D, qui s'explique par une différence entre la cinétique de croissance et les flux de diffusion. Le modèle CAFE se base quant à lui sur une cinétique de pointe 3D (même en deux dimensions), il sera donc peu représentatif de comparer les simulations 2D. Les résultats champ de phase de la figure IV.3 montrent également une structure plus ramifiée sur la



Cas lancés sur  $^\dagger$  1 cœur et  $^*$  6 cœurs

**FIGURE IV.3** Microstructure prédite par le modèle champ de phase pour les deux tailles de domaine. Des coupes sont données selon le plan (Oyz) pour les simulations 3D. La zone noire correspond au solide.

goutte de 125  $\mu\text{m}$  que sur la goutte de 39  $\mu\text{m}$ . Nous reviendrons plus tard sur les raisons physiques de cette différence, mais deux choses sont à noter ici : d'une part, le fait d'avoir une taille de cellule plus grande ou/et une mobilité plus faible introduit un bruit numérique qui facilite les branchements dendritiques. Il serait donc intéressant d'étudier le nombre de bras secondaires en fonction de  $l_{CA}$  et  $M_0^\phi$ , sur le cas 2D /  $R = 125 \mu\text{m}$  par exemple.

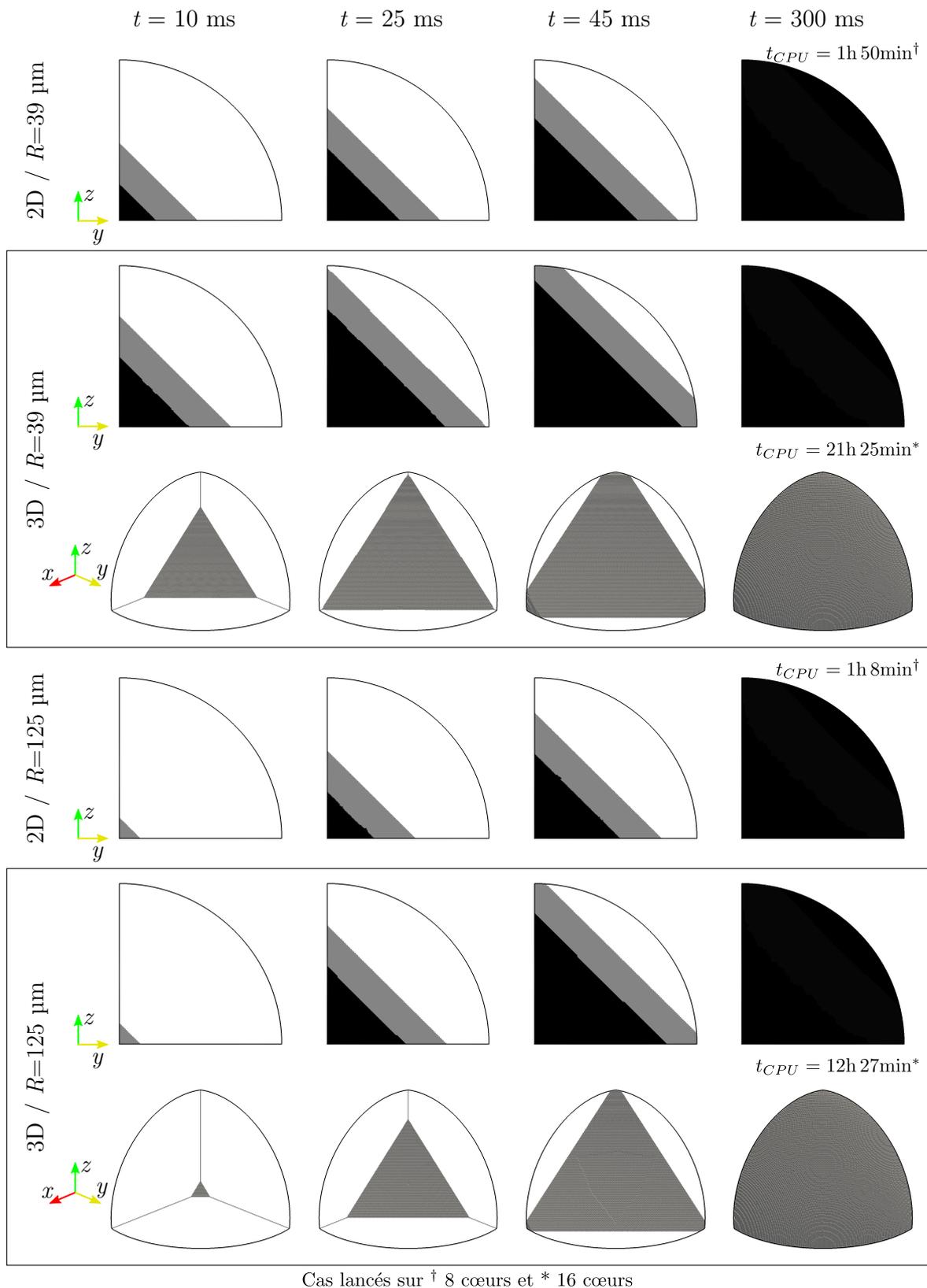
D'autre part, sur toutes les simulations, la solidification peut être séparée en trois étapes : d'abord, les bras primaires croissent très rapidement pour atteindre le bord du domaine, où ils sont stoppés. En même temps, l'interface se déstabilise et des bras secondaires apparaissent. Ensuite, ces bras secondaires croissent et certains arrivent à sortir de la couche de soluté et à se développer au détriment des autres. Enfin, quand les bras secondaires arrivent à proximité d'autres bras, ils stoppent leur croissance et une solidification par maturation commence.

La figure IV.4 montre l'enveloppe de grain prédite par le modèle CAFE, pour les mêmes cas et aux mêmes temps que le champ de phase. Les valeurs de  $\lambda_1$  et  $w^{l\infty}$  seront discutées plus loin. Sur les vues 2D, les zones grises correspondent à l'interface de la zone pâteuse, c'est-à-dire où  $0 < g^{(1)*} < 1$ . Les zones noires correspondent à une zone pâteuse sans liquide libre,  $g^{(1)*} = 1$ . Enfin les zones blanches correspondent au liquide,  $g^{(1)*} = 0$ . On visualise ici concrètement la frontière diffuse et son épaisseur  $W_{CA}$ . Sur les vues 3D, la surface grise correspond à l'interface  $F_0^{(1)}$ , c'est-à-dire la limite où  $g^{(1)*} = 0$ . La comparaison avec la microstructure du champ de phase peut se faire en relevant la position des pointes des bras primaires.

Les temps de calcul sont également indiqués sur les figures IV.3 et IV.4. Bien que les nombres de cœurs ne soient pas les mêmes, et que le matériel informatique soit différent, le modèle CAFE est entre 15 et 200 fois plus rapide que le modèle champ de phase. Dans ces conditions, on comprend aisément les compromis à faire lors du choix des paramètres du champ de phase,  $l_{CA}$  et  $M_0^\phi$ . Notons que les paramètres numériques choisis pour les simulations CAFE sont fins par rapport à l'erreur induite. D'après la figure IV.2, une taille de cellule deux fois plus grande (2  $\mu\text{m}$ ) et un pas de temps dix fois plus important ( $10^{-4}$  s) seraient acceptables si on compare l'erreur estimée ( $< 0,1$  K) aux erreurs sur les simulations PF (de l'ordre de 1 K, voir fig. IV.1). Avec ces paramètres, la solidification de la goutte 3D de 125  $\mu\text{m}$  de rayon a pris 48 min sur 16 cœurs avec le modèle CAFE, soit 280 fois plus vite que le champ de phase à nombre de cœurs équivalent. L'erreur par rapport aux paramètres sélectionnés dans le tableau IV.2 est en moyenne / au maximum de 0,03 / 0,10 K sur la température, de 0,015 / 0,05 %pds sur la composition moyenne du solide, et de  $10^{-4}$  /  $3 \cdot 10^{-4}$  sur la fraction de solide. Ces erreurs sont bien plus faibles que l'incertitude sur les calculs champ de phase.

## 1.4 Calibrage du modèle CAFE

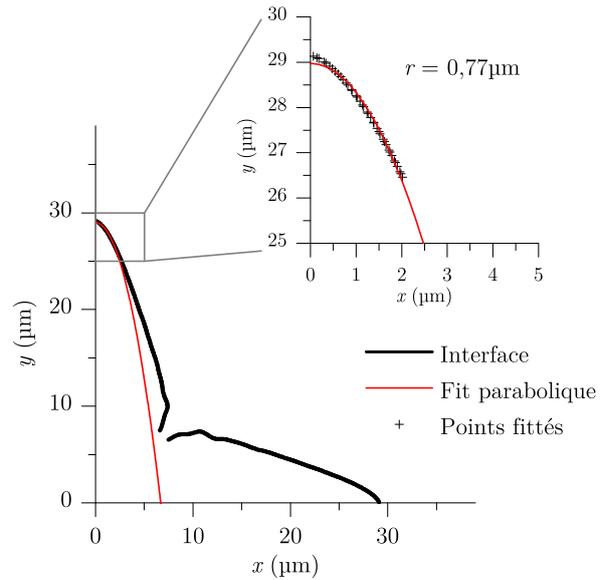
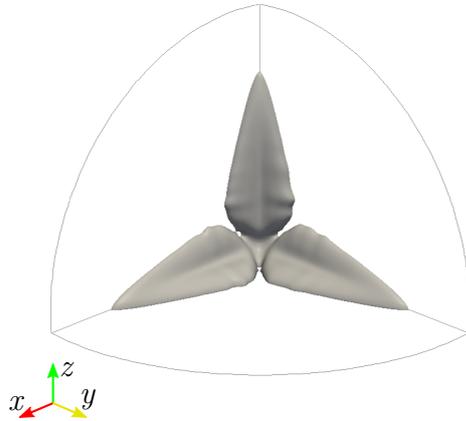
Le but de cette comparaison est bien sûr de valider le modèle CAFE, mais également de voir comment les modèles aux échelles inférieures peuvent aider à calibrer les paramètres physiques ou numériques. Les résultats sont essentiellement donnés pour le domaine 3D de rayon 125  $\mu\text{m}$ , pour la raison qu'il s'agit du cas où les approximations du modèle CAFE sont susceptibles d'être les plus justifiées.



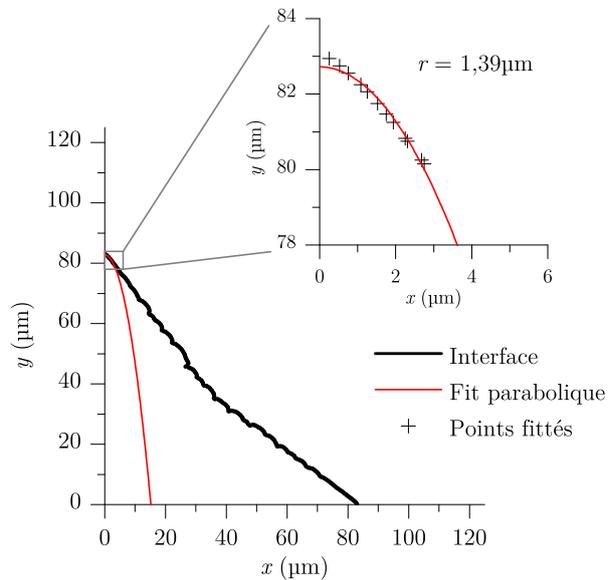
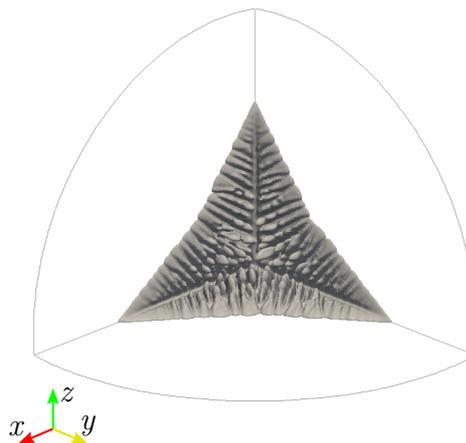
Cas lancés sur  $^\dagger$  8 cœurs et  $^*$  16 cœurs

**FIGURE IV.4** Enveloppe de grain prédite par le modèle CAFE, avec  $\lambda_1 = R/2$  et  $w^{l\infty} = w_0$ . La zone noire correspond à la zone complètement pâteuse ( $g^{(1)} = 1$ ) et la zone grise à la frontière ( $0 < g^{(1)} < 1$ ).

(a)



(b)



**FIGURE IV.5** Méthode de détermination du rayon de la pointe de dendrite primaire à partir des résultats champ de phase 3D, pour (a) le domaine de  $39\ \mu\text{m}$  à  $t = 15\ \text{ms}$  et (b) le domaine de  $125\ \mu\text{m}$  à  $t = 30\ \text{ms}$ .

### Influence de $\sigma^*$

La constante de stabilité  $\sigma^*$  est un paramètre important du modèle CAFE puisqu'elle détermine la cinétique de croissance dendritique. La valeur standard utilisée dans la littérature a déjà fait l'objet de nombreuses discussions. Le modèle champ de phase apporte ici des indications intéressantes puisqu'il est possible d'extraire  $\sigma^*$  des prédictions de la microstructure. Pour cela, la vitesse, le rayon et la composition doivent être mesurés au niveau de la pointe du bras primaire. Composition et vitesse sont directement données. Par contre, la détermination du rayon n'est pas directe. L'approche utilisée ici est un ajustement de la forme de l'interface au niveau de la pointe, de manière analogue à la

littérature [Ste08]. La courbure est considérée comme étant la même dans toutes les directions au niveau de la pointe. La détermination de la courbure 3D revient donc à calculer la courbure sur un plan de coupe 2D quelconque, passant par la pointe et contenant la direction [100]. Le plan Oxy est choisi ici, qui correspond au plan cristallographique (110) du grain. Puis, les points situés à l'interface solide-liquide sont identifiés. Celle-ci est définie par  $\phi = 0,5$ . Pour chaque rangée de cellules ( $y$  constant), la position de l'interface est déterminée, de sorte que  $\phi = 0,5$  à cette position. La valeur de  $\phi$  aux cellules n'étant jamais exactement égale à 0,5, une interpolation linéaire entre le centre des cellules est effectuée pour trouver la position précise de l'interface. La même procédure est appliquée pour chaque colonne de cellules ( $x$  constant). Un exemple de l'ensemble des points trouvés de cette manière est reporté sur la figure IV.5 pour le domaine de (a) 39  $\mu\text{m}$  et (b) 125  $\mu\text{m}$  de rayon. La vue 3D de l'interface est donnée à gauche, tandis que l'ensemble des points à l'interface sur le plan Oxy est donné en noir à droite.

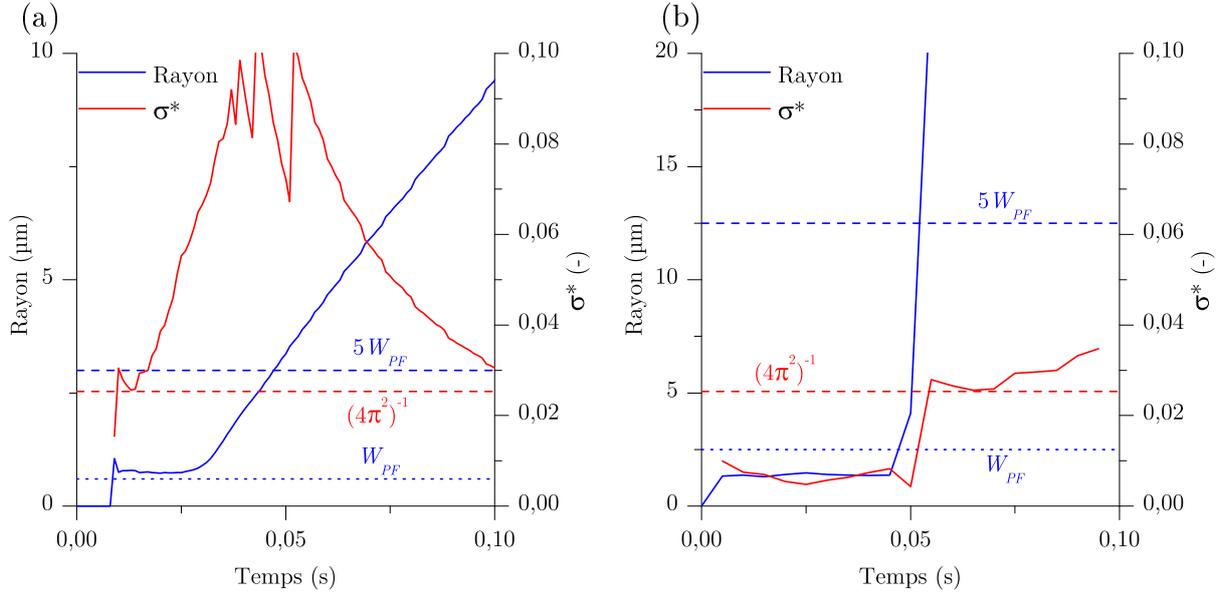
Un algorithme est ensuite mis en place pour ajuster une parabole à la forme de la pointe de dendrite. Cette méthode requiert, de même que les précédentes approches de la littérature [Ste08], de tronquer l'interface à une certaine distance de la pointe. Un sous-ensemble de points est sélectionné parmi les points de l'interface identifiés, de telle sorte que  $y > y_{\text{max}} - 3r_0$ , où  $y_{\text{max}}$  est l'ordonnée de la pointe de dendrite, et  $r_0 = 5 \mu\text{m}$  une estimation du rayon maximal. Ceci permet de se restreindre grossièrement à la partie de l'interface à ajuster. Puis, ce sous-ensemble de points est approché par une parabole d'équation :

$$y = c_0 + c_1 x^2 \quad (\text{IV.8})$$

où les coefficients  $c_0$  et  $c_1$  sont déterminés par la méthode des moindres carrés. Le rayon de la pointe correspondant est alors déduit :  $r_1 = -1/2c_1$ . Puis, ce rayon est utilisé pour affiner le sous-ensemble de points sélectionnés, de telle sorte que  $y > y_{\text{max}} - kr_1$ , où  $k$  est initialisé à 2. Ce nouveau sous-ensemble est à nouveau fitté par une parabole, et la somme des carrés des résidus,  $\chi^2$ , est évalué par la méthode des moindres carrés. Un critère sur  $\chi^2$  est instauré, de manière à ce que si  $\chi^2 > \varepsilon$ , la valeur de  $k$  est diminuée, un nouveau sous-ensemble de points déterminé, et un nouveau fit effectué. Quand la condition  $\chi^2 < \varepsilon$  est atteinte, l'ajustement du sous-ensemble de points par une parabole est considéré correct, et le rayon de la pointe de dendrite calculé. La valeur de  $\varepsilon$  a été ici arbitrairement fixée à 0,5. La figure IV.5 présente le dernier sous-ensemble de points sélectionnés pour l'ajustement, ainsi que la valeur du rayon calculé et la courbe parabolique correspondante. On constate premièrement que le fit sur le domaine de 39  $\mu\text{m}$  de rayon (a) est assez représentatif de la forme de la pointe. Par contre, sur le domaine de 125  $\mu\text{m}$  de rayon (b), le nombre de points sélectionnés est très faible, ce qui indique qu'il est ici difficile d'approcher la pointe de dendrite par une parabole. On peut imputer cela à la taille de cellule, qui est trop grossière pour avoir une bonne définition de la pointe. La méthode d'ajustement présente également une incertitude numérique due à la sélection des points à ajuster, qu'il est difficile d'évaluer correctement. Sur le cas de la figure IV.5.a, la portion d'interface sélectionnée est égale à environ deux fois  $r_0$  (soit les valeurs initiales de  $k$  et  $r_1$ ). L'incertitude sur  $r$  obtenue en faisant varier  $k$  de 1 à 3 est d'environ  $\pm 15\%$ .

Les rayons calculés sur la figure IV.5 sont respectivement 0,77 et 1,39  $\mu\text{m}$  pour les domaines de 39 et 125  $\mu\text{m}$ , aux temps 15 et 30 ms, respectivement. Comme on le voit sur la vue 3D, ces rayons sont calculés au moment de la croissance initiale des bras primaires, c'est-à-dire quand les rayons sont *a priori* les plus petits. Or, la taille de cellule pour

les deux domaines est respectivement de 0,12 et 0,5  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à des tailles d'interface de 0,6 et 2,5  $\mu\text{m}$ . On est ici loin de la valeur empirique de convergence donnée plus haut, qui voudrait que  $W_{PF} < 0,2r$ , et donc que l'interface ait une épaisseur inférieure à 0,12 et 0,278  $\mu\text{m}$  pour les domaines de 39 et 125  $\mu\text{m}$  de rayon respectivement, soit avec 5 cellules dans l'interface une taille de cellule de 0,024 et 0,056  $\mu\text{m}$ , respectivement. Malheureusement, même en 2D, ces échelles sont difficilement atteignables avec les moyens de calcul actuels.

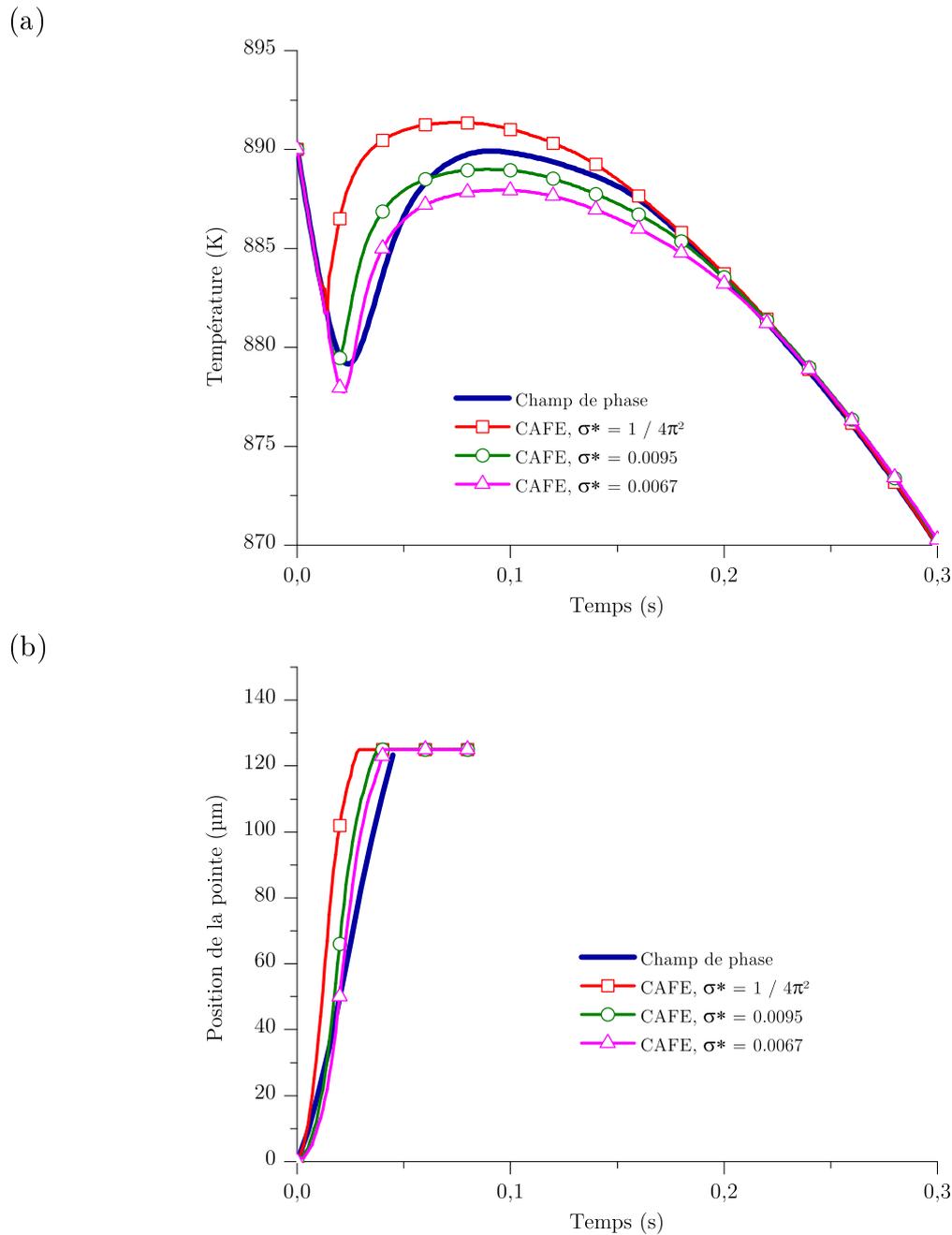


**FIGURE IV.6** Évolution du rayon de la pointe et de  $\sigma^*$  d'après les prédictions champ de phase 3D, pour (a) la goutte de 39  $\mu\text{m}$  de rayon et (b) la goutte de 125  $\mu\text{m}$  de rayon.

Il faut néanmoins remarquer que l'exemple de la figure IV.5 est donné à des temps où le rayon est petit et la vitesse élevée. La figure IV.6 montre pour les deux domaines 3D l'évolution du rayon de la pointe et de  $\sigma^*$  en fonction du temps, calculé d'après  $r$ ,  $v$ ,  $w^{l/s/l}$  donnés par le champ de phase et l'équation II.34. L'épaisseur de l'interface,  $W_{PF}$ , est tracée, ainsi que la limite  $5W_{PF}$ . Il est clair que la condition  $W_{PF} < 0,2r$  n'est pas respectée jusqu'à 0,05 s environ, qui correspond au moment où la pointe primaire atteint le bord du domaine et où son rayon augmente rapidement. Dans toute la phase de croissance initiale, on ne peut donc pas présumer du caractère quantitatif de ces résultats.

Concernant  $\sigma^*$ , la valeur prédite est non constante et s'accorde peu avec la valeur théorique de  $(4\pi)^{-1}$ . Bien que des observations similaires aient été faites dans la littérature [Mul11], deux autres problèmes majeurs se posent ici dans la détermination de  $\sigma^*$ . Premièrement, les résultats (rayon, vitesse, etc.) n'étant pas quantitatif, la valeur de  $\sigma^*$  calculée à partir de ces résultats ne peut être quantitative. Deuxièmement, on se place dans un cas de solidification rapide ( $-637 \text{ K s}^{-1}$ ), peu approprié au modèle de croissance qui suppose un régime stationnaire. La valeur de  $\sigma^*$  calculée ici n'a donc pas vraiment de sens physique, et doit être vue comme une variable d'ajustement servant à retrouver les résultats (non convergés) du champ de phase.

La figure IV.7 montre les prédictions CAFE comparées au champ de phase pour le domaine 3D le plus grand ( $R = 125 \mu\text{m}$ ), en fonction de  $\sigma^*$ . On constate que  $\sigma^*$  influence surtout la surfusion (ou le temps) à laquelle la recalescence commence. La forme de la courbe après cet instant est quasiment la même quel que soit  $\sigma^*$ . La valeur standard donne

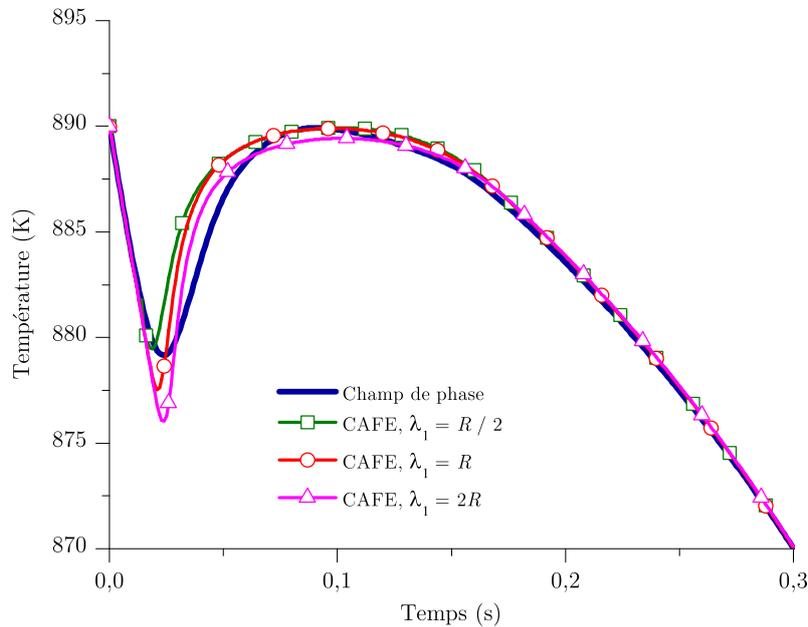


**FIGURE IV.7** Évolution sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  de (a) la température et (b) la position de la pointe primaire selon l'axe des  $x$  telles que prédites par le champ de phase et le modèle CAFE pour différentes valeurs de  $\sigma^*$ , avec  $\lambda_1 = R/2$  et  $w^{l\infty} = \langle w \rangle$ .

une recalescence et une croissance beaucoup trop rapide, la surfusion prédite est de 2,6 K plus faible pour le modèle CAFE. Le meilleur accord est obtenu pour  $\sigma^* = 0,0095$ , ce qui s'approche de la valeur moyenne mesurée sur la courbe IV.6.b. C'est donc cette valeur qui sera utilisée dans la suite de l'étude pour le domaine de  $125 \mu\text{m}$ . On l'a vu, le caractère quantitatif des résultats champ de phase ne peut être assuré avec certitude, et l'ajustement de  $\sigma^*$  n'est *a priori* nécessaire qu'à cause de l'erreur commise sur le champ de phase. Ceci devra faire l'objet d'analyses futures plus détaillées. C'est notamment pour cette raison que dans toutes les autres applications, la valeur standard  $(4\pi^2)^{-1}$  sera utilisée.

### Influence de $\lambda_1$

L'espaceur dendritique primaire est utilisé dans le modèle CAFE à deux niveaux : *i*- pour calculer la fraction d'enveloppe, ce qui est décrit dans II.3.3, et *ii*- pour calculer les surfaces d'échanges dans les équations de Wang-Beckermann. Dans le cas présenté ici,  $\lambda_1$  ne peut être rigoureusement défini puisqu'un seul grain équiaxe croît. On pourrait assimiler l'interaction avec les bords du domaine comme celle prenant place avec un autre grain, et il vient alors  $\lambda_1 = 2R$ . En réalité, comme  $\lambda_1/2$  correspond également au maximum de croissance des branches secondaires (et tertiaires) dans le modèle CAFE, et que les branchements sont possibles instantanément dès la capture d'une cellule, le  $\lambda_1$  numérique ne correspond ici pas exactement au  $\lambda_1$  "physique". Il est clair que d'après les prédictions du champ de phase, les branches secondaires ne peuvent se développer que d'une grandeur comprise entre environ  $R/2$  et  $R/4$ .



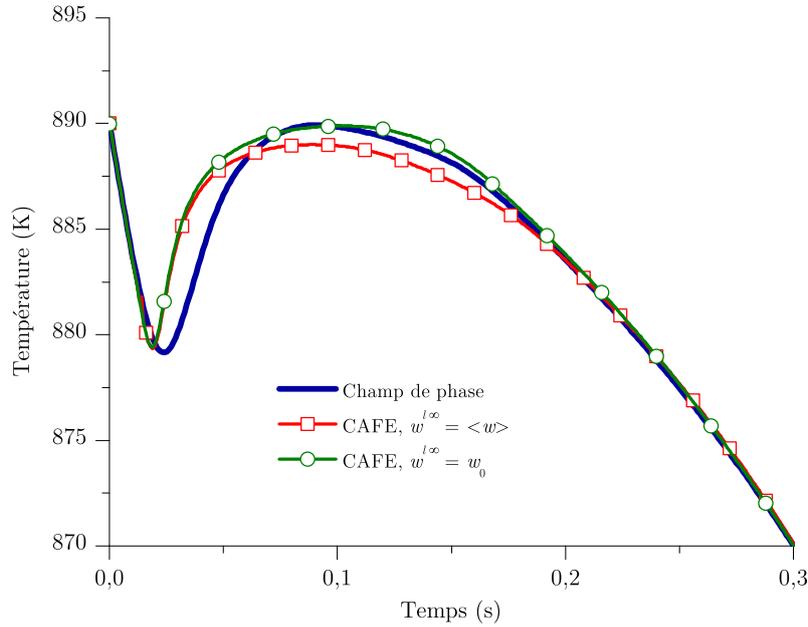
**FIGURE IV.8** Évolution de la température sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  telle que prédite par le champ de phase et le modèle CAFE pour différentes valeurs de  $\lambda_1$ , avec  $w^{l\infty} = w_0$ .

La figure IV.8 présente l'influence de  $\lambda_1$  sur les prédictions CAFE. Un grand  $\lambda_1$  signifie une épaisseur de la frontière liquide libre-zone pâteuse,  $W_{CA}$ , plus grande. En conséquence, dans la première partie de la solidification, la fraction de zone pâteuse (1) sur tout le domaine est moins importante, ainsi que la fraction de solide, ce qui se traduit sur la courbe IV.8 par une recalescence prenant place plus tard dans le temps.

Un meilleur accord avec le champ de phase est obtenu pour  $\lambda_1 = R/2$ , ce qui est logique vis-à-vis de la discussion ci-dessus. La valeur de  $\lambda_1$  a déjà été identifiée comme étant critique pour les résultats [Mos10], mais son influence n'a pu être comparée qu'à d'autres modèles moyens. L'intérêt ici est de pouvoir relier  $\lambda_1$  à la microstructure du champ de phase. On peut cependant imaginer que sa valeur soit assez difficile à calibrer pour des cas importants, où  $\lambda_1$  varie certainement d'un point à l'autre du lingot.

### Influence de $w^{l\infty}$

Un problème récurrent dans l'implémentation de la cinétique de croissance de type Ivantsov est la composition dans le liquide loin de l'interface,  $w^{l\infty}$ . Cette dernière correspond à la composition "vue" par la pointe de dendrite lors de son développement, et définit la sursaturation locale par l'équation II.27. Dans les modèles de champ de phase mésoscopique, la composition  $w^{l\infty}$  est prise à une distance fixée de l'interface. Dans le modèle CAFE, la composition moyenne au centre de la cellule,  $\langle w \rangle$ , est généralement utilisée, mais cette hypothèse a déjà fait l'objet de discussions par le passé [Mos10]. En particulier, des tests ont été menés en prenant la composition moyenne sur le liquide extradendritique,  $\langle w^{l_0} \rangle^{l_0}$ . Dans cette étude, nous nous restreindrons aux deux cas limites qui sont la composition moyenne,  $\langle w \rangle$ , et la composition nominale de l'alliage,  $w_0$ .



**FIGURE IV.9** Évolution de la température sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  telle que prédite par le champ de phase et le modèle CAFE pour différentes valeurs de  $w^{l\infty}$ , avec  $\lambda_1 = R/2$ .

La figure IV.9 donne l'évolution de la température selon ces deux hypothèses. On constate que le choix de  $w^{l\infty}$  n'a pas d'influence sur la première partie de la courbe (et notamment la surfusion maximale), mais change notablement l'évolution de  $T$  par la suite. Si nous prenons pour critère la température maximale sur la courbe, le meilleur accord est ici obtenu avec  $w^{l\infty} = w_0$ , qui donne une recalescence plus importante.

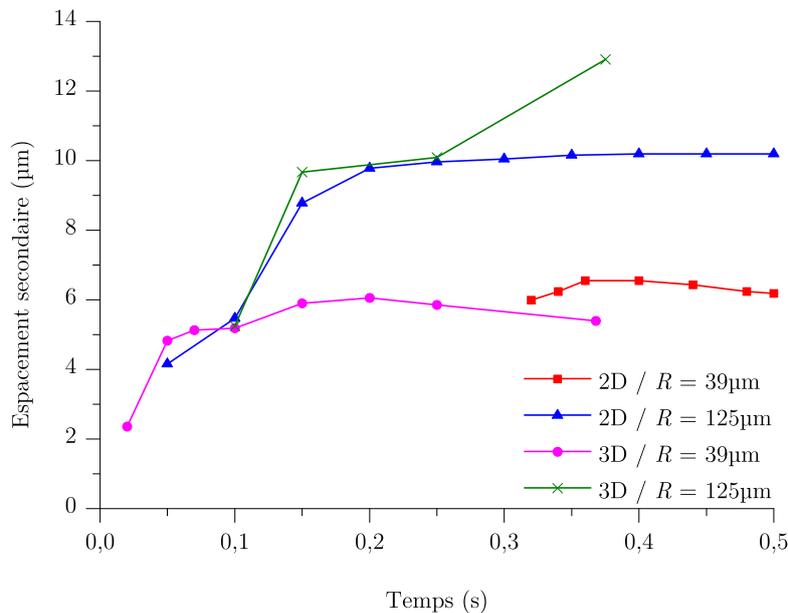
Si le choix de  $w^{l\infty}$  n'influence pas la surfusion et la recalescence initiale, c'est que la croissance de la pointe primaire n'est quasiment pas affectée par ce choix : en fait, à cause de la frontière diffuse, la fraction solide au niveau de la pointe est très faible, donc la composition est très proche de la composition nominale. Par contre, dans l'épaisseur de la frontière,  $\langle w \rangle$  varie fortement. La cinétique calculée en prenant  $w^{l\infty} = w_0$  ne sera pas influencée par cette ségrégation, tandis que  $w^{l\infty} = \langle w \rangle$  entraînera un ralentissement de la croissance des pointes dans l'épaisseur de l'enveloppe, à cause de l'accumulation de soluté dans le liquide. L'augmentation de la fraction solide sera logiquement plus lente et la recalescence moindre. Le choix de prendre la composition moyenne  $\langle w \rangle$  est physiquement

plus justifié pour tenir compte d'un enrichissement du liquide devant les pointes, mais on constate clairement que l'accord avec le champ de phase est moins bon ici. La théorie nécessite en fait l'utilisation du gradient de soluté à la pointe, grandeur qui ne peut être extraite du calcul CAFE. Il est difficile de conclure sur ce point, notamment à cause de l'échelle qui est très différente des échelles de calcul habituelles du modèle CAFE : avec des tailles de cellule de  $100\ \mu\text{m}$ , ce qui constitue normalement une limite basse, il suffirait d'une dizaine de cellules pour englober toute la goutte ! La composition moyenne  $\langle w \rangle$  au niveau d'une cellule serait alors bien sûr proche de la composition nominale de l'alliage.

D'autres tests mériteraient ici d'être menés, en particulier en considérant la composition moyenne sur le liquide extradendritique, mais il sera de toute manière difficile de transposer ces résultats à l'échelle normalement utilisée dans les simulations CAFE, c'est-à-dire à l'échelle de la structure des grains d'un lingot.

### Influence de $\lambda_2$

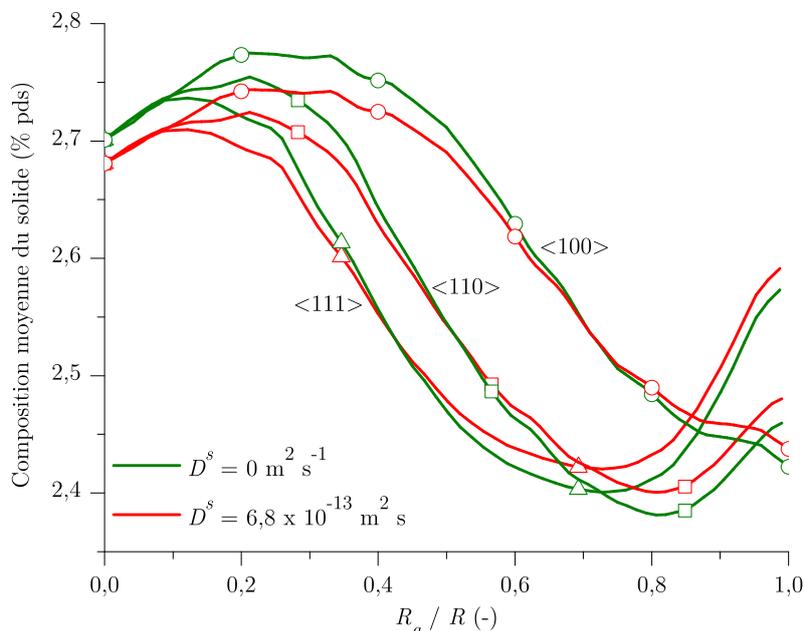
Dans les résultats précédents, la diffusion dans le solide est ignorée. Par contre, dans le cas où les équations de Wang-Beckermann sont résolues avec de la diffusion à l'état solide ( $D^s \neq 0$ ), l'espacement interdendritique secondaire  $\lambda_2$  doit être explicitement spécifié pour calculer la surface d'échange  $s_1/l_1$  (équ. II.69) et la longueur de diffusion (équ. II.70). Le modèle champ de phase peut donner de précieuses informations à ce niveau, puisqu'aucune hypothèse n'est faite dans ce modèle concernant  $\lambda_2$ .



**FIGURE IV.10** Espacement dendritique secondaire  $\lambda_2$  moyen prédit par les simulations champ de phase.

La figure IV.10 présente l'évolution de  $\lambda_2$  au cours des simulations. Ce sont des moyennes obtenues par analyse d'image des résultats champ de phase : pour les domaines 2D, il s'agit simplement d'une moyenne à différents temps sur les distances entre le centre des bras secondaires. Pour les domaines 3D, deux mesures ont été recoupées : d'une part, la même méthodologie qu'en 2D est utilisée sur les plans  $\{100\}$ . D'autre part, des coupes parallèles aux plans  $\{100\}$  ont été analysées : le centre de chaque bras est identifié, et

la distance minimale avec les autres centres calculée. On observe sur la figure IV.10 une rapide augmentation systématique de  $\lambda_2$ , avant une stabilisation. L'augmentation correspond à la sélection initiale des bras secondaires. Ici, on trouve  $\lambda_2 = 5,5 \cdot 10^{-6}$  m pour le domaine de 39  $\mu\text{m}$ , et  $10^{-5}$  m pour le domaine de 125  $\mu\text{m}$  (tableau IV.2).



**FIGURE IV.11** Composition moyenne du solide sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  prédite par le modèle CAFE le long des directions  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ , au temps  $t = 0,3$  s, en fonction de la distance au centre du domaine normalisée,  $R_a/R$ , avec et sans diffusion à l'état solide. Dans le cas avec diffusion, l'espacement interdendritique secondaire est fixé à  $10^{-5}$  m.

La figure IV.11 montre un exemple de résultats pour le modèle CAFE avec et sans diffusion dans le solide, pour le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  et au temps  $t = 0,3$  s. La composition moyenne du solide,  $\langle w^{s1} \rangle^{s1}$ , est tracée selon les directions (100), (110) et (111). Il est d'ailleurs intéressant de noter que le premier solide formé au centre du domaine ( $R_a/R$  proche de 0) a une composition plus élevée que le solide formé à l'extérieur de la goutte ( $R_a/R = 0,7$  par exemple). Ceci est contraire à l'équilibre thermodynamique, et s'explique par la surfusion de germination et la recalescence, qui font que le solide se forme à une température plus basse au centre qu'à l'extérieur.

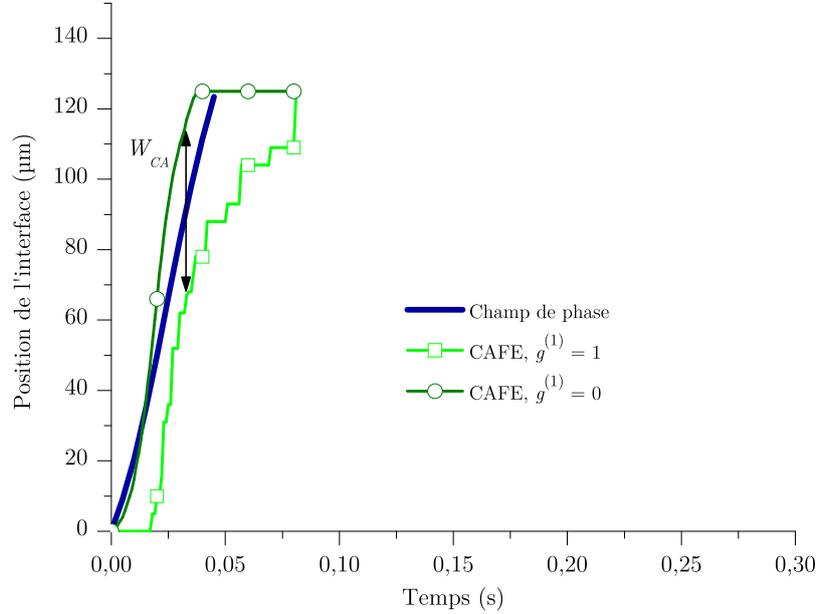
Concernant la diffusion dans le solide, son rôle est bien mis en évidence par la figure IV.11, mais a une influence très limitée sur les autres grandeurs (température, composition moyenne, etc.). La longueur de diffusion à l'interface  $s_1/l_1$  est, d'après l'équation II.70, d'environ 0,86  $\mu\text{m}$ . Ceci correspond à un nombre de Fourier  $Fo^s$  de 0,25, ce qui ne permet normalement pas de négliger la diffusion dans le solide. Cependant, l'intervalle de solidification étudié ici est restreint (notamment en termes d'intervalle de température), ce qui a pour effet que, même avec  $D^s = 0$ , la variation de composition moyenne du solide est faible dans la goutte.

L'analyse des prédictions champ de phase permet donc de déterminer la valeur de  $\lambda_2$  pour les modèles opérant à une échelle supérieure. Il serait par la suite intéressant d'introduire une variation de  $\lambda_2$  dans le modèle CAFE en fonction de la fraction solide par exemple, afin de prendre mieux en compte la maturation des bras.

## 1.5 Comparaisons supplémentaires

Pour les comparaisons ci-dessous,  $\lambda_1 = R/2$  et la composition loin de l'interface a été fixée à  $w_0$ .

### Position de l'interface



**FIGURE IV.12** Position de l'interface de la zone pâteuse selon l'axe  $x$ , sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  telle que prédite par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$  et  $\lambda_1 = R/2$ .

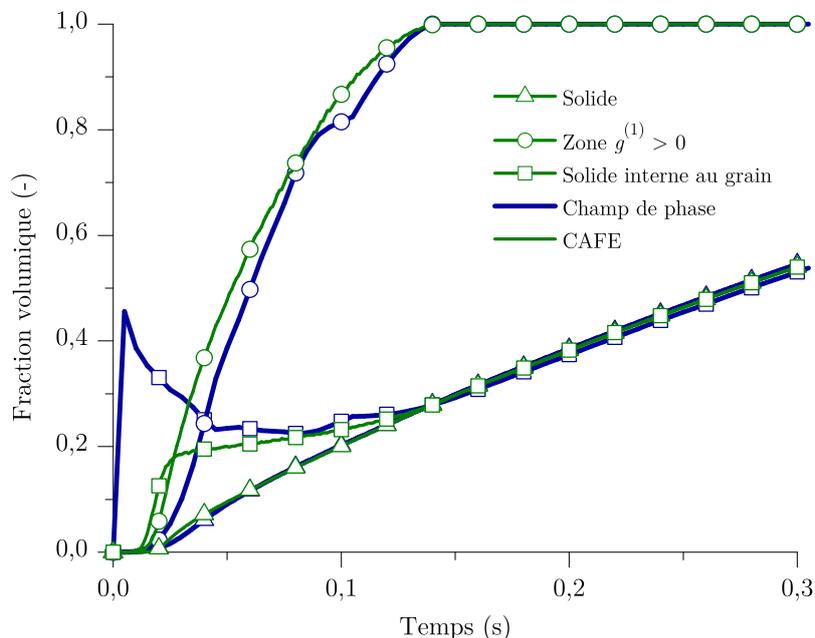
La figure IV.12 décrit la position de l'interface de la zone pâteuse prédite par le champ de phase et le modèle CAFE. Au niveau du champ de phase, il est choisi de définir la zone pâteuse par un octaèdre dont les sommets coïncident avec les extrémités des bras primaires. Au niveau du modèle CAFE, l'interface est diffuse : il y a donc une interface  $F_0^{(1)}$  définie par la frontière  $g^{(1)} = 0$ , représentant la pointe de dendrite primaire, et une interface  $F_1^{(1)}$  définie par la frontière  $g^{(1)} = 1$ . Ceci a déjà été introduit précédemment (fig. II.7).

Dans la première partie de la courbe, l'accord de  $F_0^{(1)}$  avec le champ de phase est excellent. Après 0,02s, le front  $F_0^{(1)}$  s'éloigne progressivement des prédictions champ de phase : dans ce dernier, le soluté s'accumule devant la pointe de dendrite jusqu'à la stopper complètement. En fait, la pointe primaire n'atteint jamais exactement le bord du domaine. Dans le modèle CAFE, la vitesse est ici calculée en prenant  $w^{l\infty} = w_0$ , donc la vitesse de la pointe n'est pas affectée par l'accumulation de soluté dans le liquide devant l'enveloppe. Il est donc normal d'observer cette déviation par rapport au champ de phase. Cependant, même avec  $w^{l\infty} = \langle w \rangle$ , la frontière diffuse entre le liquide et la zone pâteuse ne permet pas d'accumuler suffisamment de soluté devant la pointe primaire, et la courbe  $g^{(1)} = 1$  sur la figure IV.12 est quasiment inchangée. L'interface  $F_0^{(1)}$  atteint donc rapidement la frontière du domaine. L'interface  $F_1^{(1)}$  n'est quant à elle pas directement comparable avec le champ de phase, il faudrait pour cela trouver une définition à cette interface, par exemple à

travers un critère sur la vitesse de croissance des bras secondaires, ou sur l'écart entre la composition moyenne du liquide et sa composition d'équilibre.

### Fractions de phases

La figure IV.13 compare différentes fractions volumiques, moyennées sur le champ de phase et le modèle CAFE. Tout d'abord, la fraction solide moyenne sur le domaine est en très bon accord, ce qui est logique vu l'évolution de la température. Est également tracée la fraction de zone où  $g^{(1)} > 0$ , qui correspond au volume total du grain incluant la frontière zone pâteuse-liquide libre. Ce volume correspond en champ de phase à l'octaèdre dont les plans  $\{111\}$  sont tangents aux bras de dendrites, ce qui au début de la solidification revient à la jonction des pointes de dendrite primaires. Dans le modèle CAFE, ce volume correspond à la somme de la zone grise et de la zone noire sur la figure IV.4. L'accord entre les volumes du grain est assez bon, ce dont on pouvait déjà se douter avec la position des pointes primaires.

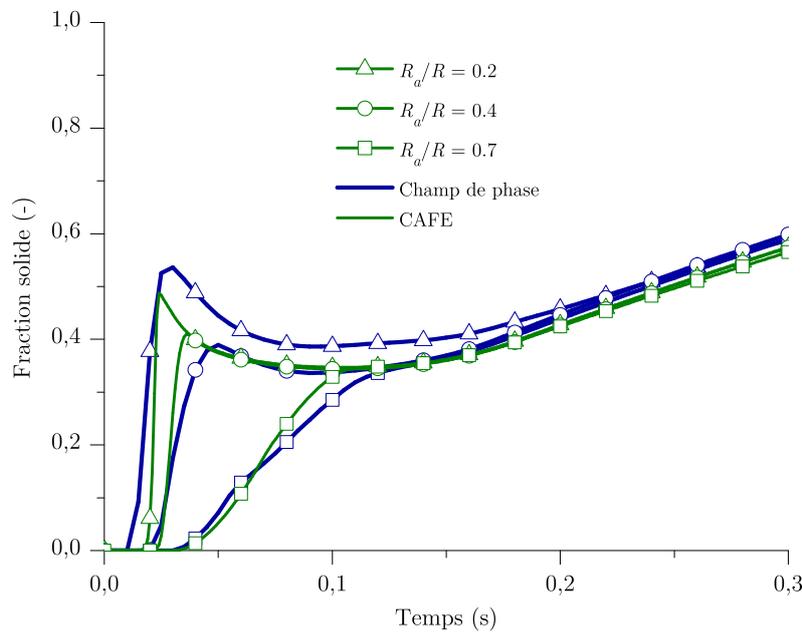


**FIGURE IV.13** Fractions volumiques moyennes sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  prédites par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$  et  $\lambda_1 = R/2$ .

La fraction de solide interne à ce volume est également tracée (carrés). Pour le champ de phase, on constate sur cette courbe une diminution de cette fraction au début du calcul. Après la germination, la forme du grain est quasi-sphérique aussi la fraction interne est très élevée. Puis, les bras primaires se développent rapidement, augmentant le volume du grain et créant une recalescence. En conséquence, la fraction de solide interne au grain diminue par refusion. Ce phénomène n'est pas observé dans le modèle CAFE dans cette moyenne sur la totalité du domaine. Cependant, si on considère un volume fixe de l'ordre d'un élément du maillage, il y a bien refusion et diminution de la fraction interne de solide, comme on le verra sur la figure IV.14. De plus, la fraction interne à la zone (1) (ou zone pâteuse), à différencier de la zone  $g^{(1)} > 0$  tracée en IV.13, diminue également au cours du temps en moyenne sur tout le domaine. Il s'agit donc d'un problème lié à la représentation diffuse de la frontière, ainsi qu'aux hypothèses prises sur la microstructure dans le modèle

CAFE. En effet, dans la première partie de la croissance, la structure globulaire prédite par le champ de phase n'est pas du tout représentée par le modèle CAFE.

La figure IV.14 décrit la fraction solide moyennée sur des surfaces sphériques, centrées en 0 et de rayon  $R_a$ , au cours du temps. Proche du centre du domaine ( $R_a = 0,2R$  et  $R_a = 0,4R$ ), on observe une rapide augmentation de la fraction solide, ce qui correspond au passage du front, suivie d'une refusion due à la recalescence. Quand on s'éloigne du centre du domaine ( $R_a = 0,7R$ ), il n'y a quasiment plus de refusion, le pic de recalescence (à 0,1s) étant passé. Il y a ici un bon accord entre CAFE et champ de phase, ce qui est encourageant. Malgré le fait que le modèle CAFE ne prédise pas la microstructure interne du grain, la fraction solide moyenne à différents points est correctement calculée, ce qui est un des objectifs du modèle. Cependant, d'après le champ de phase, au début de la solidification, les niveaux de fraction de solide ne sont pas les mêmes entre le centre et la périphérie du grain, ce qui n'est pas retrouvé par le modèle CAFE.

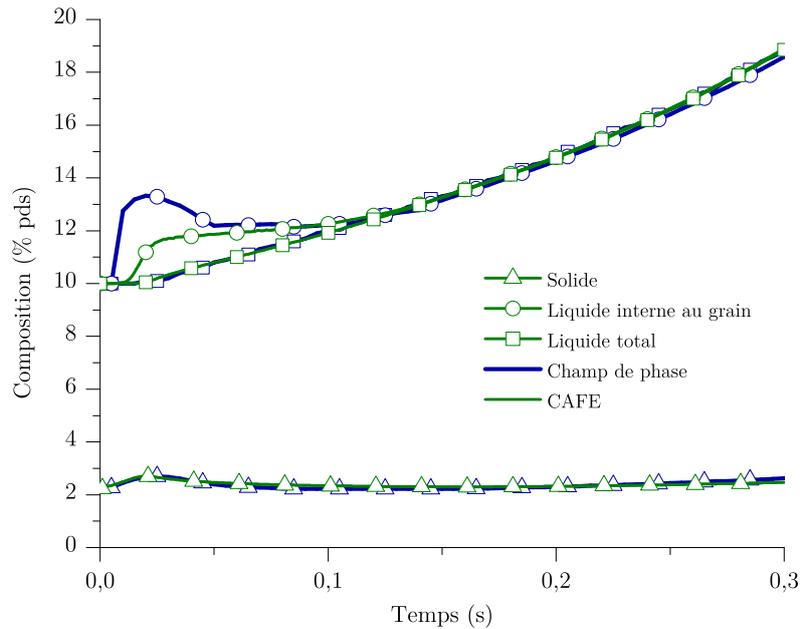


**FIGURE IV.14** Fraction solide moyennée sur des surfaces sphériques de rayon  $R_a$ , sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$ , prédites par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$  et  $\lambda_1 = R/2$ .

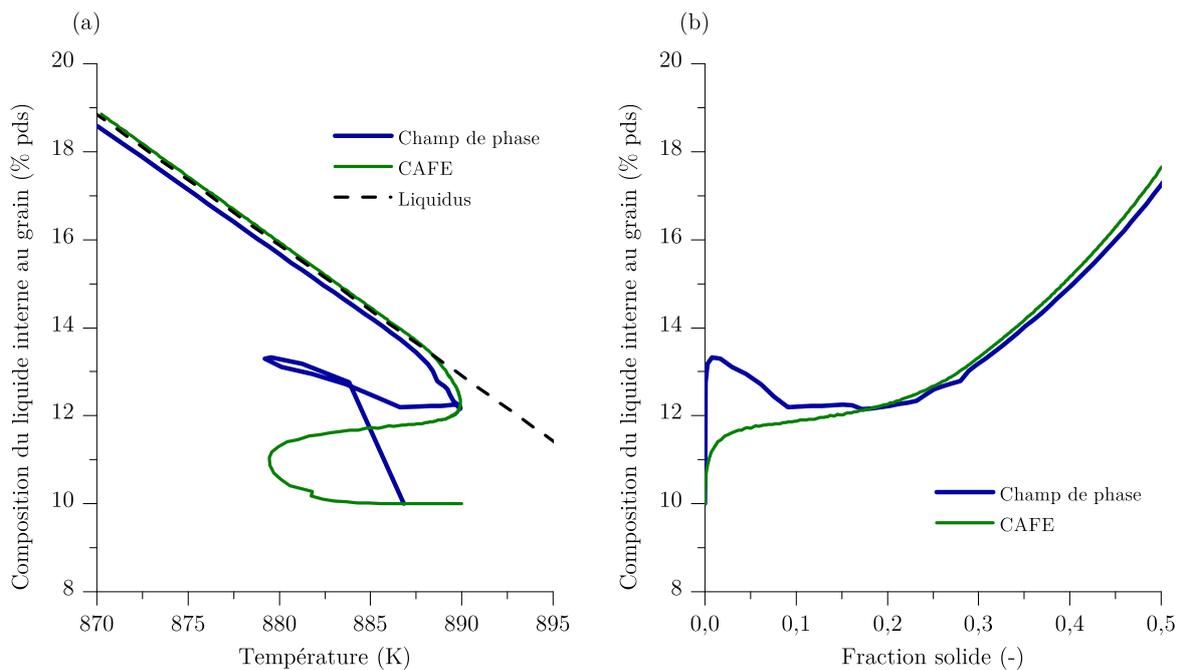
## Compositions

Les compositions moyennes du solide, du liquide interne au grain et du liquide sur tout le domaine sont tracées sur la figure IV.15. Un très bon accord est trouvé en ce qui concerne le solide et le liquide total. Le liquide interne au grain correspond à une moyenne sur  $l_0$  et  $l_1$  dans la zone où  $g^{(1)} > 0$ . On peut l'assimiler à un liquide interdendritique. La composition de ce liquide prédite par le champ de phase est au départ plus élevée que dans le modèle CAFE. Ceci rejoint la discussion précédente sur la fraction de solide interne au grain : celle-ci étant beaucoup plus grande au début de la solidification en champ de phase, le liquide s'enrichit plus vite. Par la suite, l'accord trouvé est relativement bon.

Il est également possible de tracer cette composition en fonction de la température, ou de la fraction solide, comme sur la figure IV.16. Il est intéressant de constater sur



**FIGURE IV.15** Compositions moyennes sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$  prédites par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$  et  $\lambda_1 = R/2$ .



**FIGURE IV.16** Composition du liquide interne au grain, sur le domaine 3D /  $R = 125 \mu\text{m}$ , prédite par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$  et  $\lambda_1 = R/2$ .

les courbes prédites par le champ de phase que dans la première partie de la simulation, ce liquide “interdendritique” est loin de la composition donnée par l’équilibre thermodynamique. Ce résultat est en contradiction avec les hypothèses communément admises pour les modèles simplifiés de microségrégation. Par la suite, cette composition se rapproche de l’équilibre : concernant le modèle CAFE, on retrouve exactement l’équilibre thermodynamique, puisqu’il s’agit d’une hypothèse du modèle de Wang-Beckermann quand le

liquide libre a totalement disparu. Les résultats champ de phase permettent de valider cette hypothèse, en montrant que le liquide interdendritique est homogène.

### Domaine 3D / $R = 39 \mu\text{m}$

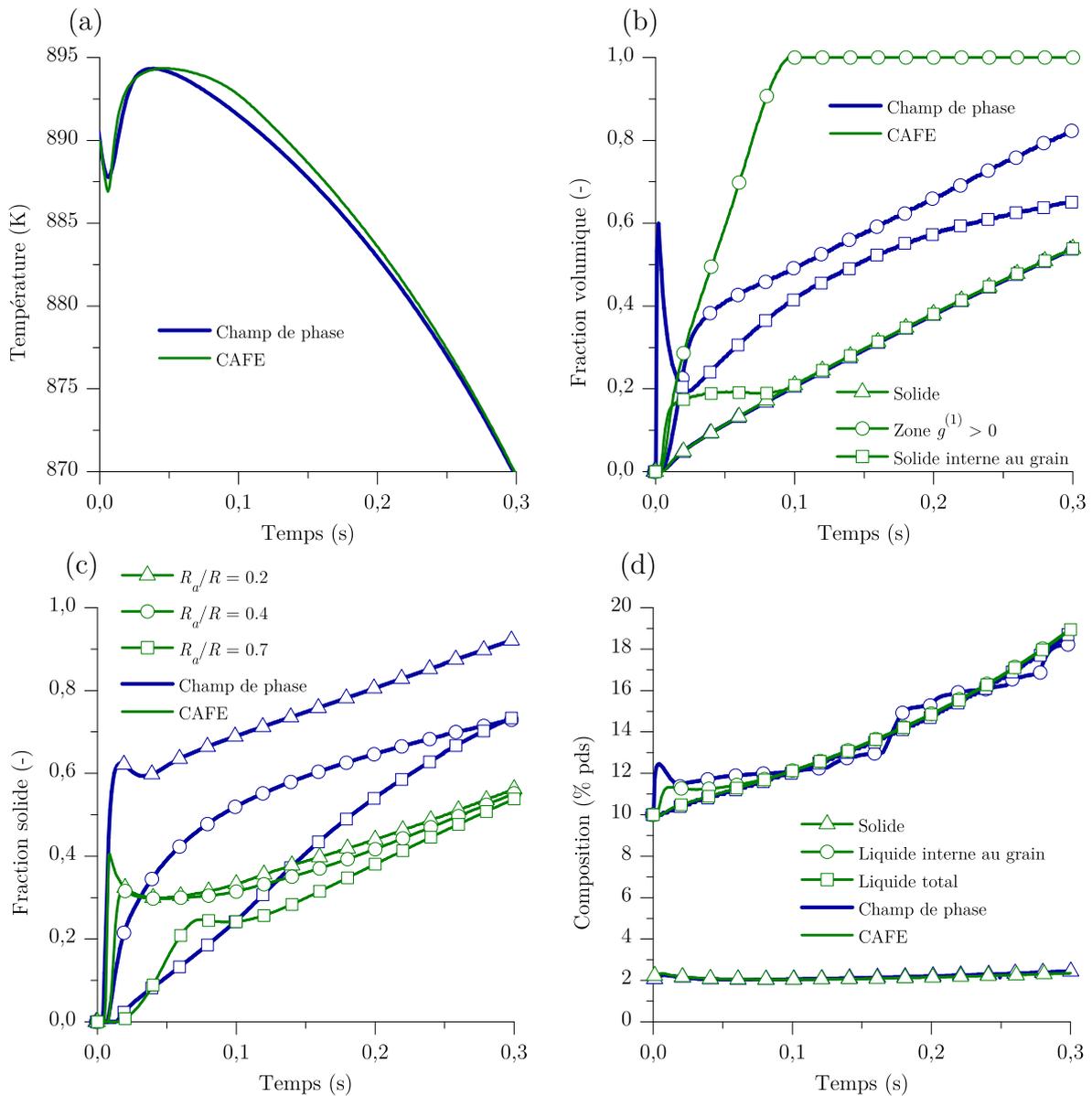
Toutes les figures ci-dessus concernent la goutte de  $125 \mu\text{m}$  de rayon. L'étude ci-après se focalise sur la goutte 3D de  $39 \mu\text{m}$  de rayon. Concernant  $\sigma^*$ , sa valeur est conservée à la valeur théorique malgré la déviation mesurée à la figure IV.6. En effet, sa valeur a ici moins d'influence et une meilleure corrélation est obtenue avec la valeur théorique. Rappelons que le caractère non stationnaire du problème ne permet pas de donner un réel sens physique à cette valeur. De la même manière que précédemment, une étude sur  $\lambda_1$  et  $w^{l\infty}$  a été réalisée mais les conclusions étant très similaires, seuls les résultats avec  $\lambda_1 = R/2$  et  $w^{l\infty} = w_0$  sont présentés ici.

La figure IV.17 reprend l'évolution des différentes grandeurs en fonction du temps pour le modèle champ de phase et le modèle CAFE. Ces courbes permettent d'expliquer la différence de microstructure prédite par le champ de phase entre les domaines de  $39$  et  $125 \mu\text{m}$  (fig. IV.3). Cette différence provient de la chaleur latente libérée, qui permet de réchauffer beaucoup plus rapidement le petit domaine que le grand. En conséquence, la surfusion de croissance est globalement plus faible dans la goutte de  $39 \mu\text{m}$ . L'interface est donc peu déstabilisée et quasiment aucun branchement dendritique secondaire ne s'opère. Au contraire, sur la goutte de  $125 \mu\text{m}$ , la surfusion est importante et l'interface se déstabilise plus facilement, beaucoup de bras secondaires apparaissent. Expérimentalement, le nombre de ramifications dendritiques observées est encore plus grand, ce qui s'explique par la vitesse de refroidissement qui est aussi plus élevée.

Concernant la comparaison CAFE / champ de phase, même si au niveau de la température (a), un bon accord est trouvé, les autres graphes indiquent une grande déviation des prédictions CAFE. Concernant les grandeurs volumiques (b), on constate que la fraction du grain est beaucoup plus importante avec le modèle CAFE. La fraction interne de solide s'en trouve également impactée par rapport au champ de phase. De même, les moyennes sur les "surfaces" (c) sont très différentes des résultats champ de phase. En fait, si on compare la figure IV.17 avec les équivalents sur la goutte de  $125 \mu\text{m}$  (figures IV.9, IV.13, IV.14 et IV.15), il est flagrant que les courbes prédites par le modèle CAFE ont un comportement très similaire. Par contre, le champ de phase prédit des évolutions assez différentes, en particulier pour les fractions solides moyennes sur les rayons  $R_a$ . Le modèle CAFE part de l'hypothèse que le VER sur lequel se fait la prise de moyenne est assez grand par rapport aux inhomogénéités de la microstructure. Or, il est clair que sur la goutte de  $39 \mu\text{m}$ , le VER associé à chaque nœud du maillage est beaucoup plus petit que la taille caractéristique  $\lambda_2$ . C'est aussi le cas sur la goutte de  $125 \mu\text{m}$ , mais le nombre important de branchements secondaires permet de retrouver en moyenne des grandeurs correctes. Le domaine de  $39 \mu\text{m}$  est donc trop petit, au vu de la microstructure dendritique, pour les approximations du modèle CAFE. Il est intéressant de noter qu'en revanche, le domaine de  $125 \mu\text{m}$  est à la limite de ce que peut atteindre le modèle champ de phase pour espérer avoir des résultats quantitatifs.

### Domaines 2D

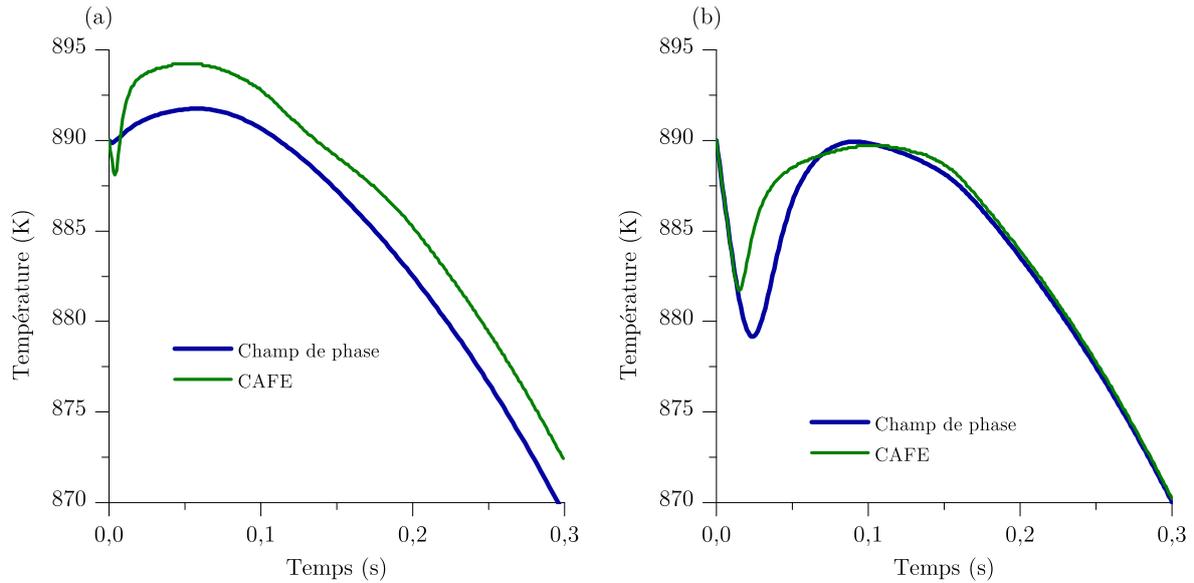
Pour conclure cette étude, une rapide comparaison est donnée sur les domaines de  $39$  et  $125 \mu\text{m}$  en 2D. Comme cela a déjà été indiqué plus haut, cette comparaison est



**FIGURE IV.17** Évolution de la température, des fractions volumiques et des compositions moyennes sur le domaine 3D /  $R = 39 \mu\text{m}$ , prédites par le champ de phase et le modèle CAFE avec  $w^{l\infty} = w_0$ ,  $\lambda_1 = R/2$  et  $\sigma^* = 1/4\pi^2$ .

moins significative dans la mesure où les modèles cinétiques implémentés dans l'algorithme CAFE sont basés sur des considérations en trois dimensions.

La figure IV.18 montre en effet des différences notables entre la température prédite par le champ de phase et le modèle CAFE. Sur la goutte de  $39 \mu\text{m}$ , l'accord est très mauvais : au problème de la dimension s'ajoute comme plus haut le fait qu'il n'y ait quasiment pas de branchement dendritique secondaire (fig. IV.3). Concernant la goutte de  $125 \mu\text{m}$ , l'accord est meilleur car la prise de moyenne est plus justifiée, et l'erreur est principalement due au fait que les calculs soient effectués en deux dimensions.



**FIGURE IV.18** Évolution de la température pour (a) le domaine 2D /  $R = 39 \mu\text{m}$  et (b) le domaine 2D /  $R = 125 \mu\text{m}$ . Pour le modèle CAFE, on fixe  $w^{l\infty} = w_0$ ,  $\lambda_1 = R/2$  et (a)  $\sigma^* = (4\pi^2)^{-1}$  ou (b)  $\sigma^* = 0,0095$ .

## 1.6 Conclusion et domaines de validité

Cette étude permet de tirer plusieurs conclusions intéressantes. D'une part, sur un domaine 3D relativement grand par rapport à la microstructure, le modèle CAFE permet de retrouver de manière correcte des grandeurs moyennes, sans suivre directement l'interface solide-liquide. Pour un temps de calcul réduit en comparaison du champ de phase, il est ainsi possible d'avoir une bonne idée de l'évolution de la température, de la composition et des fractions de phases dans la structure dendritique. Le champ de phase permet quant à lui de calibrer de manière assez précise les paramètres numériques et physiques que sont  $\sigma^*$ ,  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ . Concernant  $w^{l\infty}$ , la discussion est encore ouverte puisque les conclusions sur ces tailles de domaines ne sont pas forcément valables à des échelles plus importantes.

D'autre part, sur un domaine relativement petit par rapport à la microstructure, les prédictions du modèle CAFE s'éloignent fortement de celles du champ de phase, ce qui est attendu. On en vient donc à définir des échelles de validité de ces modèles : sur des domaines trop petits, les approximations de la prise de moyenne ne permettent pas d'utiliser le modèle CAFE. Sur des domaines trop grands, le temps de calcul du champ de phase impose de prendre des paramètres numériques plus grossiers, ce qui enlève partiellement le caractère quantitatif des résultats.

À ce propos, il faut encore souligner que la convergence du modèle champ de phase n'a pu être étudiée en 3D, et en particulier sur la goutte de  $125 \mu\text{m}$ . Ceci constituerait la prochaine étape de l'étude, pour augmenter la confiance dans les résultats champ de phase et affiner la comparaison avec le modèle CAFE, notamment en ce qui concerne  $\sigma^*$ . La taille de l'interface est encore beaucoup trop importante par rapport au rayon de la pointe de dendrite. Cependant cette taille est fortement limitée en 3D par les temps de calcul et la mémoire nécessaire. On l'a vu, les tailles d'interface théoriquement requises sont déjà à la limite de ce qui est possible actuellement en 2D, du moins pour la croissance dendritique équiaxe d'un alliage binaire. Il serait donc judicieux de continuer cette étude sur des domaines 2D, ce qui nécessiterait tout de même de modifier la cinétique de pointe

3D utilisée dans le modèle CAFE.

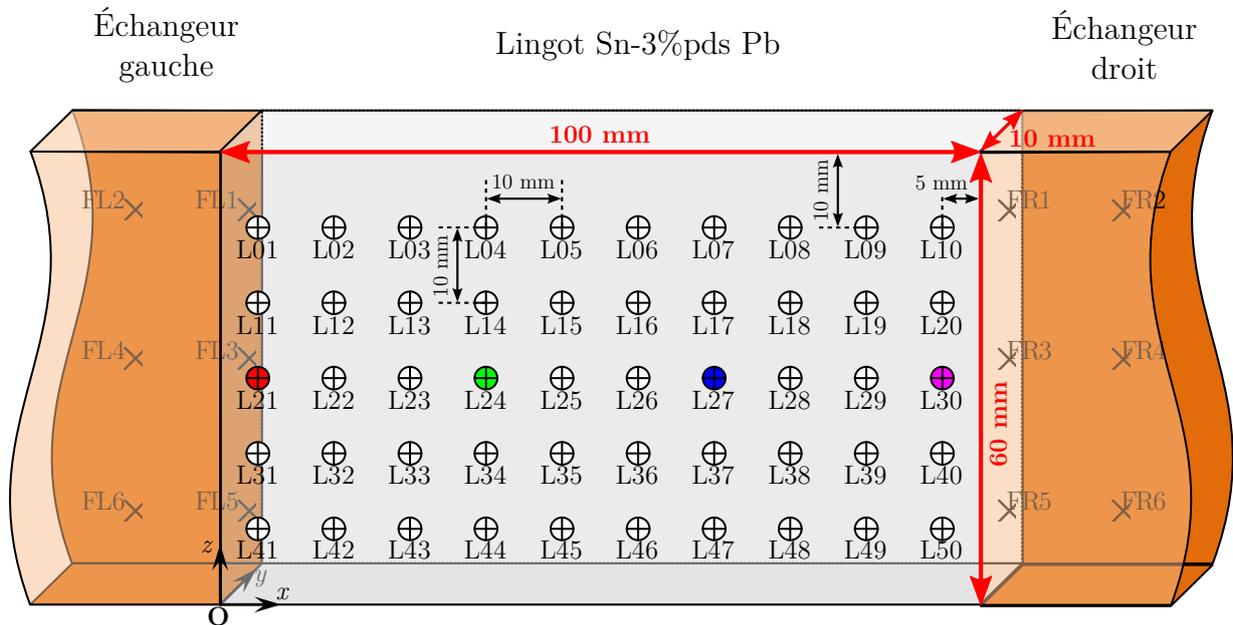
Pour autant, il s'agit de la première comparaison de ce type, qui pourra donner des bases et des directions pour les recherches analogues à venir, comme avec le champ de phase mésoscopique [Ste99, Ste05, Del10].

## 2 Benchmark expérimental de macroségrégation

Avec l'amélioration des méthodes de modélisation en solidification, la représentation de la macroségrégation est devenue une problématique courante dans l'implémentation des codes de calculs. Cependant, aucun code macroscopique ne couple actuellement la prédiction de la macroségrégation avec une description directe de la formation de la structure de grains. Les publications précédentes sur le sujet étaient limitées à de petits domaines en 2D [Gui07]. La présente étude a pour objectif de comparer le modèle CAFE 3D à une expérience de macroségrégation par convection naturelle, afin de valider le couplage des équations et d'appréhender les possibilités offertes par le modèle à ce niveau.

### 2.1 Cas expérimental

On l'a vu, les origines de la macroségrégation sont multiples et il est difficile d'isoler un phénomène en particulier. Aussi, la validation des codes reste un exercice complexe. Pour résoudre ce problème, Hebditch et Hunt ont mené dans les années 70 une expérience qui a fait date [Heb74], où était observée la croissance de grains dans un alliage plomb-étain par trempe au cours de la solidification. Plus récemment, un même type d'expérience a été réalisé au SIMAP avec des moyens de mesure plus importants sur différents alliages étain-plomb [Hac12a]. La macroségrégation est, dans cette expérience, due presque exclusivement à la convection naturelle, c'est pourquoi elle se prête bien à la validation de modèles et de codes numériques qui sont encore rarement couplés à la thermomécanique du solide.



**FIGURE IV.19** Schéma du montage expérimental. Les thermocouples en surface du lingot sont identifiés par L01-L50, dans l'échangeur thermique gauche par FL1-FL6 et dans le droit par FR1-FR6.

La figure IV.19 présente le dispositif expérimental. La cavité où se trouve l'alliage mesure 100 mm selon  $x$ , 10 mm selon  $y$  et 60 mm selon  $z$ . Le moule est constitué de

plaques d'acier de 0,5 mm d'épaisseur. Les surfaces gauche et droite de la cavité, de dimensions 60 x 10 mm, sont positionnées verticalement. Elles sont maintenues en contact avec des échangeurs thermiques en cuivre. Chaque échangeur est composé d'un élément de chauffage autour de la partie en cuivre, et d'une boîte à eau pour contrôler précisément la température. Six thermocouples de type K sont placés dans chaque échangeur, afin d'imposer la température à gauche et à droite. Les expériences ont lieu sous un vide d'environ 1 kPa, il n'y a donc pas d'échange thermique avec l'extérieur par convection. Les pertes dues aux radiations sont quant à elles compensées grâce à une boîte de Kirchhoff. De plus, la face inférieure est isolée avec un aérogel dont la conductivité thermique est de l'ordre de  $0,02 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  à  $200^\circ\text{C}$ . On peut donc considérer les faces qui ne sont pas en contact avec les échangeurs comme adiabatiques, et le profil de température comme quasiment 2D.

L'alliage Sn-3%pds Pb est placé dans la cavité, puis fondu et maintenu à  $260^\circ\text{C}$  pendant 600 secondes avec un brassage électromagnétique, de façon à homogénéiser au maximum le liquide. Au temps  $t = 0 \text{ s}$ , le brassage est arrêté, l'échangeur droit est chauffé à  $280^\circ\text{C}$  et l'échangeur gauche refroidi à  $240^\circ\text{C}$ . Cet état est maintenu pendant 1000 secondes de façon à ce que le mouvement du liquide se stabilise et soit uniquement dû à la convection naturelle, causée par la différence de température. Les mesures expérimentales de la température montrent qu'un régime stable est effectivement atteint au bout d'un moment. Enfin, les échangeurs droit et gauche sont refroidis simultanément à une vitesse de  $-0,03 \text{ }^\circ\text{C s}^{-1}$  jusqu'à solidification complète. Une différence de  $40^\circ\text{C}$  est donc maintenue entre les échangeurs durant toute la durée de la solidification.

L'évolution de la température dans le lingot est mesurée avec 50 thermocouples de type K, espacés régulièrement de 10 mm, et formant une grille de 5 lignes et 10 colonnes. Ils sont identifiés sur la figure IV.19 par le symbole  $\oplus$  et numérotés de L01 à L50. Ces thermocouples sont soudés sur la face avant de la cavité en acier, et ne sont donc pas directement en contact avec le métal fondu. Il est possible avec ce dispositif d'avoir une carte 2D de la température, avec une fréquence d'échantillonnage de 1 Hz. Après solidification, la structure de grain est révélée grâce à un polissage et une attaque chimique avec une solution de HCl-25%vol.  $\text{HNO}_3$ . La carte de ségrégation finale est obtenue par rayons X d'une part, et par analyse chimique d'autre part en spectrométrie par torche à plasma (ICP). Pour cette dernière, des trous cylindriques de 2 mm de rayon sont percés à travers le lingot Sn-3%pds Pb. Ces trous sont centrés aux mêmes positions que les 50 thermocouples. Les copeaux sont ensuite analysés par ICP. Tous les résultats expérimentaux présentés ci-après sont tirés de Hachani *et al.* [Hac12a].

## 2.2 Mise en données

Le tableau IV.3 reprend tous les paramètres physiques et numériques pour les simulations CAFE. Seul le développement de la structure dendritique est suivi par l'automate cellulaire, avec la cinétique par corrélation présentée au chapitre II. La fraction d'eutectique est très faible dans cet alliage, aussi son suivi a peu d'intérêt ici. Pour simplifier le problème, on considère deux zones : la zone de liquide libre (0), contenant une unique structure  $l_0$  elle-même composée de la phase liquide ; et la zone de solidification (1), contenant une structure de solidification,  $s_1$ . Cette structure est constituée de la phase liquide (interdendritique), de la phase primaire *BCT* (Sn) et de la phase secondaire *FCC* (Pb). L'évolution des fractions de phases dans  $s_1$  rend compte de l'apparition de l'eutectique et

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Base de données thermodynamique		PBIN	
Valeurs extraites en fonction de $T \in [100,300 \text{ °C}]$ et $\langle w \rangle \in [0,40 \text{ \%pds}]$ : $\langle w_{s_1}^{LIQ} \rangle_{s_1}^{LIQ}$ , $\langle w_{s_1}^{BCT} \rangle_{s_1}^{BCT}$ , $\langle w_{s_1}^{FCC} \rangle_{s_1}^{FCC}$ , $g_{s_1}^{LIQ}$ , $g_{s_1}^{BCT}$ , $g_{s_1}^{FCC}$ , $\langle H^{LIQ} \rangle_{s_1}^{LIQ}$ , $\langle H^{BCT} \rangle_{s_1}^{BCT}$ , $\langle H^{FCC} \rangle_{s_1}^{FCC}$			
Diffusion de Pb dans le Sn liquide	$D^l$	$3 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Viscosité dynamique du liquide	$\mu^l$	$2 \cdot 10^{-3}$	Pas
Densité	$\rho_0$	7130	$\text{kg m}^{-3}$
Coefficient d'expansion solutale	$\beta_w$	$-5,3 \cdot 10^{-3}$	$\text{\%pds}^{-1}$
Coefficient d'expansion thermique	$\beta_T$	$9,5 \cdot 10^{-5}$	$^\circ\text{C}^{-1}$
Composition de référence	$\langle w^l \rangle_{ref}^l$	3	$\text{\%pds}$
Température de référence	$T_{ref}$	228,14	$^\circ\text{C}$
Champ de gravité	$g$	-9,81	$\text{m s}^{-2}$
Espacement dendritique secondaire	$\lambda_2$	$9 \cdot 10^{-5}$	m
Conductivité thermique	$\kappa^l$	55	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
	$\kappa^s$	33	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
<i>Données additionnelles pour le problème CA :</i>			
Température de fusion	$T_m$	232	$^\circ\text{C}$
Pente du liquidus	$m$	-1,2895	$\text{K \%pds}^{-1}$
Coefficient de partage	$k$	0,0656	-
Coefficient de Gibbs-Thomson	$\Gamma$	$2 \cdot 10^{-7}$	$\text{K m}$
<i>Sites de germinations :</i>			
Surface droite			
Densité	$n^S$	$10^4$	$\text{m}^{-2}$
Surfusion moyenne	$\Delta T_N^S$	1,5	$^\circ\text{C}$
Écart-type	$\Delta T_\sigma^S$	0,5	$^\circ\text{C}$
Volume, loi V_I (figs IV.25, IV.25.a, IV.26.c et IV.27.c)			
Densité	$n^{V-I}$	$10^8$	$\text{m}^{-3}$
Surfusion moyenne	$\Delta T_N^{V-I}$	3,5	$^\circ\text{C}$
Écart-type	$\Delta T_\sigma^{V-I}$	0,5	$^\circ\text{C}$
Volume, loi V_II (figs IV.23 et IV.25.b)			
Densité	$n^{V-II}$	$10^7$	$\text{m}^{-3}$
Surfusion moyenne	$\Delta T_N^{V-II}$	5	$^\circ\text{C}$
Écart-type	$\Delta T_\sigma^{V-II}$	0,5	$^\circ\text{C}$
<i>Conditions initiales :</i>			
Composition nominale en Pb	$w_0$	3,0	$\text{\%pds}$
Température initiale	$T_0$	258,6	$^\circ\text{C}$
Vitesse initiale	$v_0^l$	0	$\text{m s}^{-1}$
<i>Paramètres numériques :</i>			
Taille de maille	$l_{FE}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	m
Taille de cellule	$l_{CA}$	$2 \cdot 10^{-4}$	m
Pas de temps	$\Delta t$	0,1	s

**TABLE IV.3** Paramètres pour la modélisation de la solidification du lingot Sn-3%pds Pb avec macroségrégation et convection naturelle [Hac12a].

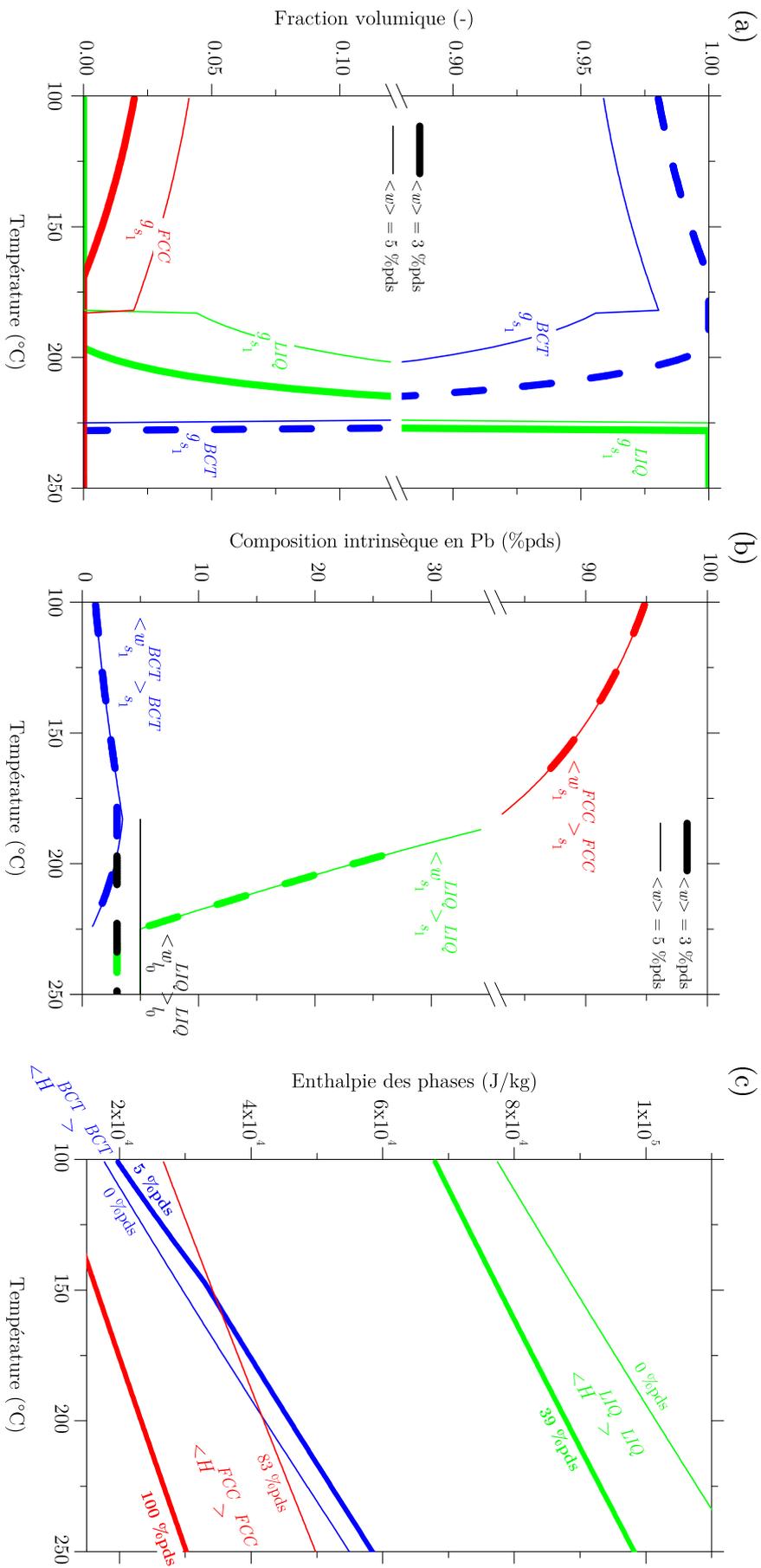
des éventuels précipités à l'état solide.

On l'a vu, les fractions de zones sont calculées grâce au suivi des enveloppes de grains de l'automate cellulaire. Les fractions de structures sont ici triviales :  $g_{(0)}^l = g_{(1)}^{s_1} = 1$ . Concernant les fractions de phases dans  $s_1$ , l'approche utilisée est une tabulation des valeurs obtenues par le logiciel Thermo-Calc et la base de données PBIN, en assumant l'approximation de la loi des leviers. Le diagramme de phases correspondant est donné à la figure I.7. Une partie des tabulations utilisées est donnée à la figure IV.20. Les chemins de solidification, i.e. les fractions volumiques et les compositions intrinsèques des phases, sont tabulés en fonction de  $\langle w \rangle$  de 0 à 40%pds Pb et de 100 à 300°C, avec des pas de 1%pds et de 1°C. Les figures IV.20.a et b donnent un exemple pour  $\langle w \rangle = 3$  %pds et  $\langle w \rangle = 5$  %pds. Pour l'alliage à 3%pds, la fraction de phase primaire *BCT* dans  $s_1$  augmente jusqu'à l'unité, puisqu'on se trouve en dessous de la limite de solubilité du plomb dans l'étain. Puis, vers 170°C, la phase secondaire *FCC* commence à se former : il s'agit de précipitations à l'état solide. Celles-ci sont introduites à cause de la loi des leviers, mais sont justifiées vu la faible vitesse de solidification. Il serait à l'avenir intéressant d'appliquer le modèle de Wang-Beckermann à ce calcul, mais la combinaison de ce modèle avec les enthalpies tabulées demande encore à être stabilisée pour être applicable sur un cas important. Concernant l'alliage à 5%pds Pb des figures IV.20.a et b, la fraction de *BCT* dans  $s_1$  augmente progressivement jusqu'à la température eutectique de 183°C. En dessous de cette température, la fraction liquide passe brusquement à 0 et la phase secondaire se forme. Par la suite, la proportion de *BCT* et de *FCC* continue d'évoluer par transformation à l'état solide, ce qui est attendu en supposant l'équilibre thermodynamique.

L'enthalpie de chaque phase est quant à elle tabulée dans le domaine d'existence de la phase, avec un pas de 0,5%pds pour *BCT* et 1%pds pour *FCC* et le liquide. La figure IV.20.c montre ces tabulations pour les limites des domaines d'existence des phases. On constate que la pente de ces courbes varie très peu avec la température. Une exception est visible pour la phase primaire, avec  $\langle w^{BCT} \rangle^{BCT} = 5$  %pds. Par contre, l'enthalpie varie beaucoup en fonction de la composition intrinsèque des phases, en particulier pour le liquide dont la composition varie fortement au cours de la solidification. Les tabulations utilisées ici permettent donc de s'affranchir des approximations classiques (capacité calorifique et chaleur latente constantes) et de réduire les erreurs sur la résolution thermique. La recherche et l'interpolation dans les valeurs tabulées se font par dichotomie, selon la procédure décrite dans l'annexe C.

La méthode de tabulation présentée ici n'est pas limitée aux alliages binaires : son avantage est de pouvoir être facilement appliquée à des alliages multicomposés, avec plusieurs réactions péritectiques et eutectiques par exemple. Les propriétés du matériau sont alors directement données par les fractions et les compositions des phases, ce qui s'est déjà révélé un atout pour les comparaisons avec l'expérience [Tou11]. La température de fusion, pente de liquidus et coefficient de partages donnés dans le tableau IV.3 sont utilisés uniquement au niveau de l'automate cellulaire pour calculer la surfusion locale et résoudre le modèle de cinétique de croissance. Une amélioration future serait d'utiliser les mêmes données thermodynamiques à ce niveau, par exemple en tabulant la température d'équilibre de la structure en fonction de la composition de l'alliage. Cependant, dans le cas présent où la composition moyenne varie peu, l'hypothèse de  $m$  et  $k$  constants est justifiée.

Le domaine de simulation est un parallélépipède, correspondant à la cavité contenant l'alliage Sn-3%pds Pb. Au temps initial, une température presque uniforme (de 257,1 à 259,0°C) est mesurée par les thermocouples L01-L50, aussi une température initiale



**FIGURE IV.20** Tabulations pour les alliages Sn-3%pds Pb et Sn-5%pds Pb, en fonction de la température : (a) des fractions de phases dans  $s_1$ , (b) de la composition intrinsèque des phases et (c) de leur enthalpie, d'après la base de données PBIN à travers Thermo-Calc.

$T_0 = 258,6^\circ\text{C}$  est imposée sur tout le domaine. De plus, le liquide est considéré homogène à la composition nominale  $w_0$ . L'enthalpie initiale peut donc être calculée à partir des tabulations données à la figure IV.20, et  $\langle H_0 \rangle = \langle H^{LIQ} \rangle^{LIQ}(w_0, T_0)$ . La vitesse initiale du fluide  $v_0^l$  est négligée, ce qui est justifié expérimentalement puisque le gradient thermique est nul au début.

Concernant les conditions aux limites, un flux nul en soluté et en masse est imposé sur toutes les faces du domaine, ce qui permet de conserver la masse. Une vitesse du liquide nulle est également imposée sur les faces. Au niveau thermique, toutes les frontières sont considérées adiabatiques hormis les deux surfaces à gauche et à droite en contact avec les échangeurs. Sur ces dernières, la température est imposée sous la forme de conditions de Dirichlet. Malgré les nombreux thermocouples dans les échangeurs, la température dans l'alliage au niveau de ces faces n'est pas connue à cause de la résistance de contact entre le lingot et les échangeurs thermiques. Pour résoudre ce problème, le flux thermique horizontal est évalué à un temps donné dans les échangeurs : par exemple, dans l'échangeur gauche, les thermocouples FL1 et FL2 permettent de trouver le flux horizontal à la hauteur  $z = 50$  mm, qui est donné par :

$$j_{\text{FL}z=50} = -\kappa^{\text{Cu}}(T_{\text{FL1}} - T_{\text{FL2}})/(x_{\text{FL1}} - x_{\text{FL2}}) \quad (\text{IV.9})$$

avec  $(x_{\text{FL1}} - x_{\text{FL2}}) = 15$  mm la distance entre les deux thermocouples et  $\kappa^{\text{Cu}}$  la conductivité thermique du cuivre, fixée ici à  $380 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . Ce flux est ensuite combiné avec la température mesurée dans le lingot à la même hauteur et au plus proche de la face, donnée pour le même exemple par le thermocouple L01, pour déduire la température  $T_{\text{FL1}_{in}}$  dans l'alliage au niveau de la surface :

$$j_{\text{FL}z=50} = -\kappa^l(T_{\text{L01}} - T_{\text{FL1}_{in}})/(x_{\text{L01}} - x_{\text{FL1}_{in}}) \quad (\text{IV.10})$$

avec  $(x_{\text{L01}} - x_{\text{FL1}_{in}}) = 5$  mm la distance entre L01 et l'interface et  $\kappa^l$  la conductivité thermique du liquide Sn-3%pbds Pb. La même procédure est utilisée dans l'échangeur gauche pour les thermocouples FL3, FL4 et L21 à  $z = 30$  mm et les thermocouples FL5, FL6 et L41 à  $z = 10$  mm. Les trois températures dans l'alliage à l'interface avec l'échangeur,  $T_{\text{FL1}_{in}}$ ,  $T_{\text{FL3}_{in}}$  et  $T_{\text{FL5}_{in}}$ , sont ensuite extrapolées sur toute la hauteur du lingot en utilisant un polynôme :

$$T_{\text{FL}_{in}}(z) = N_1(z)T_{\text{FL1}_{in}} + N_3(z)T_{\text{FL3}_{in}} + N_5(z)T_{\text{FL5}_{in}} \quad (\text{IV.11})$$

$$\begin{cases} N_1(z) = (z - 30)(z - 50)/800 \\ N_3(z) = -(z - 10)(z - 50)/400 \\ N_5(z) = (z - 10)(z - 30)/800 \end{cases} \quad (\text{IV.12})$$

où  $z$  est la distance à la face inférieure, exprimée en mm. Cette procédure est répétée pour chaque temps mesuré, ce qui permet d'obtenir finalement un historique de la température sous la forme  $T_{\text{FL}_{in}}(z, t)$  avec  $z \in [0, 60 \text{ mm}]$  et  $t \in [0, 5000 \text{ s}]$ . La même démarche est suivie pour l'échangeur droit avec les thermocouples FR1-FR6, L10, L30 et L50 pour obtenir  $T_{\text{FR}_{in}}(z, t)$ , soit la température en fonction du temps et de la distance à la face inférieure dans le lingot au niveau du contact avec l'échangeur droit. Les valeurs tabulées  $T_{\text{FL}_{in}}(z, t)$  et  $T_{\text{FR}_{in}}(z, t)$  sont ensuite imposées comme conditions de Dirichlet sur les faces

gauche et droite. Comme la résolution éléments finis se fait selon la variation d'enthalpie  $d\langle H \rangle$  (équ. II.2), une procédure spéciale doit être appliquée pour ce type de conditions aux limites. Les enthalpies  $\langle H \rangle_{\text{FL}_{in}}(z,t)$  et  $\langle H \rangle_{\text{FR}_{in}}(z,t)$  correspondantes aux températures tabulées  $T_{\text{FL}_{in}}(z,t)$  et  $T_{\text{FR}_{in}}(z,t)$  sont tout d'abord calculées en utilisant les données thermodynamiques tabulées et les fractions et compositions intrinsèques des phases au début du pas de temps. Puis, la variation d'enthalpie  $d\langle H \rangle$  est imposée à zéro sur les faces de gauche et de droite, et la nouvelle enthalpie sur ces faces est imposée aux valeurs calculées.

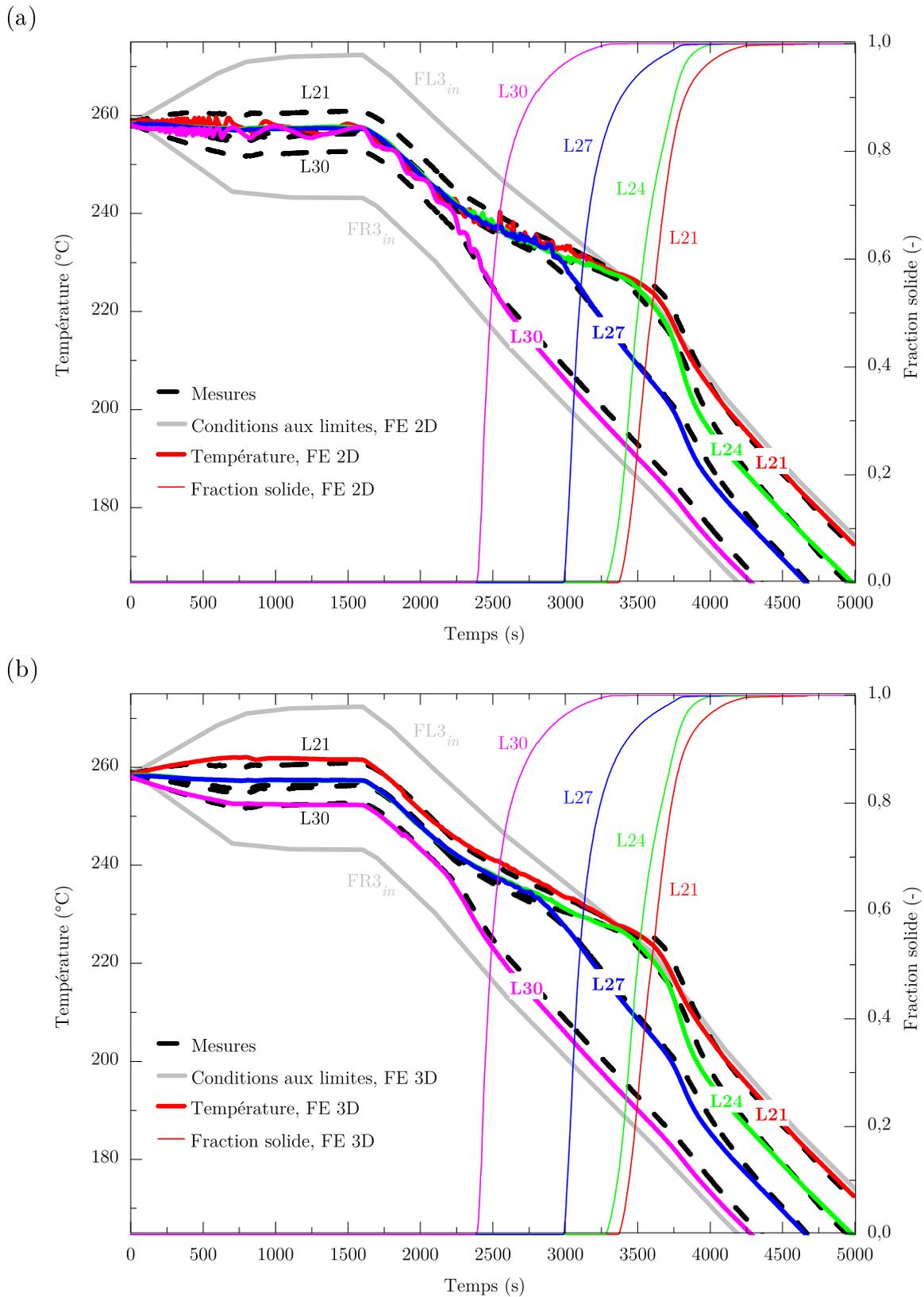
## 2.3 Comparaison

### Calculs FE sans structure de grains

Pour mettre en évidence l'importance du suivi des grains, des calculs sont d'abord effectués sans structure. Par rapport à la mise en données, l'unique différence est que les fractions de zones sont imposées à  $g^{(0)} = 0$  et  $g^{(1)} = 1$  durant toute la simulation. Avec ces valeurs, la phase liquide suit la fraction et la composition données par la tabulation de la figure IV.20 pour la zone (1). En conséquence, aucune surfusion (ni de germination, ni de croissance) n'est prise en compte et la solidification démarre à la température de liquidus définie par la composition locale  $\langle w \rangle$ . Le modèle utilisé revient donc à un modèle macroscopique FE classique. Toutes les autres données sont les mêmes que dans le tableau IV.3. L'espacement  $\lambda_2$  est déduit de mesures expérimentales [Hac12a], et n'est utilisé ici que pour calculer la valeur de la perméabilité  $K_{perm}$  entrant dans les forces de friction de l'équation de conservation du moment (équus. II.12 et II.14).

Des simulations sont effectuées en deux et trois dimensions. Les résultats sont donnés sur la figure IV.21 aux positions L21, L24, L27 et L30, c'est-à-dire sur la surface du domaine de simulation ( $y = 0$  mm), à mi-hauteur ( $z = 30$  mm), et respectivement à  $x = 5, 35, 65$  et  $95$  mm de la surface en contact avec l'échangeur gauche (fig. IV.19). Sur la figure IV.21, les conditions aux limites imposées à  $z = 30$  mm sont tracées en gris et les mesures expérimentales en pointillés. On constate que durant les premières 1000 s où une différence de  $40^\circ\text{C}$  est maintenue entre les échangeurs gauche et droit, la différence de température dans le lingot FL3<sub>in</sub> – FR3<sub>in</sub> atteint seulement  $29^\circ\text{C}$  environ. Ceci est dû aux résistances de contact entre les échangeurs et l'alliage, et justifie la procédure ci-dessus pour imposer les conditions de Dirichlet.

Sur le calcul 2D (figure IV.21.a), la simulation permet de retrouver des évolutions de température en bon accord avec l'expérience en dessous de  $230^\circ\text{C}$ . Par contre, pour des températures plus élevées, l'approximation 2D ne permet pas de prédire une différence de température entre les positions L30 et L21, alors que cette différence est clairement observée expérimentalement. Le calcul 3D (fig. IV.21.a) prédit quant à lui cette différence. Cet effet est la conséquence de la couche limite qui se forme au niveau des parois verticales avant et arrière de la cavité. Celles-ci ne sont pas considérées dans la simulation 2D, ce qui mène à des vitesses de liquide plus importantes, donc un transport convectif de chaleur plus grand et un gradient plus faible dans le lingot. De plus, de nombreuses oscillations sont visibles sur les courbes IV.21.a, malgré le fait que la résolution des équations FE converge systématiquement. Une analyse détaillée montre que cela est dû à l'approximation 2D, qui ne permet pas d'atteindre ici un régime de convection stable.



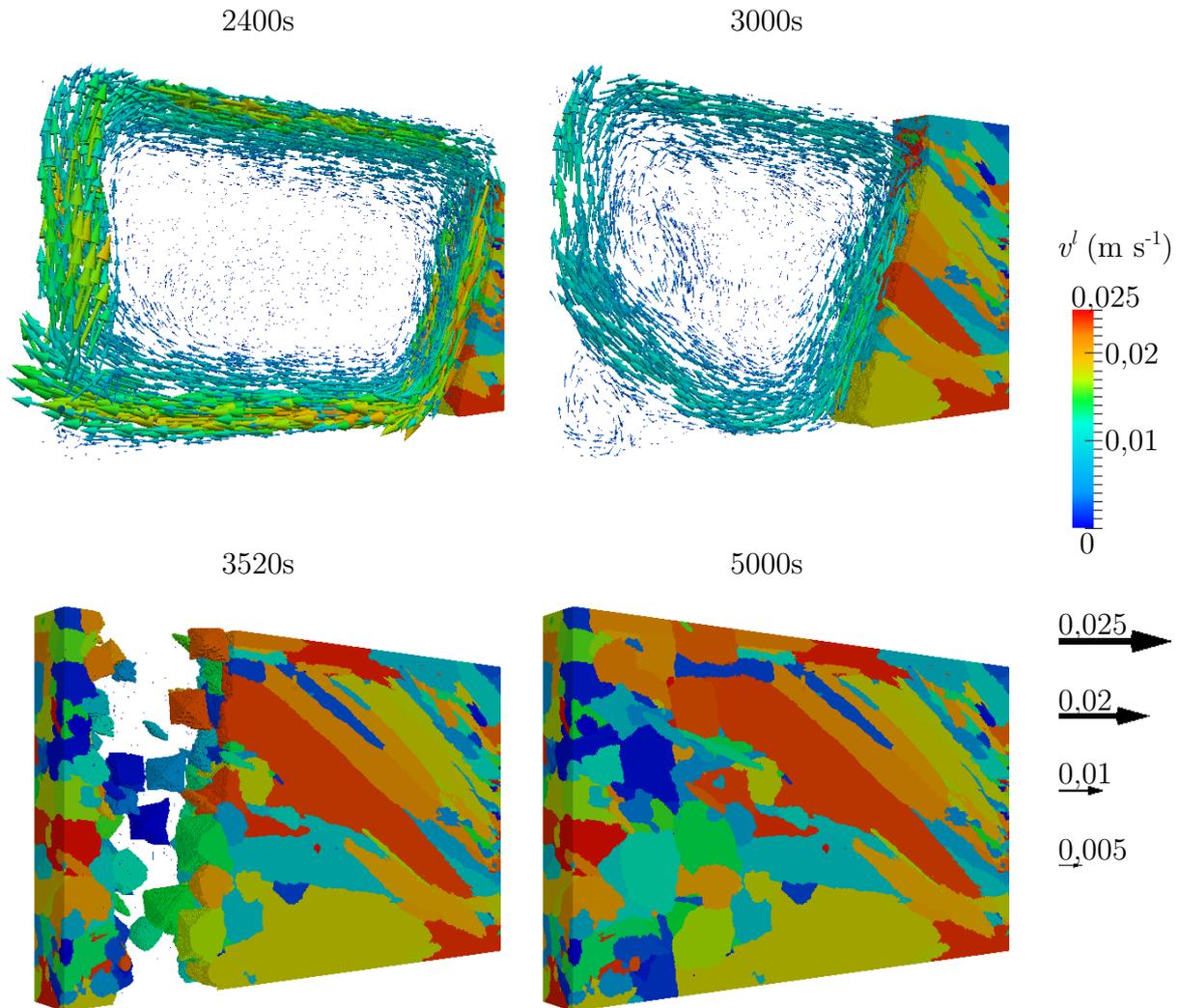
**FIGURE IV.21** Comparaison à mi-hauteur du lingot de la température mesurée (courbes pointillées) et calculée en (a) 2D et (b) 3D par le modèle FE (sans couplage CA). L'évolution de la fraction solide totale simulée est ajoutée en traits fins.

### Calculs CAFE avec structure de grains

Les calculs présentés dans cette section incluent le suivi de la croissance des grains avec le modèle CAFE. Étant données les limitations évidentes de l'approximation 2D, seuls les résultats en 3D sont analysés. Les paramètres additionnels pour la partie CA sont indiqués dans le tableau IV.3. Au niveau des paramètres de germination, une loi de germination surfacique est définie sur la face en contact avec l'échangeur droit, c'est-à-dire où la solidification commence. La valeur de  $n^S$  permet de retrouver une densité de grains similaire à ce qui est observé expérimentalement. Les paramètres  $\Delta T_N^S$  et  $\Delta T_\sigma^S$  sont quant à eux choisis arbitrairement. Concernant la germination dans le volume, deux lois gaussiennes ont été utilisées, labellées V\_I et V\_II, et est l'unique différence entre les deux simulations CAFE présentées ici. La loi V\_I permet de germer une quantité plus importante de grains que la loi V\_II, car la densité est plus importante ( $n^{V-I} = 10n^{V-II}$ ) et la surfusion de germination en moyenne plus faible ( $\Delta T_N^{V-I} < \Delta T_N^{V-II}$ ).

La figure IV.22 présente l'écoulement du liquide ainsi que la structure de grains calculés avec la loi V\_I, du début de la solidification à 2400 s à sa fin à 5000 s. Une boucle de convection principale se forme avant la solidification, due à la différence de température entre les échangeurs, et correspondant donc à la convection naturelle induite par le gradient thermique. Notons sur la figure IV.21 qu'à 2400 s, ce gradient est nul entre les positions L24 et L27, près du centre du domaine : en fait, la convection est assez forte pour homogénéiser la température au centre. Par contre, des différences de température sont clairement visibles entre les positions L21 et L24, ou entre L27 et L30. Dans le liquide, le gradient horizontal est donc concentré aux bords du domaine, à proximité des échangeurs thermiques. Ceci est particulièrement observable en comparant les températures aux positions FL3<sub>in</sub> et L21, qui sont seulement distantes de 5 mm, ou encore les températures à FR3<sub>in</sub> et à L30. Des différences apparaissent entre L24 et L27 quand la solidification commence au niveau de L27, c'est-à-dire après environ 2800 s. L'écoulement est alors stoppé progressivement et le refroidissement à la position L27 s'accélère, la température devient alors très différente de celle à L24. La structure de grains à 3000 s sur la figure IV.22 est un temps intermédiaire entre la capture de L27 et L24 par le front de croissance. Notons également la forte interaction entre l'écoulement dans le liquide et le développement de la structure de grains : la boucle de convection se déplace vers l'échangeur gauche au cours de la croissance du front colonnaire, et change de forme. La vitesse du liquide dans la zone pâteuse n'est pas nulle, et son effet sera discuté plus loin, mais son ordre de grandeur est beaucoup moins important, c'est pourquoi elle n'est pas visible sur les figures IV.22. Au fur et à mesure du refroidissement, la zone de liquide surfondue augmente en volume alors que le gradient de température dans le liquide diminue. Une germination dans le volume a alors lieu, comme on peut le voir à 3520 s.

Une comparaison plus complète des différents champs est donnée à la figure IV.23, au temps  $t = 3380$  s. Au niveau de l'expérience, seul le champ de température est connu. Notons qu'il aurait été possible d'obtenir d'autres champs par analyse *in situ* par rayons X, comme cela a déjà été démontré par le passé [Mat05, Bog10]. Cependant, la procédure expérimentale utilisée ici donne une évolution complète et détaillée du champ de température, à  $\pm 1^\circ\text{C}$  près, ce qui permet de faire des comparaisons telles celle de la figure IV.23.a. La différence sur les cartes de température entre résultats FE et CAFE est faible. Ceci vient du fait que la surfusion de germination et de croissance est limitée à environ  $2^\circ\text{C}$ , cette surfusion a donc un faible impact sur les courbes de température. D'ailleurs, l'accord des prédictions FE avec l'expérience est déjà très bon (fig. IV.21.b). L'effet de la surfusion

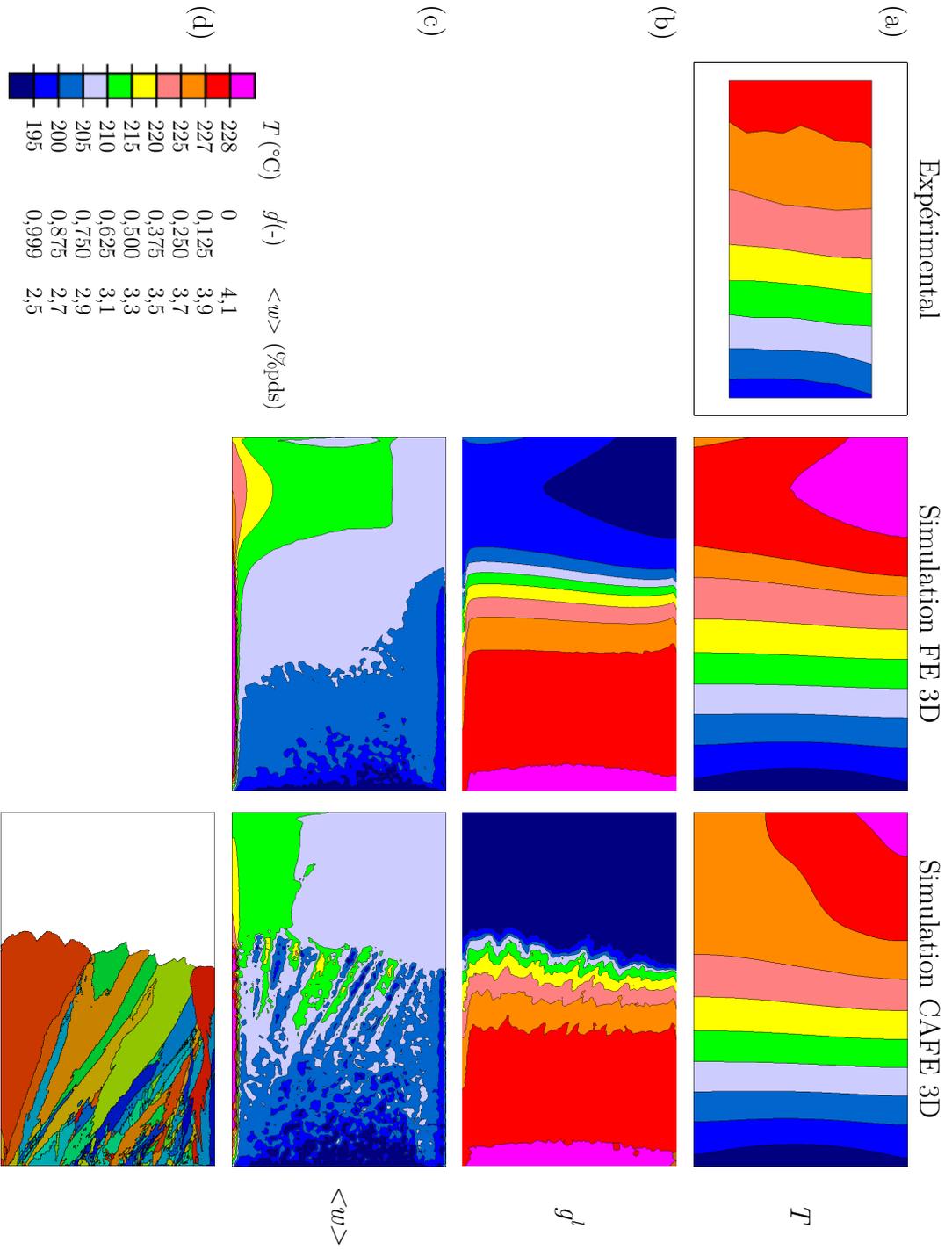


**FIGURE IV.22** Vue extérieure de l'écoulement et de la structure de grains prédits par la simulation CAFE 3D, à différents temps de la solidification.

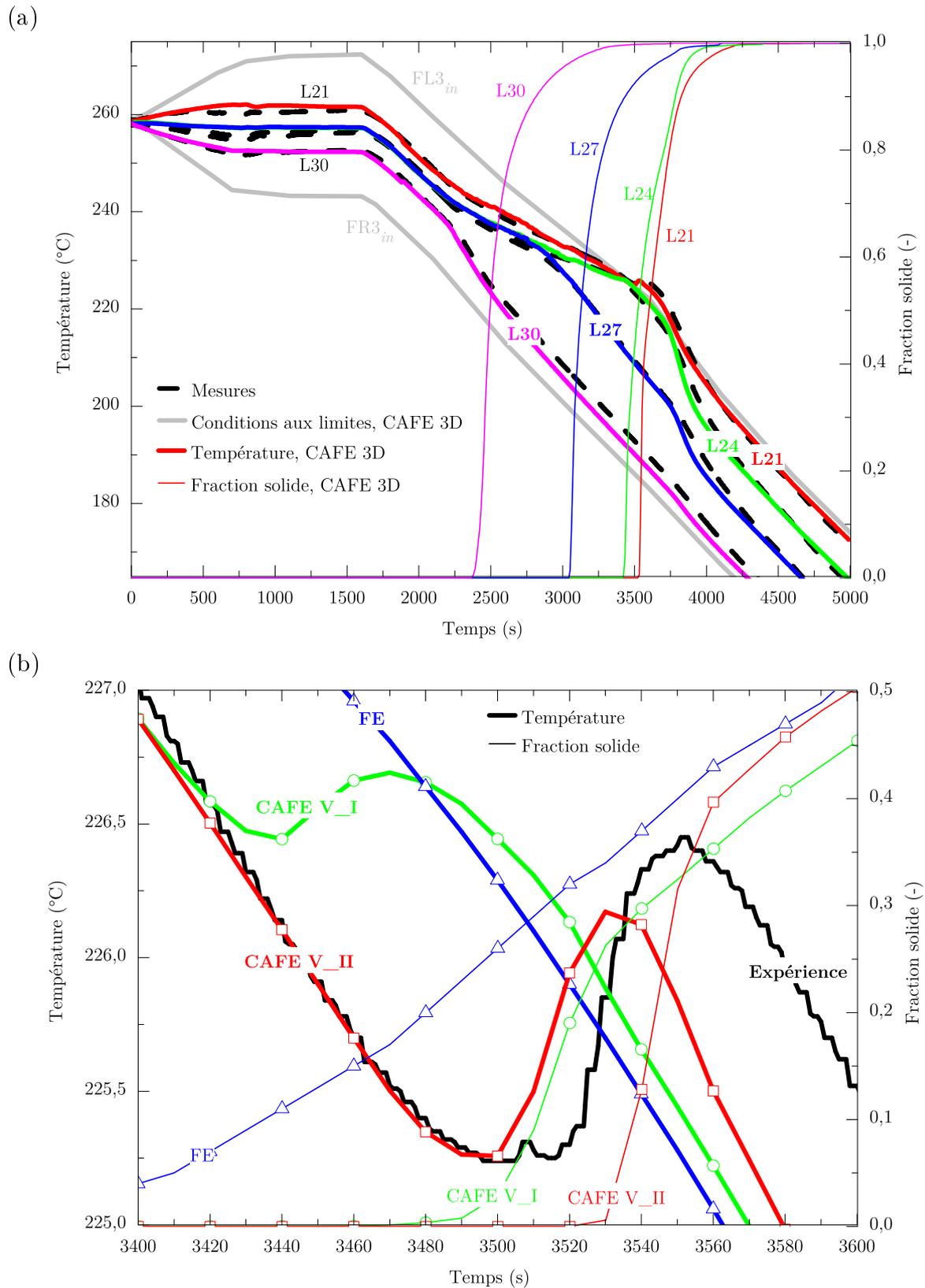
est plus visible sur la figure IV.23.b, où une large zone liquide surfondue est prédite par le modèle CAFE, alors que du solide est présent quasiment partout dans les résultats FE. La figure IV.23.c donne les différences FE / CAFE au niveau de la macroségrégation, sur lesquelles nous reviendrons plus tard. Enfin, la structure de grains obtenue par le modèle CAFE est également tracée.

La figure IV.24.a compare les mesures expérimentales avec les températures prédites par le modèle CAFE et la loi de germination  $V\_II$  dans le volume. Les résultats sont très proches de ceux donnés par le modèle FE, figure IV.21.b. Cependant, certaines différences apparaissent en dessous de la température de liquidus. En particulier, une recalescence est mesurée à la position L21, qui est une des dernières positions solidifiées. Un zoom à ce niveau permet de mieux visualiser cette recalescence (fig. IV.24.b). La composition moyenne locale est de 3,08 %pds, donc la température de liquidus est de 228,0°C. En conséquence, au moment de la recalescence, la surfusion est de l'ordre de 2,8°C.

Les courbes de température sont tracées en traits épais et de fraction solide en traits fins. D'après la simulation CAFE avec la loi  $V\_II$ , la recalescence commence vers 3500 s, alors que le point L21 est encore complètement liquide. La fraction solide commence à



**FIGURE IV.23** Comparaison 2D à la moitié de l'épaisseur du lingot des cartes (gauche) expérimentale, (milieu) FE et (droite) CAFE au temps  $t = 3380s$ , pour (a) la température, (b) la fraction liquide, (c) la composition moyenne et (d) la structure de grains.

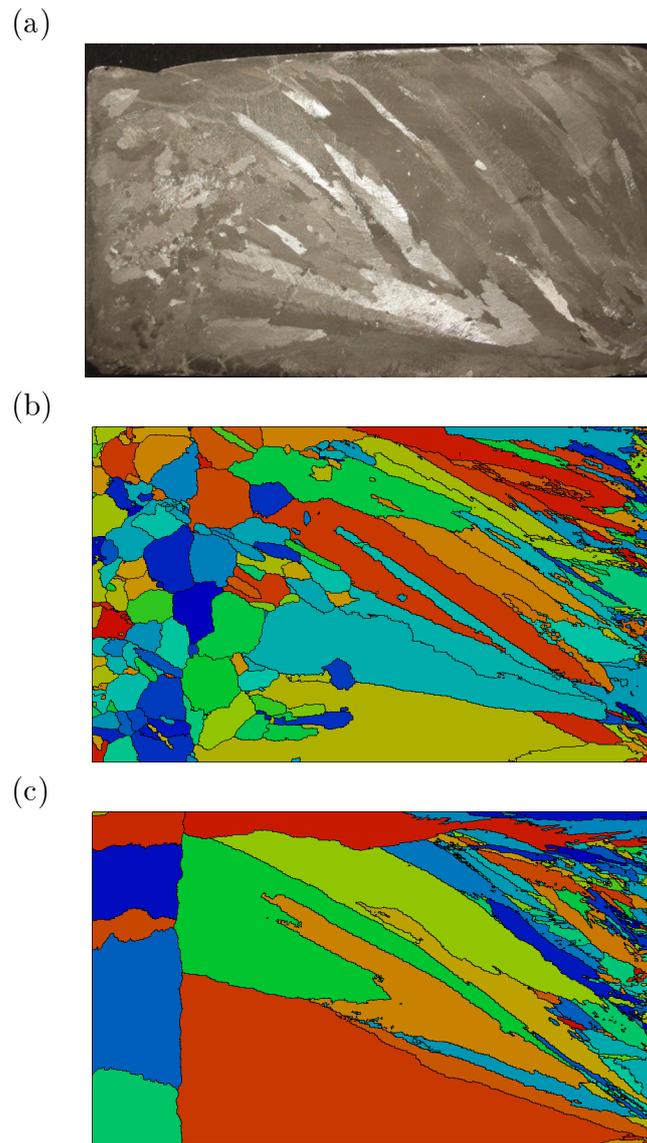


**FIGURE IV.24** Évolution de la température à mi-hauteur (a) avec le modèle CAFE et la loi V\_II de germination dans le volume. La figure (b) est un zoom au niveau de la recalescence à la position L21, avec résultats FE et CAFE avec les lois V\_I et V\_II.

augmenter vers 3525 s, quand la température a atteint son maximum. Ainsi, la surfusion de croissance quand le front passe au niveau de L21 correspond au maximum de la recalescence, soit environ 1,8°C. Ceci est cohérent avec d'autres analyses de la thermique lors du développement de la zone pâteuse [Her06]. La diminution de température après le passage du front indique que le transport thermique se fait ensuite essentiellement à travers la zone pâteuse. Notons que l'ordre de grandeur de la surfusion au niveau du front et de la recalescence est en excellent accord avec l'expérience, ce qui valide indirectement le modèle de cinétique de croissance utilisé ici. Rappelons que la loi V\_II correspond à une faible germination dans le volume : la structure de grains finale au centre du lingot est donnée par la figure IV.25.c. Il s'agit majoritairement d'une structure colonnaire, connectée aux surfaces en contact avec les échangeurs thermiques à gauche et à droite. Bien que l'évolution en température soit très proche de l'expérience, la structure de grains est assez différente des observations expérimentales, dont une image est donnée à la figure IV.25.a.

Pour corriger ces divergences, les paramètres de la loi de germination ont été modifiés. La structure de grains obtenue avec la loi V\_I, figure IV.25.b, est très proche de l'expérience. Par contre, la recalescence prédite, tracée sur la figure IV.24.b, montre un moins bon accord avec les courbes expérimentales. En effet, la recalescence arrive plus tôt, à 3440 s, et finit également plus tôt, à 3470 s. De plus, la température à laquelle la recalescence commence est plus élevée d'environ 1,2°C, et la recalescence elle-même est de moindre intensité. Comme cela a déjà été présenté plus haut, la germination dans le volume devant le front colonnaire a fait l'objet de nombreuses discussions dans la littérature [Gan00b, Her06]. En particulier, pour des alliages sans agent de germination, la fragmentation des bras dendritiques colonnaires lors de la diminution du gradient de température devant le front joue probablement un rôle important dans l'apparition des grains équiaxes. L'évolution de la température mesurée et la recalescence suggèrent de plus une refusion de la zone pâteuse dans la dernière partie de la solidification, où un grand volume de liquide devient surfondu, et une diminution de la vitesse de croissance du front colonnaire. Ces phénomènes favorisent justement la fragmentation des bras. Or, il est clair que la distribution gaussienne utilisée dans le modèle CAFE ne permet pas de rendre compte de la fragmentation. Pour finir, les résultats précédents avec le modèle FE sans suivi de la structure (fig. IV.21.b) ont été reportés sur le zoom de la figure IV.24.b. Cette approche ne prédit aucune recalescence, puisqu'aucune surfusion n'est admise et que la solidification débute dès la température du liquidus. Au niveau de la position L21, la solidification commence vers 3370 s, soit environ 200 s avant le pic de recalescence mesuré.

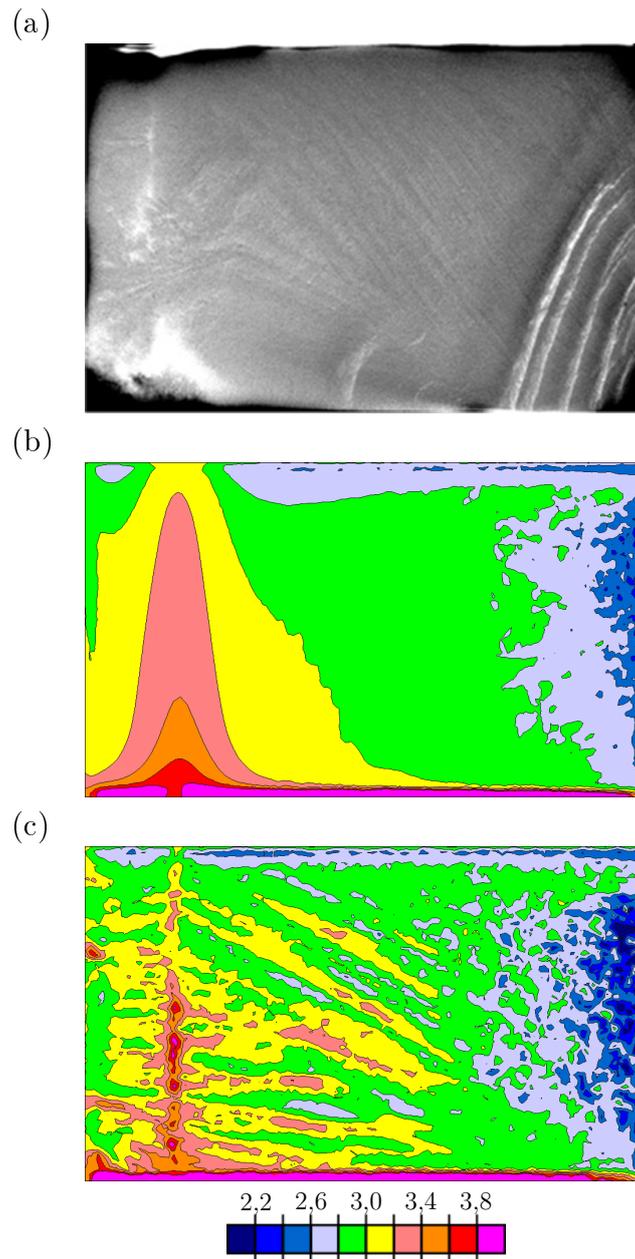
Les cartes de composition moyenne en plomb sont données sur les figures IV.26 et IV.27, avec (a) les observations expérimentales, (b) les résultats FE et (c) les résultats CAFE avec la loi V\_I. On peut observer sur la carte obtenue par rayons X (fig. IV.26.a) des canaux ségrégués positivement dans la partie inférieure droite du lingot. Ces canaux ne sont pas prédits par la simulation : bien que la raison n'en soit pas claire, l'anisotropie de la perméabilité de la zone pâteuse, qui n'est pas traitée dans le modèle, est susceptible de jouer un rôle dans la formation de ces canaux. De plus la taille de maille et les algorithmes numériques de stabilisation ont clairement une influence sur leur prédiction [Com12]. Il a été en particulier montré que le remaillage et un couplage fort entre transport thermique, solutal, et équations de Navier-Stokes sont nécessaires pour correctement prédire ces canaux [Liu05, Liu09]. Bien qu'il implique très certainement un temps de résolution beaucoup plus important, implémenter le couplage fort serait possible, s'il est utilisé avec



**FIGURE IV.25** Structure de grains à la moitié de l'épaisseur (a) vue expérimentalement après traitement [Hac12a], et comparée aux simulations CAFE avec la loi de germination dans le volume (b) V\_I et (c) VII. Les paramètres de ces lois sont donnés dans le tableau IV.3.

la résolution explicite de la partie CA. Quant au remaillage, l'approche à deux maillages présentée au chapitre II a déjà été testée avec succès.

La comparaison des figures IV.26.b et c montre que la carte de ségrégation est plus perturbée avec le couplage avec la structure (c). Ceci était déjà mis en évidence sur les figures IV.23.c. Les formes ségrégées observables sur les cartes CAFE sont en fait alignées avec les orientations principales des grains, comme on peut le voir sur la figure IV.25. Il est d'ailleurs intéressant de noter que les grains sélectionnés ont tendance à croître vers le haut du lingot, formant une texture. Ceci s'explique par la dépendance de la vitesse de croissance avec la désorientation entre l'écoulement et la direction  $\langle 100 \rangle$  des grains (équation II.37). La boucle de convection fait que le liquide se déplace de haut en bas devant le front colonnaire, les directions de croissance des grains alignées à l'opposé de



**FIGURE IV.26** Carte de composition à la fin de la solidification, observée (a) expérimentalement par rayons X et prédite au milieu de l'épaisseur par (b) la simulation FE et (c) la simulation CAFE V\_I. L'échelle, en %pds, ne s'applique qu'aux simulations.

cet écoulement adoptent une surfusion plus faible. Ces grains ont donc tendance à croître au détriment des autres, ce qui donne la structure présentée plus haut. Ce phénomène est également observable expérimentalement (figure IV.25.a), mais la direction sélectionnée n'est pas exactement la même que dans le modèle CAFE. La cause de cette différence n'est pas claire, et il n'est pas possible en l'état de savoir si elle provient de la cinétique elle-même ou de l'algorithme de croissance CA. Pour identifier le problème et améliorer cette partie, il serait nécessaire de mener des expériences spécifiques.

Bien que la carte rayons X ne puisse être reliée à des grandeurs quantitatives, il est clair que la zone blanche dans la partie en bas à gauche du lingot, qui correspond à une

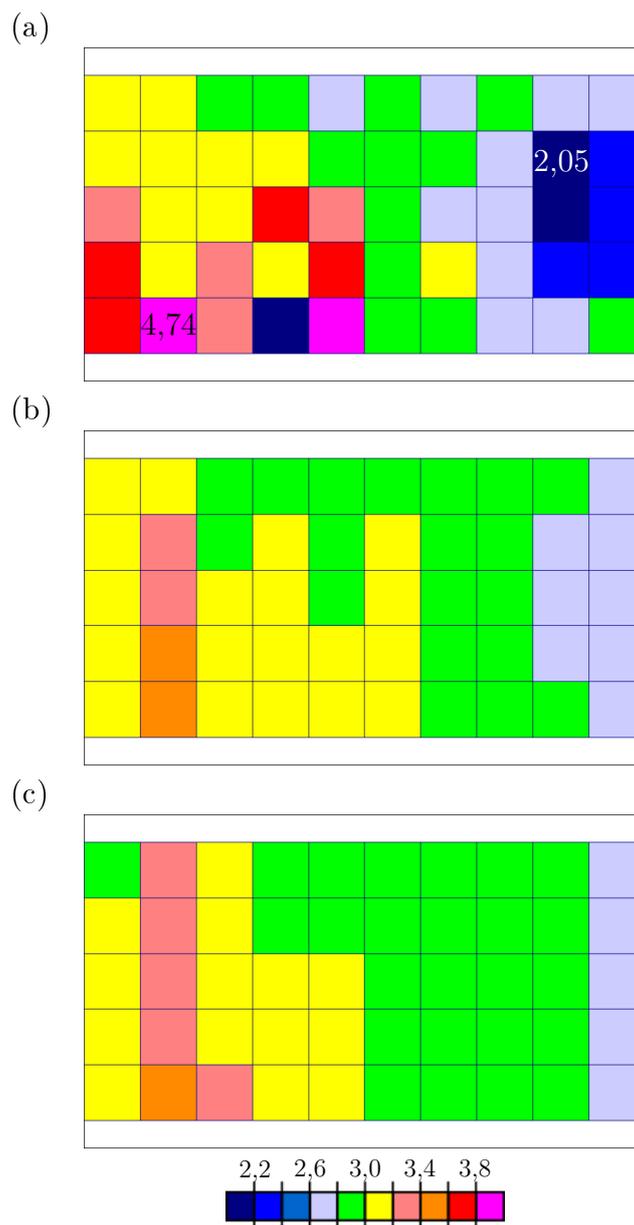
haute teneur en plomb, est correctement prédite par les simulations. De plus, on observe dans l'expérience des ségrégations orientées, alignées selon les orientations des grains, et similaires à celles obtenues avec le modèle CAFE. Il est possible d'obtenir des comparaisons plus quantitatives avec les mesures par torche à plasma, figure IV.27. Concernant les simulations (b et c), les données ont été obtenues en moyennant la composition en plomb sur des cylindres de 2 mm de diamètre à travers toute l'épaisseur, et centrés aux positions des thermocouples L01-L50. De cette manière, la méthode de moyenne est proche de ce qui est fait expérimentalement. Les résultats de la figure IV.27 révèlent une très faible différence entre les simulations FE et CAFE. On retrouve les tendances mesurées (a), mais la moyenne fait perdre les ségrégations orientées montrées par rayons X (fig. IV.26.a). Les simulations ne permettent pas de retrouver quantitativement des niveaux de ségrégation en accord avec l'expérience, dont le minimum et maximum mesurés sont aussi indiqués sur la figure IV.27.a. Comme cela a été mentionné, la macroségrégation a de multiples origines, or le modèle actuel ne prend en compte que le transport de soluté par convection et la ségrégation entre le solide et le liquide. Le transport des grains (par convection ou gravité) n'est ici pas considéré, bien que cela ait été démontré comme possible en 2D [Gui04a, Gui06]. Cependant, on peut raisonnablement le négliger dans ce cas où la structure est principalement colonnaire. De plus, les grains équiaxes sont supposément la conséquence d'une fragmentation des bras quand le gradient de température diminue et que le front colonnaire ralentit. Si c'est le cas, alors les grains équiaxes apparaissent très proches du front colonnaire, et sont peu susceptibles d'être soumis à un transport de longue durée dans le liquide libre. Concernant le retrait à la solidification, qui n'est pas non plus considéré dans le modèle, son effet sur la macroségrégation est difficilement estimable. On voit clairement sur la figure IV.25.a le retrait expérimental, qui est la cause d'un mouvement supplémentaire du liquide. Un couplage du développement de la structure avec cet effet serait donc la prochaine étape pour améliorer ces prédictions.

## 2.4 Conclusion de l'étude

Le modèle CAFE a pu être appliqué à un benchmark expérimental de macroségrégation, notamment avec tabulation des données thermodynamiques. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec l'expérience en ce qui concerne l'évolution de la température dans le lingot. La recalescence prédite est identique à l'expérience, à un degré près. Les avantages de modéliser la croissance de la structure ont d'ailleurs été mis en évidence grâce aux comparaisons avec les résultats du modèle FE. Concernant la structure de grains, l'ajustement de la loi de germination a permis de retrouver une structure très proche de l'expérience, mais au détriment de l'évolution de la température. Il n'est pas possible, avec le modèle actuel, de prédire à la fois une recalescence et une structure de grains "optimales" au regard de l'expérience, ce qui laisse penser que les phénomènes de germination équiaxe ne sont pas correctement modélisés.

Concernant les cartes de ségrégation, l'accord avec l'expérience est correct, mais pas quantitatif. De plus, les canaux ségrégés n'ont jamais pu être prédits. Une piste d'amélioration porte sur la perméabilité de la zone pâteuse, qui est connue pour être anisotrope [Fel91, Fel98, Ram03]. L'orientation cristallographique des grains étant connue avec le modèle CAFE, il serait possible d'implémenter des lois plus complexes de perméabilité.

Cette comparaison a donné lieu au premier calcul 3D couplant croissance de la structure, macroségrégation et équations de Navier-Stokes. Ce calcul a été rendu possible grâce



**FIGURE IV.27** Carte de composition à la fin de la solidification (a) mesurée par ICP et prédite par (b) la simulation FE et (c) la simulation CAFE V\_I. L'échelle, en %pds, s'applique à toutes les images. Le rectangle noir représente le lingot complet.

à l'implémentation parallèle : les simulations présentées ont été résolues sur 64 cœurs, en environ 2 jours pour le modèle FE et 3 jours pour le modèle CAFE. Il est d'ailleurs intéressant de constater que l'expérience, initialement conçue comme un benchmark 2D, présente des phénomènes appréhendables en 3D uniquement. D'une manière générale, plus l'épaisseur du domaine est petite, plus les effets de bord seront grands et plus l'approximation 2D sera fautive. Or c'est souvent l'inverse qui est mis en avant dans des expériences présentées comme 2D de par leur domaine très fin !

### 3 Application au silicium photovoltaïque

Le silicium photovoltaïque était à l'origine issu des rebuts de la microélectronique, c'est-à-dire des lingots monocristallins obtenus avec le procédé de Czochralski. Depuis l'essor de l'industrie de l'énergie solaire, des filières dédiées à la production de silicium ont dû être montées. Or, le procédé Czochralski est extrêmement lent et coûteux, et la génération d'électricité photovoltaïque ne requiert pas d'avoir des monocristaux, bien que l'efficacité de conversion énergétique soit meilleure avec ces derniers. Actuellement, la majorité des panneaux produits et commercialisés sont constitués de silicium polycristallin ou amorphe, ce dernier étant efficace sous lumière diffuse, mais avec un moins bon rendement en général. Il est tout de même utilisé pour sa souplesse et son faible poids sur des produits mobiles (sacs à dos, calculatrices, etc.).

Concernant le silicium polycristallin, ses moins bonnes performances par rapport aux monocristaux viennent du fait que les joints de grains agissent comme des pièges pour les porteurs minoritaires, qui permettent de convertir photons en électricité. Aussi, les procédés industriels cherchent à augmenter au maximum la taille des grains pour améliorer le rendement des panneaux. C'est dans ce cadre que le modèle CAFE est utilisé, sur un procédé industriel de coulée semi-continue.

#### 3.1 Procédé EMIX

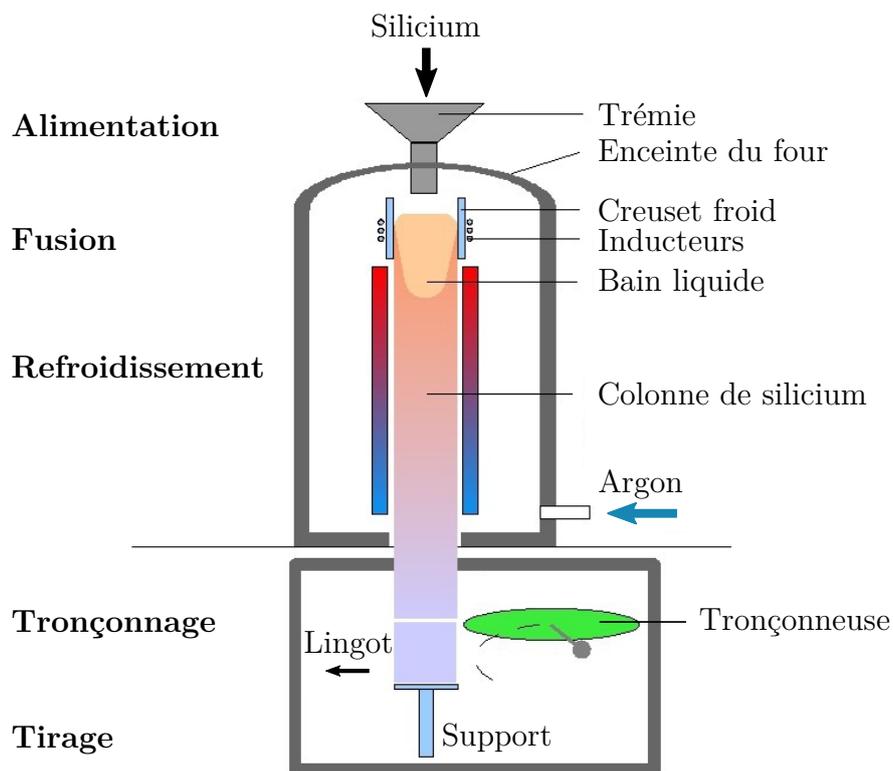
Le procédé de fabrication de la société EMIX (située à St-Maurice-la-Souterraine, France) s'apparente à la coulée semi-continue des lingots d'aluminium sur creuset froid [Gar01]. Un schéma du procédé est reporté à la figure IV.28. Un support en graphite revêtu de SiC et ayant une section carrée de 38,4 x 38,4 cm est placé dans le four. Le silicium est introduit par le haut à travers une trémie, sous la forme de solide broyé, dont la pureté est ajustée avec une torche à plasma. Cette dernière permet la fusion et l'évaporation des diverses impuretés. Des exemples classiques de compositions sont donnés dans le tableau IV.4. Un dopant est ajouté en très faible quantité, sous la forme de silicium fortement dopé en bore. Le bore possède 3 électrons de valence, soit un de moins que le silicium. Le semiconducteur obtenu est donc de type P, c'est-à-dire avec une densité d'électrons plus faible que le silicium pur. Plusieurs inducteurs placés en haut du four permettent de fondre le solide. Le champ électromagnétique produit par induction maintient également un petit espace entre le creuset en cuivre et le bain, ce qui est un avantage majeur du procédé. Grâce à cet espace, il y a peu de contamination du matériau par le moule, qui peut être maintenu à plus basse température (d'où son appellation de "creuset froid"). De plus, pour éviter au maximum l'oxydation du silicium liquide, le four est maintenu sous atmosphère contrôlée d'argon. Enfin, le champ électromagnétique permet de brasser le liquide, ce qui est *a priori* bénéfique pour l'homogénéisation, mais qui peut également entraîner la germination de grains équiaxes par fragmentation. La colonne de silicium descend progressivement dans le four de refroidissement, à une vitesse d'environ 1,7 mm/min, soit 28  $\mu\text{m/s}$ . Plus bas, des fours de recuit sont installés pour diminuer les contraintes résiduelles et les dislocations dans le silicium solide, qui peuvent être problématiques lors de la découpe ultérieure des lingots et pour le rendement des panneaux. Régulièrement, la descente est stoppée pour découper la colonne solidifiée, d'où la désignation de coulée semi-continue.

Les lingots coupés sont parallélépipédiques, de section carrée, avec une arête de 38,4 cm et une hauteur de 50 cm environ. Les surfaces extérieures, présentant une forte densité

	Métallurgique (MG)	MG amélioré 1	MG amélioré 2	Solaire
Bore	9,4	4,9	1,4	< 0,001
Phosphore	8,2	6,5	5,1	< 0,001
Carbone	67	26	36	< 10
Oxygène	210	21	13	< 1

**TABLE IV.4** Impuretés principales en ppm pour différents types de silicium (données EMIX).

de grains, sont scalpées, et les lingots coupés verticalement en quatre. Le format final de chaque partie est de section carrée, de 15 cm d'arête. Par la suite, ces quarts de lingot seront découpés horizontalement avec une scie à fil pour obtenir des plaquettes (*wafers*) d'environ 200  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Celles-ci pourront ensuite être préparées pour intégrer un panneau solaire. Généralement, ces plaquettes sont texturées en surface par une solution acide, afin de former des aspérités qui permettront de capter plus de lumière. Puis, les plaquettes sont dopées en surface avec un dopant de type N, par exemple du phosphore. Enfin, un traitement antireflets est appliqué par formation de nitrures, et les connexions électriques sont installées.



**FIGURE IV.28** Procédé EMIX de coulée semi-continue de silicium polycristallin.

La figure IV.29 présente une coupe horizontale du lingot EMIX, avant que ses faces extérieures ne soient scalpées et que le lingot ne soit coupé en quatre. On peut remarquer deux zones où la densité de joints de grains est importante : au niveau des faces extérieures, où une germination importante a lieu en début de solidification, et dans la zone centrale. Pour cette dernière, nous montrerons plus loin qu'il s'agit en fait de grains colonnaires orientés verticalement, alignés sur le gradient thermique. L'objectif du procédé est donc

de maximiser la zone intermédiaire, où les grains sont majoritairement colonnaires et horizontaux, pour diminuer la densité de joints de grains sur les wafers, qui sont des coupes horizontales.



FIGURE IV.29 Coupe horizontale du lingot, avant découpe des faces extérieures.

## 3.2 Modélisation

### Cinétique de croissance

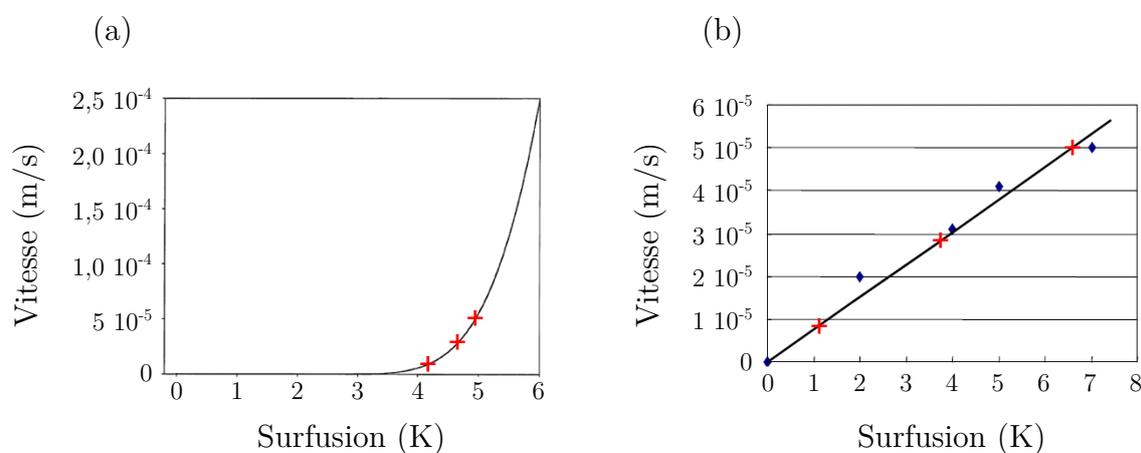


FIGURE IV.30 Vitesse de croissance en fonction de la surfusion, (a) calculée par une méthode Monte-Carlo [Bea00] et (b) mesurée expérimentalement [Fuj08]. Les trois vitesses de tirage sont indiquées par une croix rouge.

Concernant la cinétique de croissance, deux lois tirées de la littérature sont présentées par la figure IV.30. La première (a) a été obtenue à partir de simulations Monte-Carlo sur la croissance des plans (111) [Bea00]. La deuxième (b) est une mesure expérimentale, tirée de l'observation de la croissance d'un monograin par microscope avec une caméra CCD [Fuj08]. Les trois vitesses de tirage proposées par EMIX (8,3, 28 et 50  $\mu\text{m/s}$ ) sont indiquées sur le graphique par des croix, et correspondent à une surfusion de croissance comprise (a) entre 4 et 5 K ou (b) entre 1 et 7 K. Une question que l'on peut légitimement se poser est la nature (rugueuse ou facettée) de l'interface solide liquide à ces surfusions.

En effet, les données de la littérature sont loin d'être claires à ce sujet. Il a déjà été noté que seuls les plans  $\{111\}$  sont à même de former des facettes (voir tableau I.1) [Bea00, Nag05, Fuj08]. Cependant, plusieurs régimes de croissance ont été observés : en dessous d'une certaine vitesse critique, il semblerait que l'interface soit plane [Fuj08]. Ces auteurs évaluent la surfusion critique correspondante comme étant située entre 10 et 13 K, mais des incertitudes sur la mesure demeurent. Il n'est donc pas certain que des facettes se forment dans le procédé EMIX. Notons également que pour des vitesses de croissance élevées, c'est-à-dire une surfusion supérieure à 100 K, la libération de chaleur latente devient prépondérante par rapport à la cinétique d'attachement des atomes, et une interface rugueuse est observée [Nag05].

Un autre point critique est la morphologie des grains, qui ne sont généralement pas dendritiques (sauf pour des vitesses de croissance élevées, où des dendrites non facettées orientées selon les directions  $\langle 100 \rangle$  ont été observées [Nag05]). On ne peut donc pas à proprement parler de cinétique de pointe. De plus, la minimisation de l'énergie de surface solide-liquide peut avoir une influence lors de la compétition de croissance entre plusieurs grains non dendritiques. Une observation directe de ce phénomène a été reportée dans la littérature [Fuj04], où deux modes de croissance ont été mis en évidence en faisant croître deux grains dont les directions alignées avec le gradient thermique sont  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ . Pour une faible vitesse de croissance,  $v = 0,02$  mm/min ( $\Delta T = 3,8$  K), l'interface solide-liquide est plane. Le grain  $\langle 111 \rangle$  présente une interface avec le liquide formée par le plan cristallographique (111), qui a une plus faible énergie de surface solide-liquide que le plan (100). Pour cette raison, le grain  $\langle 111 \rangle$  s'étend au détriment de l'autre grain. Au contraire, pour  $v = 5,8$  mm/min ( $\Delta T = 6,3$  K), le grain le plus rapide, c'est-à-dire celui dont la direction  $\langle 100 \rangle$  est alignée avec le gradient thermique, forme des facettes et s'étend. Des simulations ultérieures en champ de phase ont permis de retrouver ce résultat [Che08]. La surfusion de transition semble donc être du même ordre que les surfusions du procédé EMIX.

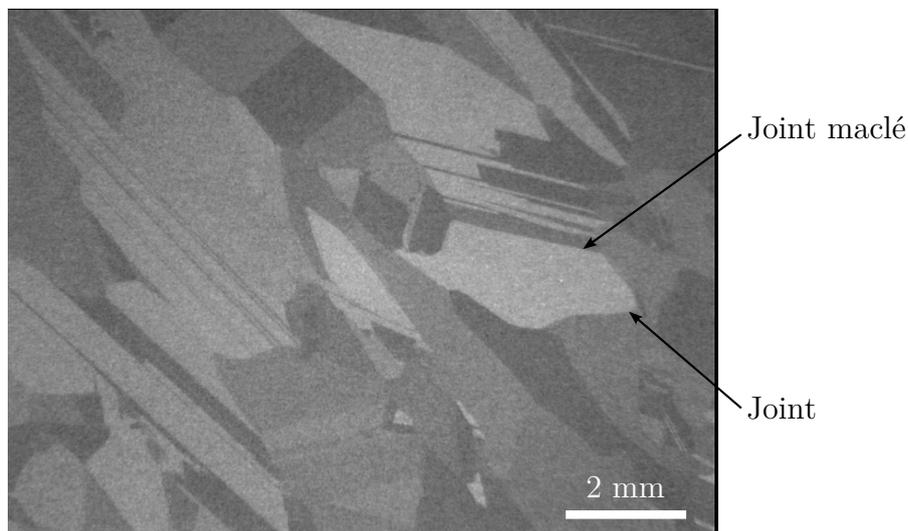
Toutes ces données sont pour l'instant qualitatives, et sont notamment dépendantes de la pureté du matériau. Il a donc été choisi de conserver la croissance octaédrique selon les directions préférentielles  $\langle 100 \rangle$  du modèle CAFE, et une interface non facettée. Au niveau de la loi de croissance, dans une première approximation, la cinétique présentée à la figure IV.30.a est utilisée sous la forme d'une loi puissance, dont les paramètres sont donnés dans le tableau IV.5. Bien qu'en contradiction avec les résultats expérimentaux (fig. IV.30.b), les incertitudes de la mesure et la dispersion importante entre toutes les mesures de la littérature [Mil11] font émettre des doutes quant à ces résultats. Il sera par la suite indispensable d'utiliser des cinétiques de croissance obtenues expérimentalement, avec des procédures fiables et validées, mais de telles données n'existent pas à ce jour.

## Germination et macles

Concernant la cinétique de germination, deux lois sont définies. D'une part, une haute densité de germes est appliquée sur les faces verticales du lingot en contact avec l'argon et sur la face inférieure. D'autre part, une densité plus faible est définie dans le volume.

Le maclage n'est ici pas pris en compte, or il a été observé sur des lingots industriels qu'environ la moitié des joints de grain résultent d'un ou plusieurs maclages [Voi98]. Les macles sont des défauts atomiques d'empilement qui peuvent apparaître au cours de la solidification. Ce sont des défauts cristallins cohérents, plus ou moins répandus dans les métaux, mais systématiques dans le silicium. Il s'agit d'une rotation d'un plan cristallin

par rapport à sa normale. Les macles ont en général une très basse énergie, beaucoup plus faible que des joints de grains classiques (incohérents). C'est le cas pour les macles  $\Sigma 3$  avec  $0,06 \text{ J/m}^2$ , quand un joint de grain aura une énergie de l'ordre de  $1 \text{ J/m}^2$ . La théorie générale est que les macles apparaissent pour diminuer l'énergie interfaciale du système. Les plans maclés sont donc susceptibles d'être alignés sur le gradient de température, ce qui a été validé expérimentalement dans le silicium [Kit05].



**FIGURE IV.31** Joints de grains et macles dans une plaquette EMIX de silicium polycristallin.

Cependant, le mécanisme de formation des macles est encore loin d'être clair. Elles sont cependant toujours associées à une interface facettée. Or, la théorie indique que générer une macle au milieu d'une facette nécessite une très grande énergie. Elles ne peuvent donc se former qu'aux points triples (par exemple, à l'interface entre deux grains et le liquide, ou entre un grain, le liquide et le moule). Ce résultat a été validé à partir des théories classiques de germination [Buz88], et par dynamique moléculaire [Poh10]. Cependant, elles contredisent quelques résultats expérimentaux. Fujiwara *et al.* ont en effet observé des doubles macles  $\Sigma 3$  parallèles au milieu de certains grains [Fuj08], mais l'absence d'observation directe de la formation des macles rend l'analyse difficile. En réalité, d'autres paramètres influencent l'apparition des macles, en particulier les impuretés. Notamment, les précipités SiC peuvent induire des structures de macles stables. Malheureusement, le seul modèle théorique prédisant l'apparition des macles [Duf10] manque de données précises (énergies d'interface en particulier) et n'a pu être validé expérimentalement.

Dans une première approximation, on peut apparenter la germination dans le volume à du maclage, à la différence fondamentale que la position et l'orientation des nouveaux grains sont aléatoires. Cependant, le maclage apparaît pour réorienter les grains avec le gradient thermique, et c'est exactement le mécanisme qui se met en place en introduisant une germination dans le volume : les nouveaux grains alignés avec le gradient auront tendance à se développer au détriment des autres. Si les nouveaux grains sont désalignés, ils disparaîtront rapidement. Il s'agit bien sûr d'une approximation très grossière, et il faudra dans le futur considérer le maclage à travers des modèles physiques.

### Mise en données

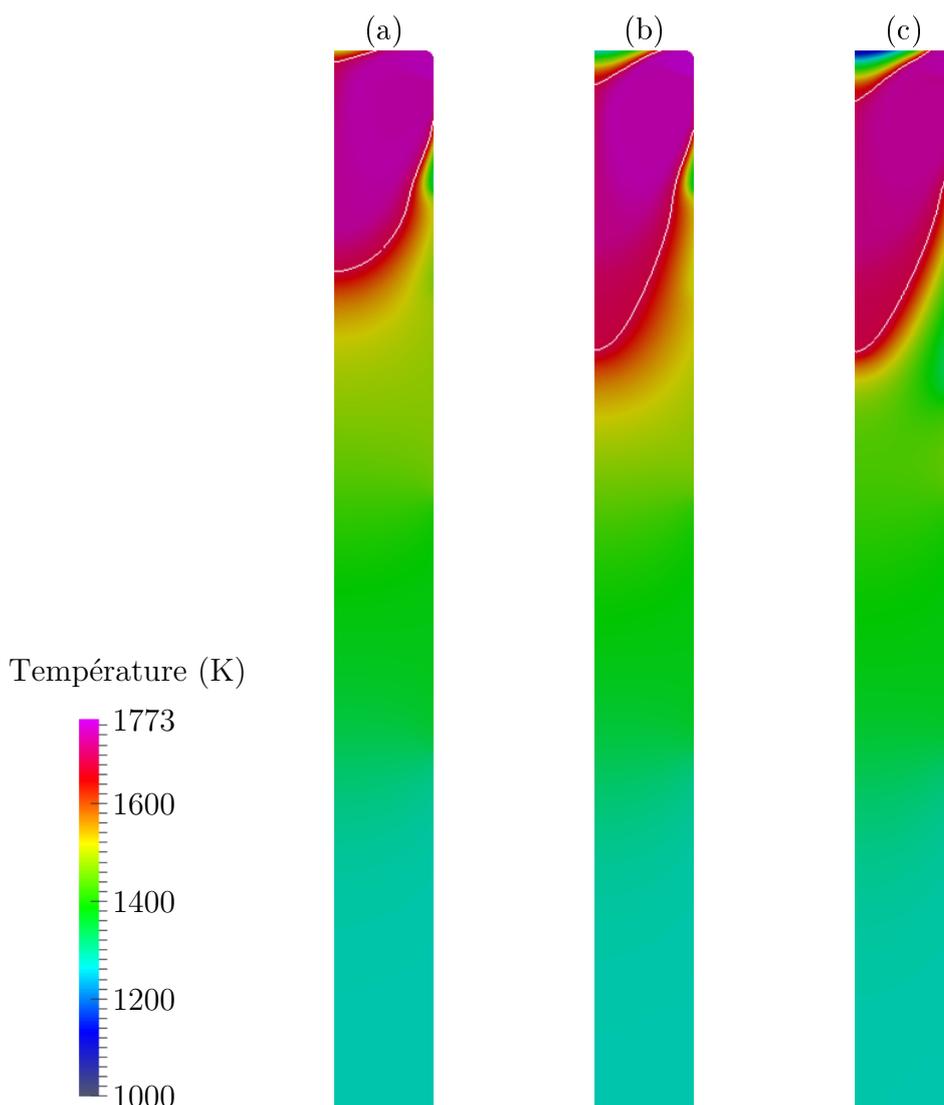
On l'a vu, la solidification du silicium est encore relativement mal connue, et les données quantitatives quasiment inexistantes. L'enjeu ici n'est donc pas de modéliser les phénomènes propres au silicium, comme l'interface facettée ou les macles, mais plutôt de mener un calcul sur un lingot de grand volume.

Pour des raisons de symétrie, il est possible de se limiter à un quart de lingot, qui aura une section de 19,2 x 19,2 cm. Concernant la longueur simulée, il n'y a évidemment pas de limite au niveau du procédé. Cependant, on peut considérer que la structure de grains atteint un régime de croissance stable à partir d'une certaine longueur, et que la structure au-delà sera très répétitive. En conséquence, l'objectif est ici de considérer un lingot d'au moins un mètre de long.

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Température de fusion	$T_m$	1685	K
Cinétique de pointe	$a_1$	$5,3516 \cdot 10^{-11}$	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-k_1}$
	$k_1$	8,5878	-
	$\Delta T_N^S$	1,5	°C
Germination (surface)	$\Delta T_\sigma^S$	0,5	°C
	$n^S$	$10^6$	$\text{m}^{-2}$
	$\Delta T_N^V$	1,5	°C
Germination (volume)	$\Delta T_\sigma^V$	0,5	°C
	$n^V$	$1,12 \cdot 10^7$	$\text{m}^{-3}$
	Pas de temps	$\Delta t$	10

**TABLE IV.5** Paramètres du modèle CAFE pour la solidification du silicium polycristallin.

Il a déjà été montré que la librairie CimLib permet de résoudre des équations par éléments finis sur des domaines à l'échelle des procédés industriels [Hac12b]. Cependant, la résolution des équations macroscopiques nécessiterait ici d'implémenter des solveurs supplémentaires, en particulier pour ce qui est de l'électromagnétisme. D'autre part, la résolution correcte de ces équations impose de modéliser le procédé dans son ensemble, avec échanges de chaleur entre les différentes pièces du four, rayonnement, etc. La constitution précise du four et les paramètres du procédé ne sont pas disponibles, mais même s'ils l'étaient, cette mise en données est en soi un travail à part entière. Enfin, au vu des approximations faites sur la croissance du silicium, cet excès de précision n'est pas nécessaire. Les équations macroscopiques (conservation de l'énergie, du soluté et de la quantité de mouvement) ne seront donc pas résolues ici. La thermique est imposée d'après un champ de température 2D, calculé par EMIX avec le logiciel éléments finis COMSOL Multiphysics®. Le champ calculé est statique, sur un domaine de 19,2 x 208 cm, pour trois vitesses de tirage : 8,3, 28 et 50  $\mu\text{m/s}$ . Ces trois champs sont donnés à la figure IV.32. L'isotherme correspondant à la température de fusion est tracée en blanc. En haut du lingot, une petite zone est en dessous de cette température : elle correspond à la zone d'alimentation où est introduit le silicium solide. Ce dernier est introduit à température ambiante, aussi l'énergie nécessaire à sa fusion est importante, et le champ de température s'en trouve affecté. Notons que la forme et la profondeur du puits diffèrent selon la vitesse de tirage.



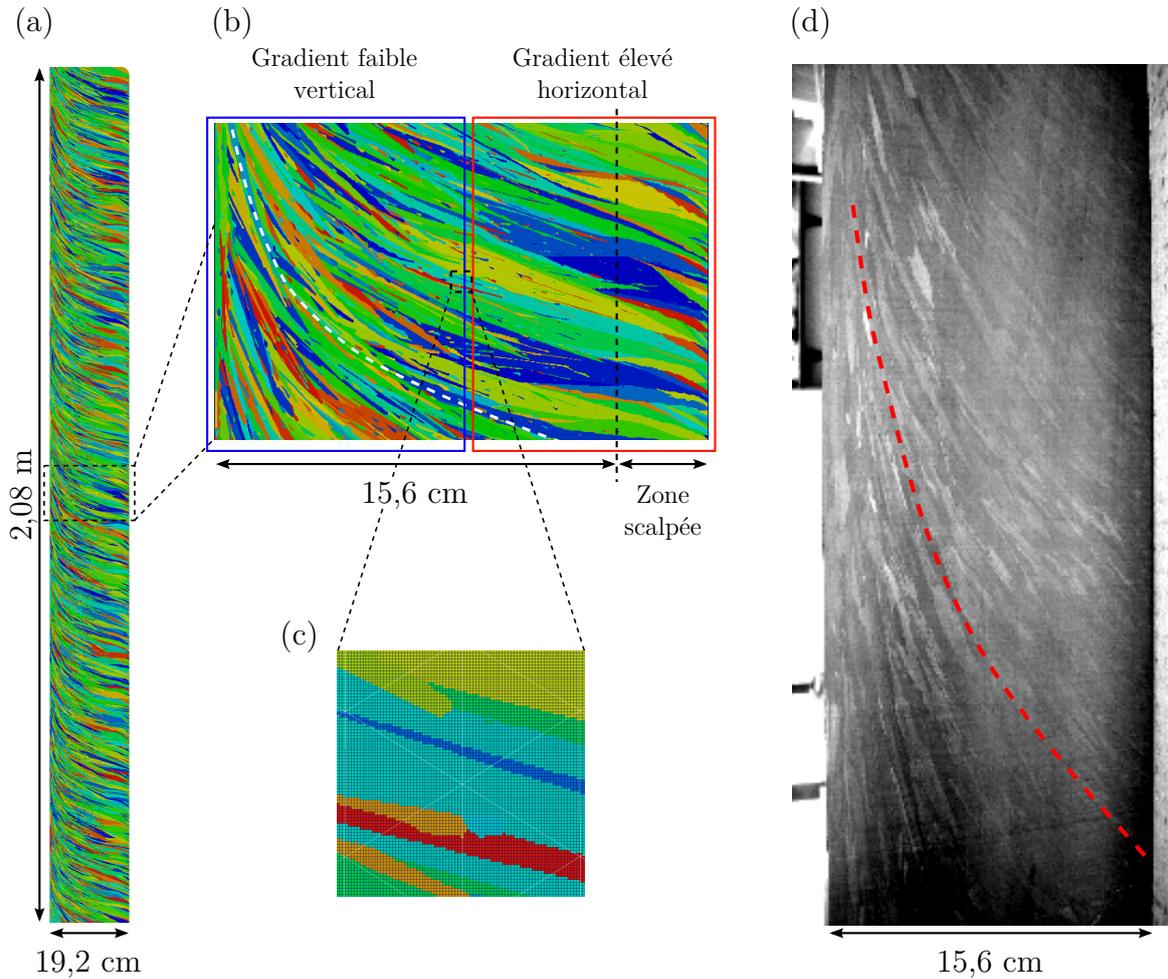
**FIGURE IV.32** Champs de température 2D pour une vitesse de tirage de (a) 8,3, (b) 28 et (c) 50  $\mu\text{m/s}$ . L'isotherme en blanc correspond à la température de fusion de 1685°C.

### 3.3 Résultats

#### Calculs 2D

Le modèle CAFE est tout d'abord résolu en 2D avec les champs EMIX présentés à la figure IV.32. La température est imposée, i.e. un couplage faible est utilisé en thermique et la croissance de la structure de grains n'a aucune influence sur le champ de température. Le domaine considéré est un rectangle de 2,08 x 0,192 m. Le maillage est fixe, et le champ de température EMIX est interpolé sur ce maillage, avec un certain décalage en hauteur qui évolue au cours du temps. Au début de la simulation, le champ EMIX est décalé de telle sorte que le plus haut point corresponde au plus bas nœud du maillage. Le champ EMIX est ensuite décalé à chaque pas de temps, en fonction de la vitesse de tirage, et ses valeurs interpolées linéairement sur le maillage. Les zones du maillage où le champ EMIX n'est pas défini sont simplement ignorées lors de la croissance des grains. Cette procédure permet de mimer le déplacement du lingot vers le bas. Le temps de solidification de la

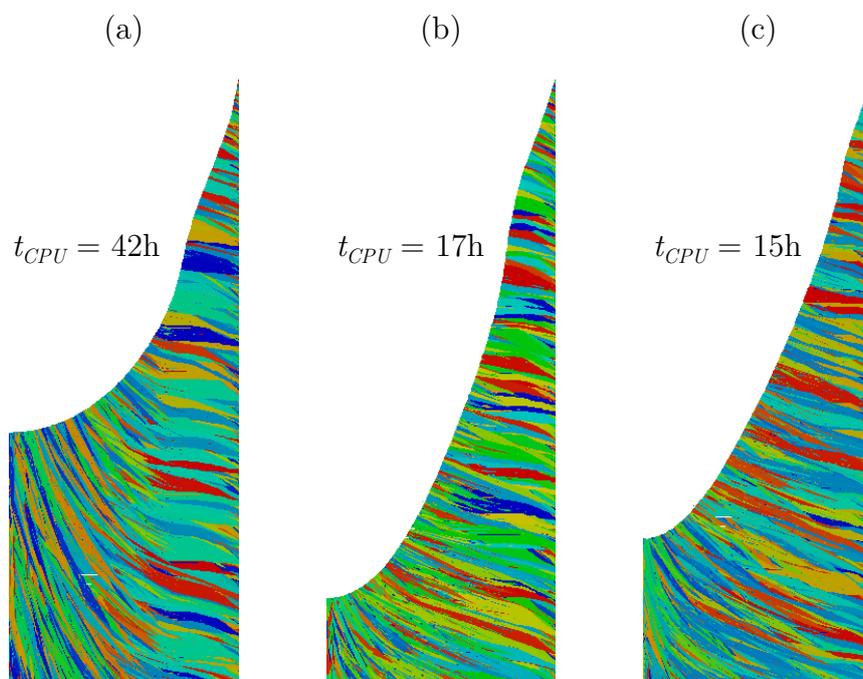
totalité du lingot est de 69h, 20h et 12h pour les vitesses de tirage de 8,3, 28 et 50  $\mu\text{m}/\text{s}$  respectivement.



**FIGURE IV.33** Vues de la structure de grains avec une vitesse de tirage de 28  $\mu\text{m}/\text{s}$ , (a-c) selon les prédictions du modèle CAFE 2D et (d) expérimentale. La direction principale des grains sélectionnés est tracée en ligne pointillée.

La figure IV.33 présente la structure de grain simulée par le modèle CAFE pour la vitesse de tirage de 28  $\mu\text{m}/\text{s}$  avec plusieurs niveaux de zoom, et une photographie du lingot expérimental, dont le contraste a été augmenté. On peut notamment voir sur la figure IV.33.c la grille de cellules, qui est beaucoup plus fine que le maillage éléments finis. La taille de cellules est  $l_{CA} = 100 \mu\text{m}$ , ce qui correspond à 40 millions de cellules sur tout le domaine. L'allocation dynamique permet cependant de n'en considérer qu'une petite partie à un temps donné, ce qui signifie que les 40 millions de cellules ne sont jamais stockées en mémoire simultanément. La réalisation d'images de la structure complète nécessite donc une reconstruction, ce qui est fait en post-processing en combinant les images à chaque pas de temps. Ce calcul a été effectué sur un seul cœur en 17h30, soit moins de temps qu'il n'en faut pour couler le lingot. Sur la figure IV.33.a, il est clair que la structure de grain se répète dans la hauteur, il n'est donc pas nécessaire de modéliser la solidification sur la totalité des 2,08 m. La figure IV.33.b est un zoom sur la structure qui permet de mieux révéler les directions principales des grains sélectionnés lors de la croissance. Dans la première partie solidifiée, au niveau de la face droite, le gradient de

température est très important et horizontal, comme on peut le voir sur la figure IV.32.b. Après germination initiale sur la face, les grains dont les directions  $\langle 100 \rangle$  sont horizontales se développent préférentiellement. Puis, vers le milieu du lingot, le gradient devient peu à peu vertical et la texture suit cette rotation. De plus, l'intensité du gradient diminue, il devient donc possible de germer des grains dans le volume devant le front. La figure IV.32.d présente une vue expérimentale du lingot, avec en ligne pointillée la direction principale des grains. On retrouve qualitativement les prédictions du modèle CAFE, avec une densité plus importante de grains au centre et une réorientation des grains au cours de la croissance. Cependant, la direction est de manière générale plus orientée vers le haut dans l'expérience. La réorientation des grains est ici clairement gouvernée par le gradient thermique, aussi, même si la cinétique de croissance et les phénomènes propres au silicium sont susceptibles de modifier la structure de grains par rapport aux approximations utilisées dans le modèle CAFE, il est probable que cette différence d'orientation vienne surtout du champ de température qui n'est pas représentatif de l'expérience. Enfin, l'approximation 2D est très limitante pour ce cas, que ce soit pour le champ de température ou la structure de grains. La raison principale est la forme du lingot, qui a une section carrée et ne peut pas être considéré comme axisymétrique.



**FIGURE IV.34** Différentes structures de grains 2D et interface solide-liquide pour des vitesses de tirage de (a) 8,3, (b) 28 et (c) 50  $\mu\text{m/s}$ . Le temps de calcul est indiqué pour un cœur.

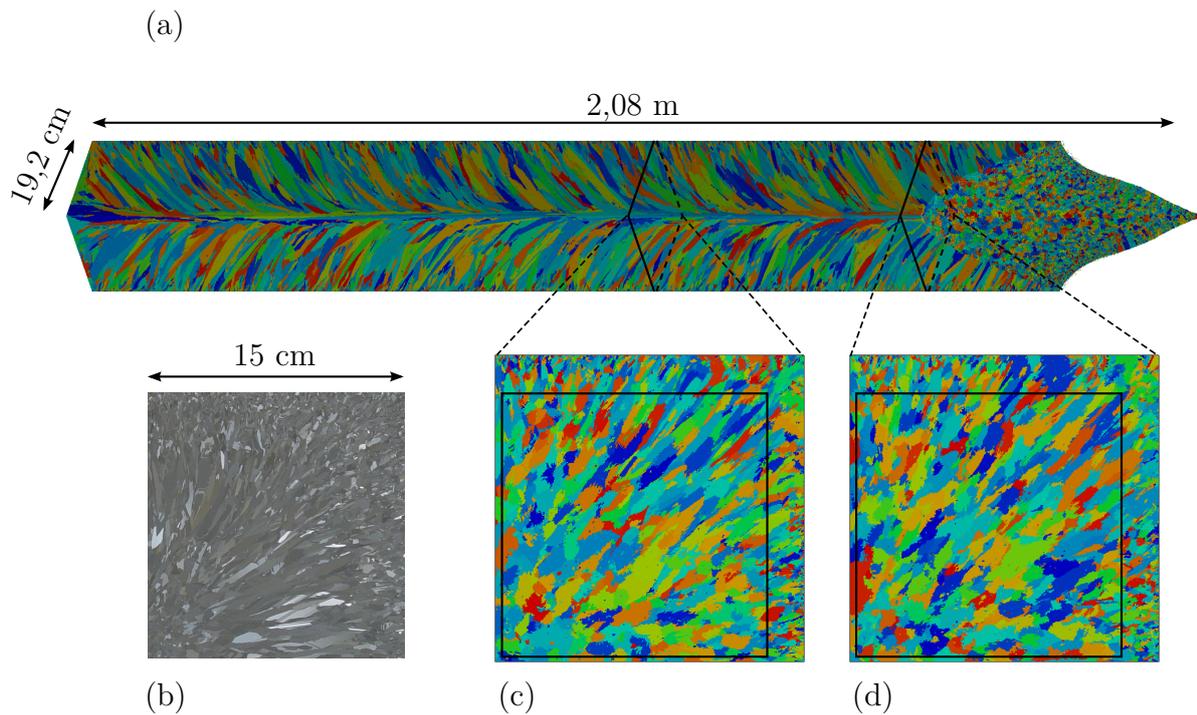
La figure IV.34 montre l'évolution de la structure de grains 2D en fonction de la vitesse de tirage, et la forme du puits. L'objectif du procédé est d'avoir des grains les plus horizontaux possible : il apparaît sur la figure IV.34 que l'orientation principale des grains est liée à la forme du puits, donc à la direction du gradient thermique. La faible vitesse de tirage (a) présente un gradient vertical sur une grande partie du puits, ce qui est dommageable. Le gradient est logiquement plus horizontal avec des plus grandes vitesses de tirage, mais d'autres problèmes peuvent alors arriver, par exemple à cause de l'expansion volumique du silicium à la solidification.

### Calcul 3D

La simulation 3D n'est ici effectuée que pour estimer la faisabilité d'un tel calcul, et les limites du code parallèle. En effet, aucune simulation 3D du champ thermique n'est disponible. Aussi, la température imposée ici est le champ obtenu avec la vitesse de tirage de  $28 \mu\text{m/s}$  en 2D (figure IV.32.b), étendu d'un facteur  $\sqrt{2}$  selon la plus petite largeur de façon à correspondre à la diagonale du lingot parallélépipédique. Une rotation est ensuite appliquée autour de l'axe vertical central du lingot, et la température est imposée de la même manière qu'en 2D.

La figure IV.35 présente les résultats de la simulation, ainsi qu'un wafer (b). La taille de cellule est de  $250 \mu\text{m}$ , ce qui veut dire 4,9 milliards de cellules sur tout le lingot. Le nombre total de grains différents s'élève à 1,6 million. Ce calcul a été effectué sur 32 cœurs, en un peu plus de 32 jours. La taille de cellule est sensiblement trop grande pour obtenir des résultats corrects, comme on peut le constater au niveau des joints de grains sur les figures IV.35.c et d. Cependant, la taille de cellule initialement visée de  $100 \mu\text{m}$  revient à multiplier le nombre total de cellules par  $(250/100)^3 = 15,6$ . Il faudrait donc en toute logique utiliser 15,6 fois plus de cœurs de calcul, soit 500 cœurs. Hormis le fait que l'utilisation de 500 cœurs pendant un mois est difficilement possible, et concrètement irréaliste pour une industrie, il a été montré qu'au-delà de 64 cœurs, l'efficacité parallèle du code était faible, et donc le temps de calcul diminue peu. Or, ce temps serait au minimum multiplié par 15,6 en passant à une taille de  $100 \mu\text{m}$ . En fait, le facteur multiplicatif sera vraisemblablement plus proche de  $(250/100)^4 = 39$ , étant donné que le nombre de micro pas de temps est lui aussi impacté par cette diminution de taille. Il n'est donc pas envisageable de mener ce type de calcul sur 500 cœurs sans valider plus en détail le comportement du code sur un tel nombre de cœurs. Bien que des concessions puissent être faites, comme calculer la structure de grains sur une longueur moins importante, il est clair que l'implémentation actuelle ne se prête pas encore à un tel volume de données. Il faudra donc, pour arriver à prendre en compte des volumes aussi importants, travailler à l'amélioration de l'algorithme de calcul parallèle, et à un meilleur équilibrage des charges de calcul. Notons pour finir que le volume de données est ici très important : l'image IV.35.a a nécessité le traitement d'environ 135 Go de données, alors que seules les cellules visibles (à l'interface solide-liquide et aux frontières du lingot) sont stockées dans les fichiers sortie.

Étant donné les diverses approximations, tant sur la physique propre au silicium que sur le champ de température 3D, les résultats qualitatifs obtenus sont raisonnables. La tendance observée sur le wafer est bien retrouvée, même si les densités de grains et leur forme présentent des différences notables. Il serait intéressant à l'avenir de comparer des données EBSD [Gal11] avec les orientations prédites par le modèle CAFE, afin de vérifier le changement de texture de la zone extérieure à la zone centrale du lingot.



**FIGURE IV.35** (a) Lingot 3D simulé avec le modèle CAFE et une taille de cellule de  $250\ \mu\text{m}$ , (b) wafer expérimental, et sections planes horizontales de la simulation CAFE à (c) 1,1 et à (d) 1,8 m du bas du lingot. Les cadres noirs sur (c) et (d) indiquent approximativement la zone correspondante au wafer (b) après découpe.



# Conclusion et perspectives

Le développement de la structure de grains et de la ségrégation chimique sont des phénomènes apparaissant en premier lieu durant la solidification : bien qu'elles puissent être modifiées par la suite avec des traitements thermiques, l'optimisation de la solidification initiale peut permettre de réduire l'importance de ces traitements. La prédiction de la structure et de la ségrégation est donc un intérêt de premier ordre. Malheureusement, la structure de grains est trop souvent ignorée à l'échelle macroscopique à cause des ressources numériques nécessaires au calcul. Le fait que les prédictions ne soient correctement approchées qu'en 3D ne fait qu'augmenter la difficulté de ces calculs. La présente étude avait donc pour objectif de développer un modèle automate cellulaire-éléments finis utilisant le calcul parallèle, pour modéliser la germination et la croissance des grains durant la solidification en trois dimensions. Ce projet s'est inscrit dans le cadre du financement ANR Habisol-Si X, avec comme contexte général la prédiction de structures de grains dans le silicium polycristallin.

Par rapport aux descriptions précédentes de la littérature, le modèle CAFE proposé ici présente plusieurs améliorations et nouveautés :

- le suivi de la croissance de plusieurs structures de solidification, par exemple dendritique et eutectique,
- le calcul des chemins de solidification (i.e. évolution des fractions de phases et de leur composition) à l'échelle du maillage plutôt qu'au niveau de la grille de cellules, assurant une cohérence entre enthalpie, température, et fractions de phases,
- différents schémas de couplage de la structure avec l'équation de conservation de l'énergie, et en particulier le couplage itératif explicite qui présente l'avantage de ne pas augmenter de manière significative le temps de calcul, mais qui permet de fortement stabiliser la résolution des équations et d'assurer une convergence de la résolution en énergie,
- une tabulation des données thermodynamiques (fractions, compositions et enthalpie des phases),
- une optimisation de l'algorithme séquentiel, et en particulier de l'allocation dynamique,
- une implémentation 3D utilisant le calcul parallèle.

Tous ces aspects ont fait l'objet de multiples comparaisons, avec des solutions analytiques, d'autres modèles numériques et l'expérience. Parmi ces comparaisons, la simulation de la macroségrégation par convection naturelle est sans doute la plus évocatrice. Le couplage avec le développement de la structure de grains a permis d'atteindre un degré de précision avancé. Ces résultats proviennent clairement du calcul 3D et des couplages, qui sont finalement les grands intérêts de ce modèle.

La comparaison avec le modèle champ de phase constitue un travail novateur rarement réalisé, qui est de confronter deux modèles destinés à des échelles différentes sur un même

cas commun. Le champ de phase suit directement l'interface solide-liquide, et résout donc la microstructure dendritique des grains. Le modèle CAFE, quant à lui, ne fait que suivre l'enveloppe des grains, et approche les grandeurs internes (fractions de phases, etc.) par des quantités moyennées. Il a été montré que dans le cas de la solidification d'un unique grain équiaxe pour un alliage binaire, le champ de phase est très limité au niveau de la taille du domaine représentable, surtout en 3D. Cependant, les comparaisons ont été faites en assumant que les résultats du champ de phases sont quantitatifs. Elles montrent un accord assez bon entre les deux modèles. Il en est ressorti que si les dimensions caractéristiques de la microstructure sont grandes par rapport au volume considéré, les approximations du modèle CAFE ne donnent pas des résultats corrects, ce qui est prévisible vu les hypothèses de la prise de moyenne. Par contre, si la microstructure est petite par rapport au domaine, les grandeurs moyennes prédites par le modèle CAFE sont proches de celles données par le champ de phase. De plus, il a été montré comment le champ de phase (ou d'autres modèles de la même échelle) peut aider à calibrer le modèle CAFE et ses paramètres. Cependant, les incertitudes quant à la convergence du champ de phase font que le caractère quantitatif des résultats est loin d'être sûr. D'autres recherches devront être menées dans cette direction, mais cette étude constitue un premier pas significatif démontrant faisabilité et intérêt.

D'autre part, le modèle CAFE a été mis en application pour modéliser l'expérience du projet ANR-SMACS, qui a été conçue dans le but de monter un benchmark de macroségrégation par convection naturelle et forcée [Hac12a]. Il s'agit là du premier calcul couplé en 3D de la structure de grains et de la macroségrégation. Nous avons pu obtenir un excellent accord avec l'expérience sur l'évolution de la température dans le lingot, en particulier au niveau de la recalescence. Le calcul parallèle a ici joué son rôle, permettant de compléter les simulations en un temps raisonnable (2 à 3 jours). La structure de grains est quant à elle assez bien reproduite, même si les limites du modèle de germination sont apparues. Il faudrait pour y remédier mener des expériences dédiées, notamment sur la fragmentation des bras dendritiques. Les cartes de composition ont pu être prédites de façon qualitative. Par contre, l'apparition des freckles n'a jamais été simulée. La prise en compte d'une perméabilité anisotrope est la prochaine étape à ce niveau.

Concernant la simulation du lingot de silicium en coulée semi-continue, les résultats, bien que relativement proches de la réalité, n'ont pas vocation à représenter précisément les phénomènes physiques spécifiques à la solidification du silicium. Il faudrait pour cela implémenter de nouveaux mécanismes, comme la croissance de facettes, la transition d'une interface rugueuse à une interface facettée, et la formation de macles. Bien que l'implémentation concrète de ces mécanismes dans le cadre de la méthode CA poserait certainement de nouveaux problèmes, il est actuellement prématuré d'en parler puisque les modèles physiques sous-jacents ne sont ni prêts, ni validés expérimentalement. Le calcul a donc ici plutôt pour vocation de tester les limites de l'algorithme parallèle. Et en effet, le calcul 3D sur un lingot de 19,2 x 19,2 x 208 cm présente un challenge numérique non négligeable : avec le code actuel, la structure de grains a pu être simulée sur tout ce domaine en environ 1 mois sur 32 cœurs, pour un total de 4,9 milliards de cellules et 1,6 million de grains différents. Cependant, les tests ont montré que l'efficacité de l'algorithme CA sur un grand nombre de cœurs (>64) chute rapidement. Bien que la mémoire semble assez bien répartie et gérée jusqu'à 256 unités de calcul, la limitation actuelle est clairement imposée par le temps de calcul. Aussi, l'objectif initial qui était de prendre en compte des cellules de 100  $\mu\text{m}$  d'arête n'a pu être atteint. Il reste donc de ce côté un vaste champ d'améliorations, que ce soit au niveau de l'optimisation des parties séquentielles du code

(c'est-à-dire améliorer la rapidité de résolution des algorithmes individuels sur chaque cœur), au niveau des stratégies parallèles d'échange de données, ou encore au niveau du partitionnement et de l'équilibrage. Sur ce dernier point, les améliorations demanderont d'estimer plus précisément le coût de calcul de chaque cellule, afin d'équilibrer au mieux la charge entre les cœurs. D'autre part, il deviendra peut-être nécessaire de partitionner la grille de cellules indépendamment d'un maillage éléments finis. Il serait alors possible de mieux optimiser le volume de données échangées entre les unités de calcul.

Certains aspects du couplage restent par ailleurs à valider. En particulier, toutes les combinaisons au niveau des modèles de microségrégation n'ont pas été testées. Par exemple, il serait très intéressant d'utiliser le modèle de Wang-Beckermann avec des tabulations des enthalpies des phases. Le problème principal de ce genre de combinaison réside dans la convergence de la résolution. D'autre part, le calcul de la cinétique de croissance au niveau de l'automate cellulaire ne se fait pour l'instant strictement qu'avec une linéarisation du diagramme de phase. Une prochaine étape serait donc de tabuler la température d'équilibre des phases en fonction de la composition en éléments d'alliages. À ce propos, l'application du modèle CAFE à des multicomposés demande encore à être réalisée. Outre le couplage avec des modèles de microségrégation plus complets [Tou11], il sera nécessaire de tester dans quelle mesure la partie CA est capable de rendre compte de la compétition de croissance entre différentes structures : dendritiques, eutectiques, et péritectiques. Pour l'instant, les seuls calculs menés avec deux structures (dendritique et eutectique) ne considèrent pas de zone couplée, c'est-à-dire où l'eutectique croît directement dans le liquide libre, et entre en compétition avec les grains dendritiques. Les expériences *in situ* de solidification d'alliages métalliques se généralisant, il serait intéressant de modéliser un cas complet avec modèle de Wang-Beckermann, tabulations des enthalpies, convection et macroségrégation.

Par rapport aux phénomènes physiques pris en compte, de nombreuses perspectives sont encore ouvertes. D'une part, la refusion de la structure sera dans un avenir proche considérée. Cet aspect permettra notamment de modéliser des procédés de soudage. La difficulté principale est liée à l'allocation dynamique : puisque la structure initiale est susceptible d'être refondue, elle ne peut être simplement libérée de la mémoire. Aussi, il sera nécessaire de mettre en place une stratégie de stockage des parties inutilisées du lingot, qui pourront ensuite être rechargées dynamiquement au moment de la refusion. Ce stockage pourrait se faire aussi bien dans la mémoire vive que dans la mémoire morte. D'autre part, les transformations à l'état solide ne sont pour l'instant prises en compte que sous la forme d'évolution des fractions moyennes des phases. Or, il est clair que les joints de grains ne sont pas fixés après solidification : en fait, ces joints continuent d'évoluer tant que la température est assez élevée. La prise en compte de ce phénomène est un avenir proche du modèle, et pourra se montrer particulièrement justifiée en conjonction avec la refusion de la structure.

Enfin, il serait intéressant d'implémenter le transport des grains équiaxes, par convection et par sédimentation. Bien que cela ait déjà été décrit dans la littérature [Gui04a, Gui06], le reprendre en trois dimensions soulèvera certainement de nouvelles questions. Il sera sans doute nécessaire de simplifier et d'optimiser l'algorithme. De plus, des difficultés, comme la rotation des grains équiaxes, ou le comportement des grains équiaxes une fois qu'ils sont entrés en contact avec le front colonnaire, n'ont jamais été levées. Ceci s'inscrit dans une démarche plus générale, qui est la prise en compte de la thermomécanique du solide, c'est-à-dire la présence d'une vitesse non nulle et non triviale du solide (une

vitesse triviale serait par exemple la translation du lingot lors de la coulée semi-continue). Cette étape constituera certainement le plus gros du travail à venir, et s'inscrit dans la suite logique des modèles thermomécaniques avec ségrégation [Riv11]. Si ce phénomène n'a jamais été inclus dans le modèle CAFE, la raison en est simple : la grille de cellules est peu adaptée à des déformations. En effet, l'intérêt principal de cette méthode réside dans sa rapidité, qui est due elle-même à la régularité de la grille. Il est donc très facile de calculer un voisinage, et de suivre localement le déplacement d'une interface. D'ailleurs, des calculs éléments finis à 5 milliards de nœuds demandent autrement plus de ressources de calcul. La déformation de cette grille ferait donc perdre tout intérêt à cette méthode. Une approche plus réaliste consisterait à déplacer les informations des cellules plutôt que les cellules elles-mêmes. C'est d'ailleurs la stratégie qui a été utilisée pour le transport des grains équiaxes. La résolution des équations éléments finis donnerait alors une vitesse du solide qui serait interpolée au centre des cellules, et les grains déformés en conséquence. D'autre part, il serait possible de renvoyer des informations sur la microstructure aux nœuds (l'orientation cristalline par exemple) pour pouvoir implémenter des lois de comportement polycristallines.

En l'état, le modèle CAFE présente tout de même de nombreux avantages, et est actuellement le seul à pouvoir effectuer des calculs de solidification couplés avec la structure de grains en 3D, et sur des lingots conséquents. Cela lui donne un certain potentiel pour être appliqué à des expériences ou des procédés industriels, afin d'aider à l'interprétation de phénomènes physiques, ou d'optimiser certains paramètres. De plus, son domaine ne se limite pas à la métallurgie : il a déjà été utilisé dans le projet Cristapress concernant la cristallisation de sphérolites dans les polymères [Boy11]. Ce potentiel va se concrétiser prochainement sous la forme d'une intégration dans le logiciel commercial THERCAST, développé par Transvalor, qui se base déjà en partie sur CimLib. En plus d'apporter une maintenance durable du code et une meilleure visibilité, cette étape va permettre de grandement faciliter l'utilisation du modèle, que ce soit pour la mise en données, ou la visualisation de la structure. Rappelons que la visualisation est un problème à part entière de la chaîne de calcul, surtout si elle est parallèle, et que des traitements en post processing sont pour l'instant nécessaires pour obtenir des images complètes de la structure de grains.

# Annexe A

## Structure du code du modèle CAFE

La figure A.1 reprend sous la forme d'un diagramme UML [OMG11] les principales classes et fonctions implémentées dans l'algorithme automate cellulaire. La partie FE n'est pas abordée ici. Le but est de décrire brièvement l'intérêt et le rôle de chacune de ces classes.

### ModeleCellules

Il s'agit de la classe principale, qui instancie toutes les autres classes. Un nouvel objet `ModeleCellules` est créé pour chaque bloc correspondant dans les scripts MTC<sup>1</sup> de mise en données. Ses rôles principaux sont :

- gérer la boucle sur les micro pas de temps,
- scanner la grille de cellules,
- gérer tout ce qui est relatif au calcul parallèle.

**LesCellules** Instance de `GestionCellules`, c'est concrètement la grille de cellules et toutes ses méthodes d'accès, de modification, etc.

**LesGrains** Il s'agit de la liste des grains connus (i.e. présents ou ayant déjà été présents localement sur le cœur). À chaque entrée de la liste sont associés le numéro de grain, le volume local du grain (en nombre de cellules) et un pointeur vers l'objet `DCGrain` contenant toutes les données du grain.

**LesSites** Liste des sites de germination. Cette liste est remplie par `LesCellules`, mais la germination est gérée par le `ModeleCellules`. Chaque entrée de la liste contient le numéro de cellule associé, le numéro d'élément de la cellule (utile p.ex. si la cellule n'existe pas encore), et une sous-liste contenant toutes les sites de germinations à cette position, chaque sous-entrée contenant une surfusion de germination (double) et les données (`DonneesCellulaire*`). Lors de l'étape de germination (cf. figure II.18), cette liste est scannée. Si les sites germent ou si les cellules associées à des germes sont détruites par l'allocation dynamique, alors les sites sont retirés de la liste.

---

1. Ces scripts contiennent toute la mise en données du problème sous la forme du pseudo-langage MTC, interprété par la bibliothèque `CimLib`. Son but principal est de définir des modèles, comme ici `ModeleCellules`.

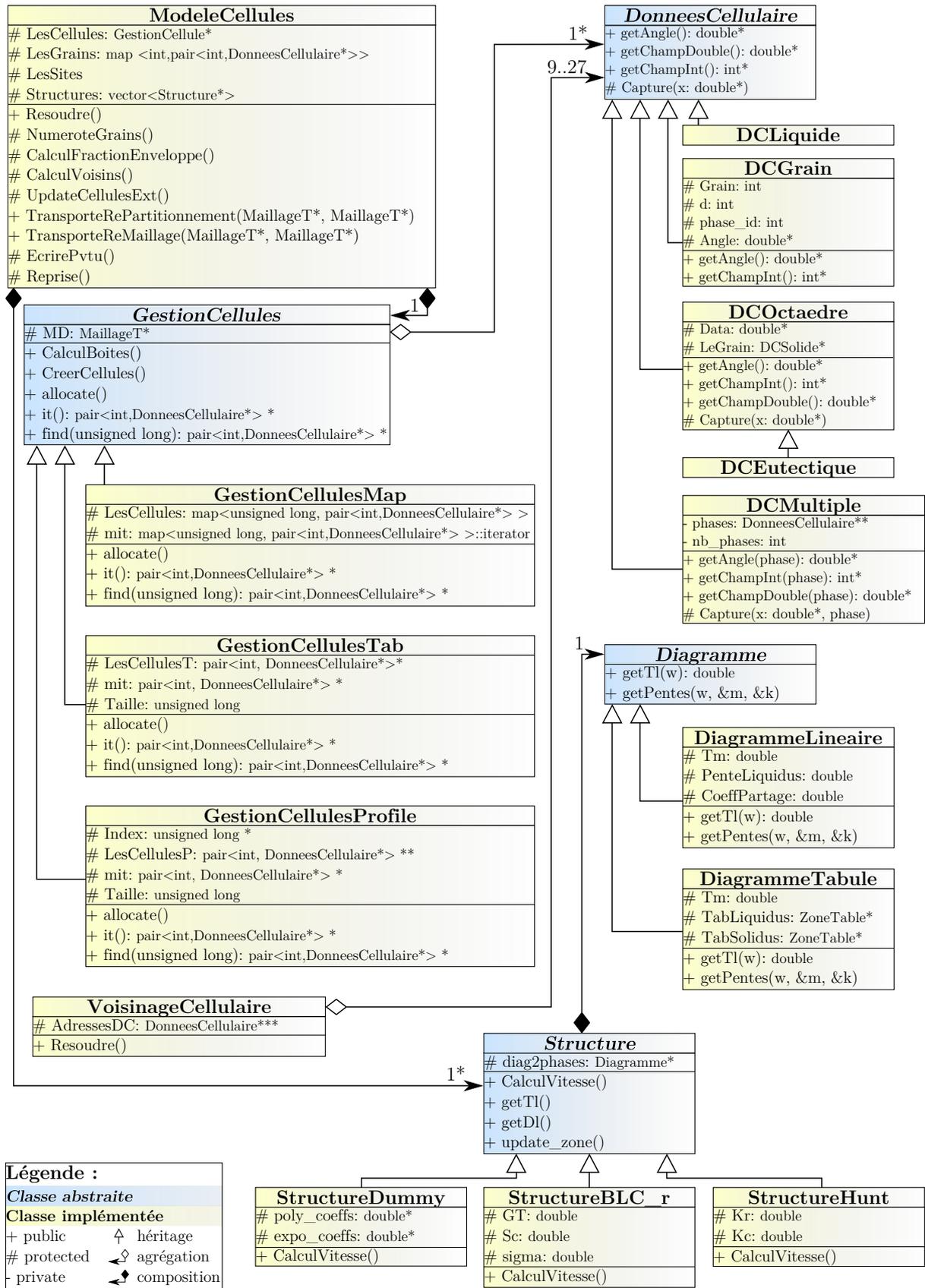


FIGURE A.1 Principales classes et fonctions C++ du code automate cellulaire.

**LesStructures** Liste des structures de croissance dont on veut suivre les enveloppes des grains. Il s'agit d'une liste de pointeurs Structure\*.

**Resoudre()** Fonction principale qui est normalement appelée à chaque macro pas de temps, et qui résout l'algorithme CA décrit à la figure II.18.

**NumeroteGrains()** Gestion parallèle pour avoir une numérotation des grains unique et globale. Cette fonction a pour but d'attribuer un numéro unique aux nouveaux grains germés.

**CalculFractionEnveloppe()** Rétrocession des fractions d'enveloppes pour chaque structure sur les nœuds du maillage.

**CalculVoisins()** Identifie les cellules à l'interface (cf. figure II.14), et les cœurs qui les gèrent. La liste explicite de ces cellules n'est maintenue que pour la gestion de la mémoire en tableau creux (map). Pour les autres, les cellules à l'interface sont simplement retrouvées en leur attribuant un numéro d'appartenance à un élément du maillage inexistant (valeur négative).

**UpdateCellulesExt()** Met à jour les données des cellules à l'interface.

**TransporteRePartitionnement()** Après un repartitionnement, les cellules doivent se voir attribuer leur nouveau numéro d'élément (les éléments étant dans CimLib numérotés par cœur, et non de façon globale). C'est le rôle de cette fonction, ainsi que d'échanger les données des cellules pour lesquelles l'élément a changé de cœur.

**EcrirePvtu()** Permet d'écrire dans des fichiers sortie toutes les cellules, ou des domaines définis par des instances de la classe Domaine (non indiquée sur A.1). La liste de ces domaines est stockée dans ModeleCellules, et spécifiée par l'utilisateur lors de la mise en données. Les domaines décrivent des sous-ensembles de cellules, afin de limiter la taille des fichiers sortie. Ils peuvent être de diverse nature (boîte, plan de coupe) et concerner toutes les cellules, ou les cellules d'un certain type (DCOctaedre, cellules aux frontières du maillage...).

**Reprise()** Fonction permettant de charger un état précédent à partir de fichiers de données, afin de reprendre un calcul interrompu par exemple.

### GestionCellules

Cette classe gère tout ce qui est relatif à :

- la création/destruction dynamique des cellules,
- la gestion mémoire de la grille,
- le tirage aléatoire des sites de germination.

Les classes héritées implémentent les différentes stratégies de gestion mémoire (fig. II.17). La sélection des zones à allouer/désallouer ne se fait pas à ce niveau, mais plutôt au niveau des objets Structure. Ici il est uniquement question de créer/détruire les cellules sur ces zones.

**MD** Le maillage “support” de la grille de cellules, qui pourra ou non servir également à la résolution des équations par éléments finis, selon la mise en données. Il s’agit du maillage local uniquement.

**CalculBoites()** Initialise le système de coordonnées de la grille de cellules. Une boîte englobant tout le maillage est définie, ainsi que les coordonnées de l’origine de cette boîte et la taille des cellules. Par la suite, ce système permet de localiser une cellule uniquement avec un seul indice.

**CreerCellules()** Si le nouvel algorithme d’allocation dynamique est activé (fig. II.13.b), alors cette fonction a essentiellement pour rôle de tirer les sites de germination sur les zones activées. Sinon (fig. II.13.a), cette fonction sert également à créer et détruire les cellules sur les éléments qui ont été sélectionnés pour être activés/désactivés.

**allocate()** Alloue la mémoire nécessaire à la création subséquente des cellules.

**it()** La classe GestionCellules introduit un système d’itérateur semblable à la STL pour avoir une utilisation identique de la grille quelle que soit la méthode de gestion mémoire. Pour simplifier, un itérateur membre est également présent, dont l’accès se fait avec cette fonction. La variable renvoyée est typique de l’approche présente, c’est-à-dire une paire contenant le numéro d’élément de la cellule sur laquelle pointe l’itérateur, et les données de la cellule (DonneesCellulaire\*).

**find()** Parmi toutes les fonctions d’accès à la grille, un exemple évocateur est find(), qui permet de retrouver la cellule par son indice. Le résultat est le même que pour it(), et que pour toutes les fonctions d’accès en général.

**GestionCellulesMap** Classe héritée qui implémente la gestion mémoire en tableau creux (fig. II.17.c). Concrètement, les cellules sont stockées dans la map (STL) nommée LesCellules, et la fonction allocate() n’effectue aucune action.

**GestionCellulesTab** Classe héritée qui implémente la gestion mémoire en tableau standard (fig. II.17.b).

**GestionCellulesProfile** Classe héritée qui implémente la gestion mémoire en profil (fig. II.17.d). “Index” correspond au tableau d’indexation, tandis que chaque entrée de LesCellulesP est une ligne de cellules.

### DonneesCellulaire

Classe abstraite stockant toutes les données des cellules et des grains (orientation cristallographique, etc.).

**getAngle()** Renvoie les angles d’Euler.

**getChampDouble()** Renvoie toutes les données stockées sous la forme de flottants (centre de la forme de croissance, volume de capture...).

**getChampInt()** Renvoie toutes les données stockées sous la forme d'entiers (essentiellement le numéro de grain).

**Capture()** Applique l'algorithme géométrique pour capturer un voisin dont le centre est passé en paramètre (x).

**DCLiquide** Équivalente à un singleton, puisqu'instanciée une seule fois, cette classe représente toutes les cellules liquides ( $I_\nu = 0$ ).

**DCGrain** Une instance par grain. Stocke les angles d'Euler, le numéro de la structure, le numéro de grain. Une cellule de la grille peut pointer directement sur un objet DCGrain ( $I_\nu^{(j)} = 1$ ), ou indirectement à travers un objet DCOctaedre.

**DCOctaedre** Cellule en croissance ( $I_\nu^{(j)} = 2$ ). Stocke le centre,  $V_{\max}$  et  $V_{\min}$ , ainsi qu'un pointeur vers les données du grain (DCGrain\*).

**DCEutectique** Identique à DCOctaedre, la seule différence étant la capacité à capturer des cellules non liquides.

**DCMultiple** Cette classe est introduite pour gérer la croissance de plusieurs structures (DonneesCellulaire\*\*) au sein d'une même cellule. Pour cela toutes les fonctions de DonneesCellulaire prennent un argument qui est le numéro de structure, égal à 0 par défaut, mais qui peut varier s'il y a plusieurs structures pour une cellule.

## Structure

Classe abstraite pour définir la température d'équilibre et la cinétique de croissance d'une structure.

**diag2phases** Diagramme de phases (Diagramme\*) qui définit une méthode de calcul de la température d'équilibre, à partir des conditions locales.

**getTl()** Renvoie la température d'équilibre de la structure.

**getDl()** Calcul le coefficient de diffusion (p.ex. avec une loi d'Arrhénius).

**update\_zone()** Détermine les éléments à activer et à désactiver, en fonction de la stratégie choisie (fig. II.13), de la fraction d'enveloppe et de la température d'équilibre pour cette structure. Par la suite, les cellules seront créées/détruites sur les éléments choisis par GestionCellules.

**StructureDummy** Définit une cinétique de croissance par une loi puissance, éventuellement combinée avec un terme exponentiel.

**StructureBLC\_r** Définit une cinétique de croissance type Ivantsov avec convection (section II.4.2), et une résolution avec le rayon de la pointe en inconnue principale.

**StructureHunt** Définit une cinétique de croissance de type Jackson-Hunt.

### Diagramme

Classe abstraite pour définir la température et les compositions à l'équilibre thermodynamique d'une structure.

**getTl()** Renvoie la température d'équilibre de la structure.

**getPentes()** Renvoie les pentes ( $m, k$ ) du diagramme.

**DiagrammeLineaire** Classe héritée utilisée dans tous les exemples de cette étude. Définit le diagramme avec des pentes constantes, pour un alliage binaire.

**DiagrammeTabule** Classe héritée qui définit la température d'équilibre par des tabulations.

### VoisinageCellulaire (RubikCube)

Cette classe permet simplement de gérer le voisinage d'une cellule, pour ensuite lui appliquer les algorithmes de capture, etc. Les données ne sont pas réellement stockées ici, il s'agit juste de pointeurs vers les entrées de l'objet LesCellules (GestionCellules\*).

**AdressesDC** Pointeurs vers l'entrée dans LesCellules correspondante à la cellule centrale et à ses voisines.

**Resoudre()** Applique l'algorithme de capture sur la cellule centrale (appelle la fonction Capture de chaque voisin).

# Annexe B

## Capture octaédrique en 3D

**Capture** L'algorithme de capture géométrique par un octaèdre, ainsi que la troncature du nouvel octaèdre sont présentés ici en 3D, de manière analogue à ce qui a déjà été montré en 2D (voir section II.3.2). Considérons une cellule  $\mu$  de centre  $C_\mu^0$ , dont on veut savoir si elle est capturée par la cellule  $\nu$ . Cette dernière est associée avec une forme de croissance octaédrique dont le centre est  $C_\nu^{(j)}$ , les rayons sont  $R_{\nu k \in [1,6]}^{(j)}$  et les angles d'Euler  $(\psi, \theta, \phi)$ . Ceci est une situation analogue à la figure II.4 en 3D. L'objectif est de savoir dans un premier temps si  $C_\mu^0$  est englobé par la forme de croissance de  $\nu$ . Pour cela, on se place dans le repère de l'octaèdre associé à  $\nu$ , c'est-à-dire ayant pour origine  $C_\nu^{(j)}$  et pour axes les directions [100], [010] et [001]. Les coordonnées de  $C_\mu^0$  dans ce nouveau repère sont :

$$\begin{pmatrix} x_\nu(C_\mu^0) \\ y_\nu(C_\mu^0) \\ z_\nu(C_\mu^0) \end{pmatrix} = [A] \begin{pmatrix} x(C_\mu^0) - x(C_\nu^{(j)}) \\ y(C_\mu^0) - y(C_\nu^{(j)}) \\ z(C_\mu^0) - z(C_\nu^{(j)}) \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

avec  $x, y, z$  les coordonnées cartésiennes, et  $A$  la matrice de rotation définie par les angles d'Euler :

$$[A] = \begin{bmatrix} \cos \phi \cos \varphi - \cos \theta \sin \varphi \sin \phi & \cos \phi \sin \varphi + \cos \theta \cos \varphi \sin \phi & \sin \phi \sin \theta \\ -\sin \phi \cos \varphi - \cos \theta \sin \varphi \cos \phi & -\sin \phi \sin \varphi + \cos \theta \cos \varphi \cos \phi & \cos \phi \sin \theta \\ \sin \theta \sin \varphi & -\sin \theta \cos \varphi & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (\text{B.2})$$

Il est ensuite possible d'identifier la face pouvant capturer la position  $C_\mu^0$  avec le signe des trois coordonnées  $x_\nu(C_\mu^0)$ ,  $y_\nu(C_\mu^0)$  et  $z_\nu(C_\mu^0)$ . La normale à ce plan, notée  $\vec{n}$ , est calculée, ainsi que la distance de  $C_\nu^{(j)}$  à ce plan, notée  $R_x$ . Puis, la distance  $ps$  de  $C_\mu^0$  à ce plan est calculée avec :

$$ps = \overrightarrow{C_\nu^{(j)} C_\mu^0} \cdot \vec{n} - R_x \quad (\text{B.3})$$

Il est ainsi possible de savoir si  $C_\mu^0$  est englobé par la forme de croissance de  $\nu$ , ce qui est réalisé quand  $ps < 0$ .

**Troncature** Si on a effectivement  $ps < 0$ , alors la direction  $\langle 100 \rangle$  la plus proche (notée  $\vec{p}$ ) est identifiée, ce qui est fait facilement en trouvant le maximum des coordonnées en valeur absolue de  $C_\mu^0$  dans le repère de  $\nu$ . La longueur du rayon de l'octaèdre selon cette

direction est noté  $R_{\nu p}$ , et le sommet correspondant  $S_{\nu p}$ . Les deux autres sommets de la face de capture sont notés  $S_{\nu q}$  et  $S_{\nu r}$ . De façon similaire à ce qui est fait en 2D, le point  $C_\mu^0$  est projeté sur la face de capture en  $A$ , dont les coordonnées sont données par  $\overrightarrow{C_\nu^{(j)} A} = \overrightarrow{C_\nu^{(j)} C_\mu^0} - ps.\vec{n}$ . La distance du sommet de capture  $S_{\nu p}$  au point  $A$  est calculée avec  $\overrightarrow{S_{\nu p} A} = \overrightarrow{C_\nu^{(j)} A} - R_{\nu p}\vec{p}$ . Le nouveau rayon selon la direction  $\vec{p}$  est alors tronqué avec :

$$R_{\mu p} = \sqrt{\frac{2}{3}} \max(Lu_I, Lu_J) \quad (\text{B.4})$$

et :

$$Lu_I = \frac{1}{2} \left[ \min \left( IS_{\nu p}, \sqrt{3}l_{CA} \right) + \min \left( IS_{\nu q}, \sqrt{3}l_{CA} \right) \right] \quad (\text{B.5})$$

$$Lu_J = \frac{1}{2} \left[ \min \left( JS_{\nu p}, \sqrt{3}l_{CA} \right) + \min \left( JS_{\nu r}, \sqrt{3}l_{CA} \right) \right] \quad (\text{B.6})$$

où  $I$  et  $J$  sont les projections de  $A$  sur les arêtes  $S_{\nu p}S_{\nu q}$  et  $S_{\nu p}S_{\nu r}$ , respectivement. Par exemple, les longueurs  $IS_{\nu p}$  et  $IS_{\nu q}$  sont données par :

$$IS_{\nu p} = \frac{-R_{\nu p}\overrightarrow{S_{\nu p} A}.\vec{p} + R_{\nu q}\overrightarrow{S_{\nu p} A}.\vec{q}}{\sqrt{R_{\nu p}^2 + R_{\nu q}^2}} \quad (\text{B.7})$$

$$IS_{\nu q} = \sqrt{R_{\nu p}^2 + R_{\nu q}^2} - IS_{\nu p} \quad (\text{B.8})$$

La position du nouveau centre dans le repère de  $\nu$  est ainsi trouvée,  $\overrightarrow{C_\nu^{(j)} C_\mu^{(j)}} = R_{\mu p}\vec{p}$ , et ses coordonnées sont recalculées dans le repère standard en inversant la matrice de rotation,  $A^{-1}$ . Pour des illustrations de cette méthodologie, on pourra se référer à la littérature [Gan97, Gan99].

# Annexe C

## Interpolation des valeurs tabulées

Considérons une fonction tabulée dépendant de plusieurs paramètres  $p_{i \in [1, n]}$  et de la température,  $f_{TAB}(p_1, p_2, \dots, p_n, T)$ . Ces fonctions tabulées sont utilisées par exemple dans les équations II.77, II.78 et II.79. Considérons ensuite que les valeurs des paramètres  $p_i$  sont connues en un point donné du domaine. Il convient pour calculer la valeur de  $f_{TAB}$  en ce point d'effectuer une interpolation, quelle qu'elle soit, sur les valeurs des paramètres  $p_i$  existants dans la tabulation. Il est pour cela nécessaire d'identifier les valeurs tabulées de  $p_i$  à partir desquelles l'interpolation sera faite, et leur coefficient (ou leur "poids"). La méthode utilisée ici consiste à mailler l'espace des paramètres  $p_i$ , ce qui donne donc un espace à  $n$  dimensions, et de trouver la zone où l'interpolation va être faite. Le cas de la température est traité séparément et sera expliqué par la suite. Dans un souci d'optimiser le temps de calcul, le maillage est régulier, composé d'éléments quadrilatéraux (rectangles si  $n = 2$ , parallélogrammes si  $n = 3$ , etc.). Il est donc imposé à l'utilisateur de donner toutes les combinaisons possibles de  $p_i$ , même si certaines combinaisons n'ont aucun sens physique (mais, si c'est le cas, elles ne seront jamais utilisées dans les interpolations). Par exemple, pour  $n = 3$  et avec 3 valeurs différentes de  $p_1$ , 2 valeurs différentes de  $p_2$  et 4 valeurs différentes de  $p_3$ , les 24 combinaisons  $(p_1, p_2, p_3)$  devront exister dans la tabulation.

Il devient ensuite plus aisé d'identifier les combinaisons qui vont servir à l'interpolation, puisque les valeurs des  $p_i$  de ces combinaisons pourront être identifiées indépendamment. Pour chaque paramètre, on identifiera donc les deux valeurs tabulées  $p_i^{k_i}$  et  $p_i^{k_i+1}$  telles que la valeur en un point donné  $x$ ,  $p_i(x)$ , soit comprise entre ces bornes. L'exposant  $k_i$  représente ici l'entrée dans la tabulation, en supposant les  $p_i^{k_i}$  classés par ordre croissant selon  $k_i$  puis selon  $i$ . On a donc, pour chaque paramètre  $p_i$  :

$$p_i^{k_i} < p_i(x) < p_i^{k_i+1} \quad (\text{C.1})$$

Les coefficients d'interpolation linéaire  $a_i^{k_i}$  et  $a_i^{k_i+1}$  de chaque  $p_i^{k_i}$  et  $p_i^{k_i+1}$  peuvent facilement être trouvés avec :

$$a_i^{k_i} = \frac{p_i^{k_i+1} - p_i(x)}{p_i^{k_i+1} - p_i^{k_i}} \quad (\text{C.2})$$

$$a_i^{k_i+1} = 1 - a_i^{k_i} \quad (\text{C.3})$$

Pour chaque combinaison  $c$  de valeurs identifiées,  $(p_{i \in [1, n]}^{j \in [k_i, k_i+1]})$ , soit  $2^n$  combinaisons, on calcule ensuite le poids total de cette combinaison sur l'interpolation finale, c'est-à-dire :

$$a_c = \prod_i a_i^j \quad (\text{C.4})$$

où  $a_i^j$  sont les coefficients d'interpolation des valeurs de  $p_i^j$  composant la combinaison  $c$ . Pour chaque combinaison, il existe une tabulation en fonction de  $T$ . D'après la valeur de  $T$  au point  $x$ ,  $T(x)$ , il est possible d'interpoler linéairement  $T(x)$  dans les valeurs de  $T$  données. On trouve donc, de façon analogue à l'équation C.1, les valeurs de  $T$  qui serviront à l'interpolation pour ce jeu de paramètres :

$$T_c^k < T(x) < T_c^{k+1} \quad (\text{C.5})$$

Et, de la même manière, déduire les coefficients d'interpolation linéaires :

$$b_c^k = \frac{T_c^{k+1} - T(x)}{T_c^{k+1} - T_c^k} \quad (\text{C.6})$$

$$b_c^{k+1} = 1 - b_c^k \quad (\text{C.7})$$

On peut ensuite calculer le poids des entrées  $T_c^k$  et  $T_c^{k+1}$  sur l'interpolation finale, à savoir :

$$\alpha_c^k = a_c b_c^k \quad (\text{C.8})$$

$$\alpha_c^{k+1} = a_c b_c^{k+1} \quad (\text{C.9})$$

Et il est finalement possible d'interpoler la ou les valeurs désirées avec l'équation :

$$f = \sum_c \alpha_c^k f_{TAB}(p_i \in c, T_c^k) + \alpha_c^{k+1} f_{TAB}(p_i \in c, T_c^{k+1}) \quad (\text{C.10})$$

Cette méthode de séparation de la température des autres paramètres permet d'optimiser la tabulation et d'alléger notablement la taille des fichiers tabulés.

# Annexe D

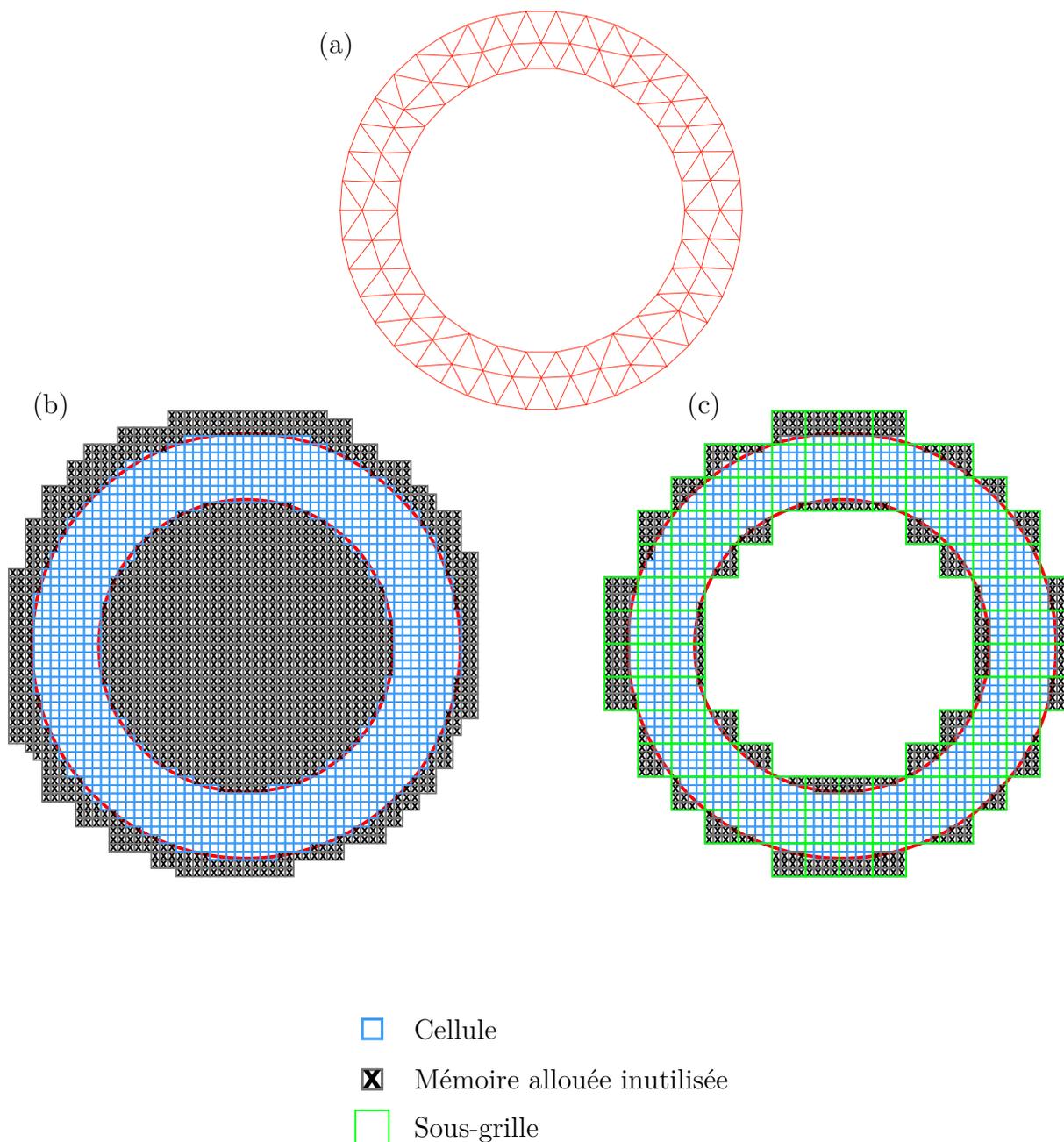
## Approches alternatives de gestion de la mémoire

Les trois approches de gestion de la mémoire présentées dans la section II.6.4 ne sont pas les seules stratégies possibles. Bien que l'approche en tableau profilé (fig. II.17.d) ait montré de bonnes performances, et soit jusqu'à présent suffisante (fig. III.14), d'autres alternatives pourraient donner de meilleurs résultats ou une plus grande flexibilité.

### Multigrille

La figure D.1.a présente un cas pathologique de maillage éléments finis. Ce type de domaine est peu commun dans les applications réelles, mais peut en revanche s'approcher de domaines locaux avec le calcul parallèle. En effet, lors du partitionnement, un cœur de calcul peut se voir affecter un domaine local non connexe ou, comme sur la figure, non plein. La méthode de gestion de la mémoire avec le tableau en profil, telle que décrite par la figure II.17.d et utilisée dans tout le reste de ce document, est mise en difficulté par ce cas. C'est ce qui est représenté à la figure D.1.b : quelle que soit la direction selon laquelle le profil est fait, la grille sera toujours allouée en mémoire au centre du domaine, diminuant le taux de remplissage. Sur l'exemple de la figure D.1.b, ce taux est de 0,43 seulement.

La figure D.1.c montre une approche alternative qui permettrait de gérer correctement ce type de problèmes. De manière similaire à certaines implémentations [Gan99], la grille de cellules est découpée en boîtes représentées en vert, formant une sous-grille. Chaque boîte de cette sous grille peut être allouée indépendamment. Avec cette approche, tous les cas de non-continuité du domaine peuvent être traités correctement. Sur l'exemple de la figure D.1.c, le taux de remplissage est de 0,71. Idéalement, la taille de ces boîtes peut être spécifiée : pour des géométries simples, une grande taille permettra de garder une bonne vitesse d'exécution. Sur des géométries complexes, une petite taille permettra de limiter la mémoire allouée inutilement. Il serait ainsi possible d'adapter la gestion de la mémoire au problème et/ou aux ressources informatiques disponibles, en optimisant soit la vitesse d'exécution, soit la mémoire nécessaire. Cette flexibilité pourrait être donnée statiquement, à travers une option de l'utilisateur, ou mieux, dynamiquement, c'est-à-dire que la taille des boîtes de la sous-grille pourrait changer au cours du calcul, selon un critère sur le taux de remplissage par exemple.



**FIGURE D.1** Cas spécifique de maillage (a), géré par la méthode (b) du tableau en profil implémentée dans ce travail et (c) multigrille.

### Table de hachage

La gestion de la mémoire en tableau creux, présentée par la figure II.17.c, a l'avantage de n'allouer aucune mémoire inutilement. Chaque élément (i.e. cellule) du tableau est identifié par une clé, qui est en l'occurrence l'indice de la cellule. Par rapport au tableau en profil, il y a donc nécessité de stocker plus de données, mais ceci est compensé par le taux de remplissage parfait. Par contre, le gros inconvénient du tableau creux est le temps d'accès à un élément, donc la complexité varie en  $\log n$ . Une alternative est proposée avec les tables de hachages. Ces tables utilisent une fonction, dite fonction de hachage, qui permet de transformer la clé d'accès (l'indice de la cellule) en la position de l'élément

---

dans le tableau (i.e. en mémoire). Ces fonctions sont choisies pour que statistiquement les probabilités que deux clés différentes donnent le même résultat soient très faibles. L'avantage de ces tables de hachage est que la complexité d'accès à un élément est constante : le coût est en fait donné par l'évaluation de la fonction de hachage, dont le résultat est directement la localisation des données en mémoire. Par contre, le parcours des éléments du tableau n'est pas optimal par rapport aux tableaux standards.

Il serait donc intéressant d'implémenter ce type de gestion de la mémoire pour la grille de cellules. Bien que ces méthodes soient étudiées depuis longtemps, leur standardisation dans le langage C++ n'est que très récente (norme C++11 [JTC11]), et peu de compilateurs la supportent à ce jour. C'est pourquoi cette méthode n'a pas été étudiée dans le travail présent.



# Bibliographie

- [Aka12] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Serefoglu, G. Faivre, “A theory of thin lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries”, *Acta Materialia*, 60, 3199–205, 2012.
- [Amd67] G. Amdahl, “Validity of the single processor approach to achieving large scale computing capabilities”, *AFIPS Conference Proceedings*, 30, 483–5, 1967.
- [Ana91] R. Ananth, W. Gill, “Self-consistent theory of dendritic growth with convection”, *Journal of Crystal Growth*, 108, 173–89, 1991.
- [App08] B. Appolaire, H. Combeau, G. Lesoult, “Modeling of equiaxed growth in multicomponent alloys accounting for convection and for the globular/dendritic morphological transition”, *Materials Science and Engineering A*, 487, 33–45, 2008.
- [AR04] N. Al-Rawahi, G. Tryggvason, “Numerical simulation of dendritic solidification with convection : Three-dimensional flow”, *Journal of Computational Physics*, 194, 677–96, 2004.
- [Ast02] M. Asta, J. Hoyt, A. Karma, “Calculation of alloy solid-liquid interfacial free energies from atomic-scale simulations”, *Physical Review B*, 66, 100101, 2002.
- [Bal12] S. Balay, J. Brown, , K. Buschelman, V. Eijkhout, WD. Gropp, D. Kaushik, MG. Knepley, LC. McInnes, BF. Smith, H. Zhang, *PETSc Users Manual*, Rapport technique ANL-95/11 - Revision 3.3, Argonne National Laboratory, 2012.
- [Bas00] A. Baserman, J. Clinckemaille, T. Coupez, J. Fingberg, H. Dignonnet, R. Ducloux, JM. Gratien, U. Hartmann, G. Lonsdale, B. Maerten, D. Roose, C. Walshaw, “Dynamic load-balancing of finite element applications with the DRAMA library”, *Applied Mathematical Modelling*, 25, 83–9, 2000.
- [Bas06] O. Basset, *Simulation numérique d’écoulements multi fluides sur grille de calcul*, Thèse de doctorat, ENSMP, 2006.
- [Bea00] K. Beatty, K. Jackson, “Monte Carlo modeling of silicon crystal growth”, *Journal of Crystal Growth*, 211, 13–7, 2000.
- [Bec99] C. Beckermann, HJ. Diepers, I. Steinbach, A. Karma, X. Tong, “Modeling Melt Convection in Phase-Field Simulations of Solidification”, *Journal of Computational Physics*, 154, 468–96, 1999.
- [Bog10] A. Bogno, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, E. Boller, J. Baruchel, “Application of synchrotron X-ray radiography to the study of dendritic equiaxed microstructure formation in Al-Cu alloys”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268, 394–8, 2010.

- [Box58] GEP. Box, ME. Muller, “A Note on the Generation of Random Normal Deviates”, *Annals of Mathematical Statistics*, 29, 610–1, 1958.
- [Boy11] S. Boyer, T. Carozzani, H. Dignonnet, CA. Gandin, “Simulation of spherulite structure in high pressure polymer crystallization based on three dimensional cellular automaton-finite element modeling”, dans *EUROMAT (Montpellier, FR)*, 2011.
- [Bro89] SGR. Brown, JA. Spittle, “Computer simulation of grain growth and macrostructure development during solidification”, *Materials Science and Technology*, 5, 362–8, 1989.
- [Buz88] A. Buzynin, V. Antonov, V. Osiko, V. Tatarintsev, “Twinning in silicon and  $A^{III}B^V$  compound crystals on growth from liquids”, *Izvestiya Akademii Nauk SSSR*, 52, 1889–95, 1988.
- [Böt06] B. Böttger, J. Eiken, I. Steinbach, “Phase field simulation of equiaxed solidification in technical alloys”, *Acta Materialia*, 54, 2697–704, 2006.
- [Cad00] E. Cadırlı, N. Maraslı, B. Bayender, M. Gündüz, “Dependency of the microstructure parameters on the solidification parameters for camphene”, *Materials Research Bulletin*, 35, 985–95, 2000.
- [Cag89] G. Caginalp, “Stefan and Hele-Shaw type models as asymptotic limits of the phase-field equations”, *Physical Review A*, 39, 5887–96, 1989.
- [Car00] P. Carter, D. Cox, C. Gandin, R. Reed, “Process modelling of grain selection during the solidification of single crystal superalloy castings”, *Materials Science and Engineering A*, 280, 233–46, 2000.
- [Car12] T. Carozzani, H. Dignonnet, CA. Gandin, “3D CAFE modeling of grain structures : application to primary dendritic and secondary eutectic solidification”, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 20, 015010, 2012.
- [Che08] P. Chen, Y. Tsai, C. Lan, “Phase field modeling of growth competition of silicon grains”, *Acta Materialia*, 56, 4114–22, 2008.
- [Cho12] A. Choudhury, K. Reuther, E. Wesner, A. August, B. Nestler, M. Rettenmayr, “Comparison of phase-field and cellular automaton models for dendritic solidification in Al-Cu alloy”, *Computational Materials Science*, 55, 263–8, 2012.
- [Com96] H. Combeau, JM. Drezet, A. Mo, M. Rappaz, “Modeling of Microsegregation in Macroseggregation Computations”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 27, 2314–27, 1996.
- [Com12] H. Combeau, M. Bellet, Y. Fautrelle, D. Gobin, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, YD. Terrail, A. Kumar, CA. Gandin, B. Goyeau, S. Mosbah, T. Quatravaux, M. Rady, M. Zaloznik, “Analysis of a numerical benchmark for columnar solidification of binary alloys”, *IOP Conference Series : Materials Science and Engineering*, 33, 012086, 2012.
- [Cou97] T. Coupez, S. Marie, “From a Direct Solver to a Parallel Iterative Solver in 3-D Forming Simulation”, *Int. J. High Perf. Comp. App.*, 11, 277–85, 1997.
- [Dan09] J. Danzig, M. Rappaz, *Solidification*, EPFL Press, 2009.
- [Das00] A. Das, E. Mittemeijer, “Simulation of Eutectic Solidification Structures of Binary Alloys : a Multiparticle Diffusion Limited Aggregation Model”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 31, 2049–57, 2000.

- [Das02] A. Das, S. Ji, Z. Fan, “Morphological development of solidification structures under forced fluid flow : a Monte-Carlo simulation”, *Acta Materialia*, 50, 4571–85, 2002.
- [Del10] P. Delaleau, C. Beckermann, R.H. Mathiesen, L. Arnberg, “Mesoscopic Simulation of Dendritic Growth Observed in X-ray Video Microscopy During Directional Solidification of Al-Cu Alloys”, *ISIJ International*, 50, 1886–94, 2010.
- [Dig01] H. Dignonnet, *Repartitionnement dynamique, mailleur parallèle et leurs applications à la simulation numérique en mise en forme des matériaux*, Thèse de doctorat, ENSMP, 2001.
- [Duf10] T. Duffar, A. Nadri, “On the twinning occurrence in bulk semiconductor crystal growth”, *Scripta Materialia*, 62, 955–60, 2010.
- [Ech04] B. Echebarria, R. Folch, A. Karma, M. Plapp, “Quantitative phase-field model of alloy solidification”, *Phys. Rev. E*, 70, 061604, 2004.
- [Egg01] J. Eggleston, G. McFadden, P. Voorhees, “A phase-field model for highly anisotropic interfacial energy”, *Physica D*, 150, 91–103, 2001.
- [Eik06] J. Eiken, B. Böttger, I. Steinbach, “Multiphase-field approach for multicomponent alloys with extrapolation scheme for numerical application”, *Physical Review E*, 73, 066122, 2006.
- [Eik09] J. Eiken, *A Phase-Field model for technical alloy solidification*, Thèse de doctorat, Gießerei-Institut, 2009.
- [Eld07] K. Elder, N. Provatas, J. Berry, P. Stefanovic, M. Grant, “Phase-field crystal modeling and classical density functional theory of freezing”, *Physical Review B*, 75, 064107, 2007.
- [Emm11] H. Emmerich, L. Grànàsy, H. Löwen, “Selected issues of phase-field crystal simulations”, *The European Physical Journal Plus*, 126, 102, 2011.
- [Fel91] S. Felicelli, J. Heinrich, D. Poirier, “Simulation of freckles during vertical solidification of binary alloys”, *Metallurgical and Materials Transactions B*, 22, 847–59, 1991, 10.1007/BF02651162.
- [Fel98] S. Felicelli, J. Heinrich, D. Poirier, “Three-dimensional simulations of freckles in binary alloys”, *Journal of Crystal Growth*, 191, 879–88, 1998.
- [Fer27] E. Fermi, “Un Metodo Statistico per la Determinazione di alcune Proprietà dell’Atomo”, *Rendiconti Lincei*, 6, 602–7, 1927.
- [Fuj04] K. Fujiwara, Y. Obinata, T. Ujihara, N. Usami, G. Sazaki, K. Nakajima, “Grain growth behaviors of polycrystalline silicon during melt growth processes”, *Journal of Crystal Growth*, 266, 441–8, 2004.
- [Fuj08] K. Fujiwara, K. Maeda, N. Usami, G. Sazaki, Y. Nose, A. Nomura, T. Shishido, K. Nakajima, “In situ observation of Si faceted dendrite growth from low-degree-of-undercooling melts”, *Acta Materialia*, 56, 2663–8, 2008.
- [Gal11] B. Gallien, T. Duffar, S. Lay, F. Robaut, “Analysis of grain orientation in cold crucible continuous casting of photovoltaic Si”, *Journal of Crystal Growth*, 318, 208–11, 2011.
- [Gan94] CA. Gandin, M. Rappaz, “A coupled finite element-cellular automaton model for the prediction of dendritic grain structures in solidification processes”, *Acta Metallurgica et Materialia*, 42, 2233–46, 1994.

- [Gan95] CA. Gandin, M. Rappaz, D. West, B. Adams, "Grains Texture Evolution during the Columnar Growth of Dendritic Alloys", *Metallurgical and Materials Transactions A*, 26, 1543–51, 1995.
- [Gan96] CA. Gandin, R. Schaefer, M. Rappaz, "Analytical and numerical predictions of dendritic grain envelopes", *Acta Materialia*, 44, 3339–47, 1996.
- [Gan97] CA. Gandin, M. Rappaz, "A 3D Cellular Automaton algorithm for the prediction of dendritic grain growth", *Acta Materialia*, 45, 2187–95, 1997.
- [Gan99] CA. Gandin, JL. Desbiolles, M. Rappaz, P. Thévoz, "A Three-Dimensional Cellular Automaton-Finite Element Model for the Prediction of Solidification Grain Structures", *Metallurgical and Materials Transactions A*, 30, 3153–65, 1999.
- [Gan00a] CA. Gandin, "Experimental Study of the Transition from Constrained to Unconstrained Growth during Directional Solidification", *ISIJ International*, 10, 971–9, 2000.
- [Gan00b] CA. Gandin, "From constrained to unconstrained growth during directional solidification", *Acta Materialia*, 48, 2483–501, 2000.
- [Gan03] CA. Gandin, G. Guillemot, B. Appolaire, N. Niane, "Boundary layer correlation for dendrite tip growth with fluid flow", *Materials Science and Engineering A*, 342, 44–50, 2003.
- [Gan08] CA. Gandin, S. Mosbah, T. Volkman, D. Herlach, "Experimental and numerical modeling of equiaxed solidification in metallic alloys", *Acta Materialia*, 56, 3023–35, 2008.
- [Gan10] J. Gantz, D. Reinsel, "The Digital Universe Decade - Are You Ready?", <http://www.emc.com/collateral/analyst-reports/idc-digital-universe-are-you-ready.pdf>, 2010.
- [Gar01] M. Garnier, K. Kaneko, P.J. Ribeyron, "Apparatus and process for the continuous fabrication of a polycrystalline silicon ingot", Brevet européen EP1154047, 2001.
- [Gei94] A. Geist, A. Beguelin, J. Dongarra, W. Jiang, R. Manchek, V. Sunderam, *PVM3 User's Guide and Reference Manual*, Rapport technique ORNL/TM-12187, Oak Ridge National Laboratory, 1994.
- [Geo02] WL. George, JA. Warren, "A Parallel 3D Dendritic Growth Simulator Using the Phase-Field Method", *Journal of Computational Physics*, 177, 264–83, 2002.
- [Gia70] A. Giamei, B.H.Kear, "On the Nature of Freckles in Nickel Base Superalloys", *Metallurgical Transactions*, 1, 2185–92, 1970.
- [Gre00] A. Greer, A. Bunn, A. Tronche, P. Evans, D. Bristow, "Modelling of inoculation of metallic melts : application to grain refinement of aluminium by Al-Ti-B", *Acta Materialia*, 48, 2823–35, 2000.
- [Gro98] W. Gropp, E. Lusk, B. Nitzberg, W. Saphir, M. Snir, *MPI-the complete reference : Volume 2 - The MPI-2 extensions*, MIT Press, 1998.
- [Gui04a] G. Guillemot, *Formation de structures de grains dans des alliages à solidification dendritique - Modélisation couplée Automates Cellulaires et Eléments Finis*, Thèse de doctorat, INPL, 2004.

- [Gui04b] G. Guillemot, CA. Gandin, H. Combeau, R. Heringer, “A new cellular automaton-finite element coupling scheme for alloy solidification”, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 545–56, 2004.
- [Gui06] G. Guillemot, CA. Gandin, H. Combeau, “Modeling of Macrosegregation and Solidification Grain Structures with a Coupled Cellular Automaton-Finite Element Model”, *ISIJ International*, 46, 880–95, 2006.
- [Gui07] G. Guillemot, CA. Gandin, M. Bellet, “Interaction between single grain solidification and macrosegregation : Application of a cellular automaton-Finite element model”, *Journal of Crystal Growth*, 303, 58–68, 2007.
- [Gul09] G. Gulliver, “The quantitative effect of rapid cooling upon the constitution of binary alloys”, *Journal of the Institute of Metals*, 9, 120–57, 1909.
- [Gus88] J.L. Gustafson, “Reevaluating Amdahl’s Law”, *Communications of the ACM*, 31, 532–3, 1988.
- [Gün85] M. Gündüz, J. Hunt, “The measurement of solid-liquid surface energies in the Al-Cu and Al-Si and Pb-Sn systems”, *Acta Metallurgica*, 33, 1651–72, 1985.
- [Hac10] E. Hachem, H. Dignonnet, N. Kosseifi, E. Massoni, T. Coupez, “Enriched finite element spaces for transient conduction heat transfer”, *Applied Mathematics and Computation*, 217, 3929–43, 2010.
- [Hac12a] L. Hachani, B. Saadi, X. Wang, A. Nouri, K. Zaidat, A. Belgacem-Bouzida, L. Ayouni-Derouiche, G. Raimondi, Y. Fautrelle, “Experimental analysis of the solidification of Sn-3 wt.convection”, *International Journal of Heat an Mass Transfer*, 55, 1986–96, 2012.
- [Hac12b] E. Hachem, T. Kloczko, H. Dignonnet, T. Coupez, “Stabilized finite element solution to handle complex heat and fluid flows in industrial furnaces using the immersed volume method”, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 68, 99–121, 2012.
- [Ham08] M. Hamide, E. Massoni, M. Bellet, “Adaptive mesh technique for thermal-metallurgical numerical simulation of arc welding processes”, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 73, 624–41, 2008.
- [Heb74] D. Hebditch, J. Hunt, “Observations of ingot macrosegregation on model systems”, *Metallurgical and Materials Transactions B*, 5, 1557–1564, 1974, 10.1007/BF02646326.
- [Hel90] H. Heller, H. Grubmüller, K. Schulten, “Molecular dynamics simulation on a parallel computer”, *Molecular Simulation*, 5, 133–65, 1990.
- [Her06] R. Heringer, CA. Gandin, G. Lesoult, H. Henein, “Atomized droplet solidification as an equiaxed growth model”, *Acta Materialia*, 54, 4427–40, 2006.
- [Hoy03] J. Hoyt, M. Asta, A. Karma, “Atomistic and continuum modeling of dendritic solidification”, *Materials Science and Engineering : R : Reports*, 41, 121–63, 2003.
- [Hua81] S. Huang, M. Glicksman, “Fundamentals of Dendritic Solidification”, *Acta Metallurgica*, 29, 701–34, 1981.
- [Hun84] J. Hunt, “Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic”, *Materials Science and Engineering*, 65, 75–83, 1984.

- [Iva47] G. Ivantsov, *Doklady Akademii Nauk SSSR*, 58, 567–73, 1947.
- [Jac66] K. Jackson, J. Hunt, “Lamellar and Rod Eutectic Growth”, *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 236, 1129–42, 1966.
- [Jac84] K. Jackson, “Crystal growth kinetics”, *Materials Science and Engineering*, 65, 7–13, 1984, <ce :title>Solidification Microstructure : 30 Years after Constitutional Supercooling </ce :title>.
- [Jeo01] JH. Jeong, N. Goldenfeld, J. Dantzig, “Phase field model for three-dimensional dendritic growth with fluid flow”, *Physical Review E*, 64, 041602, 2001.
- [JTC11] JTC1/SC22/WG21, *Information technology - Programming languages - C++*, Norme ISO/IEC 14882 :2011, 2011.
- [Jur96] D. Juric, G. Tryggvason, “A Front-Tracking Method for Dendritic Solidification”, *Journal of Computational Physics*, 123, 127–48, 1996.
- [Kar01] A. Karma, “Phase-Field Formulation for Quantitative Modeling of Alloy Solidification”, *Physical Review Letters*, 87, 115701, 2001.
- [Kel91] K. Kelton, “Crystal nucleation in liquids and glasses”, *Solid State Physics*, 45, 75–177, 1991.
- [Kim00] YT. Kim, N. Goldenfeld, J. Danzig, “Computation of dendritic microstructures using a level set method”, *Physical Review E*, 62, 2471–4, 2000.
- [Kit05] M. Kitamura, N. Usami, T. Sugawara, K. Kutsukake, K. Fujiwara, Y. Nose, T. Shishido, K. Nakajima, “Growth of multicrystalline Si with controlled grain boundary configuration by the floating zone technique”, *Journal of Crystal Growth*, 280, 419–24, 2005.
- [Kra09] M. Krane, D. Johnson, S. Raghavan, “The development of a cellular automaton-finite volume model for dendritic growth”, *Applied Mathematical Modelling*, 33, 2234–47, 2009.
- [Kur86] W. Kurz, B. Giovanola, R. Trivedi, “Theory of microstructural development during rapid solidification”, *Acta Metallurgica*, 34, 823–30, 1986.
- [Kur98] W. Kurz, D. Fisher, *Fundamentals of solidification*, Trans Tech Publications, 4<sup>ème</sup> édition, 1998.
- [Lan77] J. Langer, J. Müller-Krumbhaar, “Stability effects in dendritic crystal growth”, *Journal of Crystal Growth*, 42, 11–4, 1977.
- [Lee11] SB. Lee, YM. Kim, “Direct observation of in-plane ordering in the liquid at a liquid Al/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>( $\bar{1}10\bar{2}$ ) interface”, *Acta Materialia*, 59, 1383–8, 2011.
- [Les05] G. Lesoult, “Macrosegregation in steel strands and ingots : Characterisation and formation and consequences”, *Materials Science and Engineering A*, 413, 19–29, 2005.
- [l’I72] JBL. de Romé de l’Isle, *Essai de cristallographie*, Knapen & Delaguette, 1772.
- [Lip87] J. Lipton, M. Glicksman, W. Kurz, “Equiaxed dendrite growth in alloys at small supercooling”, *Metallurgical Transactions A*, 18, 341–5, 1987.
- [Liu01] S. Liu, R. Napolitano, R. Trivedi, “Measurement of anisotropy of crystal-melt interfacial energy for a binary Al-Cu alloy”, *Acta Materialia*, 49, 4271–6, 2001.
- [Liu05] W. Liu, *Finite element modelling of macrosegregation and thermomechanical phenomena in solidification processes*, Thèse de doctorat, ENSMP, 2005.

- [Liu09] W. Liu, C. XIE, M. Bellet, H. Combeau, “2-Dimensional FEM modeling of macrosegregation in the directional solidification with mesh adaptation”, *Acta Metallurgica Sinica (English Letters)*, 22, 233–40, 2009.
- [Mar97] S. Marie, *Un modèle de parallélisation S.P.M.D. pour la simulation numérique de procédés de mise en forme des matériaux*, Thèse de doctorat, ENSMP, 1997.
- [Mar03] M. Martorano, C. Beckermann, CA. Gandin, “A Solutal Interaction Mechanism for the Columnar-to-Equiaxed Transition in Alloy Solidification”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 34A, 1657–74, 2003.
- [Mat05] RH. Mathiesen, L. Arnberg, “X-ray radiography observations of columnar dendritic growth and constitutional undercooling in an Al-30wt%Cu alloy”, *Acta Materialia*, 53, 947–56, 2005.
- [Mes09] Y. Mesri, H. Digonnet, T. Coupez, “Advanced parallel computing in material forming with CIMLib”, *European Journal of Computational Mechanics*, 18, 669–94, 2009.
- [Mik91] L. Mikheev, A. Chernov, “Mobility of a diffuse simple crystal-melt interface”, *Journal of Crystal Growth*, 112, 591–6, 1991.
- [Mil11] W. Miller, “Some remarks on the undercooling of the Si(111) facet and the "Monte Carlo modeling of silicon crystal growth" by Kirk M. Beatty and Kenneth A. Jackson, *J. Crystal Growth* 211 (2000) 13”, *Journal of Crystal Growth*, 325, 101–3, 2011.
- [Mir04] RA. Miron, KA. Fichthorn, “Multiple-Time Scale Accelerated Molecular Dynamics : Addressing the Small-Barrier Problem”, *Physical Review Letters*, 93, 128301, 2004.
- [MN08] N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, “Modelling of the transition from a planar faceted front to equiaxed growth : Application to photovoltaic polycrystalline silicon”, *Journal of Crystal Growth*, 311, 20–5, 2008.
- [MN11] N. Mangelinck-Noël, J. Spinelli, CA. Gandin, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, B. Billia, “A method to determine the active particle nucleation undercooling distribution in a refined alloy”, *IOP Conf. Series : Materials Science and Engineering*, 27, 012090, 2011.
- [Mos10] S. Mosbah, M. Bellet, CA. Gandin, “Experimental and Numerical Modeling of Segregation in Metallic Alloys”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 41, 651–69, 2010.
- [Mul64] W. Mullins, R. Sekerka, “Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy”, *Journal of Applied Physics*, 35, 444–51, 1964.
- [Mul11] A. Mullis, “Prediction of the operating point of dendrites growing under coupled thermosolutal control at high growth velocity”, *Physical Review B*, 83, 061601, 2011.
- [Nag05] K. Nagashio, K. Kuribayashi, “Growth mechanism of twin-related and twin-free facet Si dendrites”, *Acta Materialia*, 53, 3021–9, 2005.
- [Nap02] R. Napolitano, S. Liu, R. Trivedi, “Experimental Measurement of Anisotropy in Crystal-Melt Interfacial Energy”, *Interface Science*, 10, 217–32, 2002.
- [Nas99] L. Nastac, “Numerical modeling of solidification morphologies and segregation patterns in cast dendritic alloys”, *Acta Materialia*, 47, 4253–62, 1999.

- [OMG11] OMG. OMG, *Unified Modeling Language™, Superstructure*, Version 2.4.1, <http://www.omg.org/spec/UML/2.4.1/Superstructure/>, 2011.
- [Per00] E. Perchat, *Mini-élément et factorisations incomplètes pour la parallélisation d'un solveur de Stokes 2d. Application au forgeage*, Thèse de doctorat, ENSMP, 2000.
- [Poh10] J. Pohl, M. Müller, A. Seidl, K. Albe, "Formation of parallel (111) twin boundaries in silicon growth from the melt explained by molecular dynamics simulations", *Journal of Crystal Growth*, 312, 1411–15, 2010.
- [Pro99] N. Provatas, N. Goldenfeld, J. Danzig, "Adaptive Mesh Refinement Computation of Solidification Microstructures Using Dynamic Data Structures", *Journal of Computational Physics*, 148, 265–90, 1999.
- [Que03] T. Queded, "DoITPoMS Micrograph Library", [http://www.doitpoms.ac.uk/miclib/full\\_record.php?id=711](http://www.doitpoms.ac.uk/miclib/full_record.php?id=711), 2003.
- [Ram03] J. Ramirez, C. Beckermann, "Evaluation of a rayleigh-number-based freckle criterion for Pb-Sn alloys and Ni-base superalloys", *Metallurgical and Materials Transactions A*, 34, 1525–36, 2003, 10.1007/s11661-003-0264-0.
- [Rap89] M. Rappaz, "Modelling of microstructure formation in solidification processes", *International Materials Review*, 34, 93–123, 1989.
- [Rap93] M. Rappaz, CA. Gandin, "Probabilistic modelling of microstructure formation in solidification processes", *Acta Metallurgica et Materialia*, 41, 345–60, 1993.
- [Rap99] M. Rappaz, W. Boettinger, "On dendritic solidification of multicomponent alloys with unequal liquid diffusion coefficients", *Acta Materialia*, 47, 3205–19, 1999.
- [Rap10] M. Rappaz, J. Friedli, A. Mariaux, M. Salgado-Ordorica, "The influence of solid-liquid interfacial energy anisotropy on equilibrium shapes and nucleation and triple lines and growth morphologies", *Scripta Materialia*, 62, 904–9, 2010.
- [Ree06] R. Reed, *The superalloys. Fundamentals and applications*, Cambridge University Press, 2006.
- [Riv11] B. Rivaux, *Simulation 3D éléments finis des macroségrégations en peau induites par déformations thermomécaniques lors de la solidification d'alliages métalliques*, Thèse de doctorat, ENSMP, 2011.
- [Ruv07] D. Ruvalcaba, R. Mathiesen, D. Eskin, L. Arnberg, L. Katgerman, "In situ observations of dendritic fragmentation due to local solute-enrichment during directional solidification of an aluminum alloy", *Acta Materialia*, 55, 4287–92, 2007.
- [Sch42] E. Scheil, "Bemerkungen zur Schichtkristallbildung", *Zeitschrift für Metallkunde*, 34, 70–72, 1942.
- [Sni96] M. Snir, S. Otto, S. Huss-Lederman, D. Walker, J. Dongarra, *MPI : the complete reference*, MIT Press, 1996.
- [Spi89] J. Spittle, S. Brown, "Computer simulation of the effects of alloy variables on the grain structures of castings", *Acta Metallurgica*, 37, 1803–10, 1989.
- [Sri10] V. Srinivasan, KM. Moon, D. Greif, D. Wang, MH. Kim, "Numerical simulation of immersion quenching process of an engine cylinder head", *Applied Mathematical Modelling*, 34, 2111–28, 2010.

- [Ste99] I. Steinbach, C. Beckermann, B. Kauerauf, Q. Li, J. Guo, “Three-dimensional modeling of equiaxed dendritic growth on a mesoscopic scale”, *Acta Materialia*, 47, 971–82, 1999.
- [Ste05] I. Steinbach, H.J. Diepers, C. Beckermann, “Transient growth and interaction of equiaxed dendrites”, *Journal of Crystal Growth*, 275, 624–38, 2005.
- [Ste08] I. Steinbach, “Effect of interface anisotropy on spacing selection in constrained dendrite growth”, *Acta Materialia*, 56, 4965–71, 2008.
- [Stu11] L. Sturz, G. Zimmermann, “In-situ and real-time investigation of the columnar-equiaxed transition in the transparent alloy system neopentylglycol-camphor onboard the sounding rocket TEXUS-47”, *Journal of Physics : Conference Series*, 327, O12002, 2011.
- [Swa08] G. Swaminarayan, K. Kadau, T. Germann, G. Fossun, “369 Tflo/s molecular dynamics simulations on the Roadrunner general-purpose heterogeneous supercomputer”, *Proceedings of the 2008 ACM/IEEE conference on Supercomputing*, 64, 2008.
- [Tho27] L. Thomas, “The calculation of atomic fields”, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 23, 542–8, 1927.
- [Thé89] P. Thévoz, J. Desbiolles, M. Rappaz, “Modeling of Equiaxed Microstructure Formation in Casting”, *Metallurgical Transactions A*, 20A, 311–22, 1989.
- [Tou09] D. Tournet, CA. Gandin, “A generalized segregation model for concurrent dendritic, peritectic and eutectic solidification”, *Acta Materialia*, 57, 2066–79, 2009.
- [Tou11] D. Tournet, CA. Gandin, T. Volkman, D. Herlach, “Multiple non-equilibrium phase transformations : Modeling versus electro-magnetic levitation experiment”, *Acta Materialia*, 59, 4665–77, 2011.
- [Try01] G. Tryggvason, B. Bunner, A. Esmaeli, D. Juric, N. Al-Rawahi, W. Tauber, J. Han, S. Nas, YJ. Jan, “A Front-Tracking Method for the Computations of Multiphase Flow”, *Journal of Computational Physics*, 169, 708–59, 2001.
- [Voi98] A. Voigt, E. Wolf, H. Shrunck, “Grain orientation and grain boundaries in cast multicrystalline silicon”, *Materials Science and Engineering B*, 54, 202–6, 1998.
- [Vol89] V. Voller, A. Brent, C. Prakash, “The modelling of heat and mass and solute transport in solidification systems”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 32, 1719–31, 1989.
- [Wan93a] C. Wang, C. Beckermann, “A Multiphase Solute Diffusion Model for Dendritic Alloy Solidification”, *Metallurgical Transactions A*, 24, 2787–802, 1993.
- [Wan93b] C. Wang, C. Beckermann, “A unified solute diffusion model for columnar and equiaxed dendritic alloy solidification”, *Materials Science and Engineering A*, 171, 199–211, 1993.
- [Wan96a] C. Wang, C. Beckermann, “Equiaxed Dendritic Solidification with Convection : Part I. Multiscale/Multiphase Modeling”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 27, 2754–64, 1996.
- [Wan96b] C. Wang, C. Beckermann, “Equiaxed Dendritic Solidification with Convection : Part II. Numerical Simulations for an Al-4 Wt Pct Cu Alloy”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 27, 2765–83, 1996.

- [Wil03] J. Williams, E. Starke, “Progress in structural materials for aerospace systems”, *Acta Materialia*, 51, 5775–99, 2003.
- [Yin11] H. Yin, S. Felicelli, L. Wang, “Simulation of a dendritic microstructure with the lattice Boltzmann and cellular automaton methods”, *Acta Materialia*, 59, 3124–36, 2011.
- [Zab06] N. Zabaras, B. Ganapathysubramanian, L. Tan, “Modelling dendritic solidification with melt convection using the extended finite element method”, *Journal of Computational Physics*, 218, 200–27, 2006.
- [Zal10a] M. Zaloznik, H. Combeau, “An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model : Part I - Model and solution scheme”, *Computational Materials Science*, 48, 1–10, 2010.
- [Zal10b] M. Zaloznik, A. Kumar, H. Combeau, “An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model : Part II - Application of the model”, *Computational Materials Science*, 48, 11–21, 2010.
- [Zha10] H. Zhang, CA. Gandin, HB. Hamouda, D. Tournet, K. Nakajima, J. He, “Prediction of Solidification Paths for Fe-C-Cr Alloys by a Multiphase Segregation Model Coupled to Thermodynamic Equilibrium Calculations”, *ISIJ International*, 50, 1859–66, 2010.
- [Zhu01] M. Zhu, C. Hong, “A Modified Cellular Automaton Model for the Simulation of Dendritic Growth in Solidification of Alloys”, *ISIJ International*, 41, 436–45, 2001.
- [Zhu07] M. Zhu, C. Hong, D. Stefanescu, Y. Chang, “Computational Modeling of Microstructure Evolution in Solidification of Aluminum Alloys”, *Metallurgical and Materials Transactions B*, 38, 517–24, 2007.



## Développement d'un modèle 3D Automate Cellulaire-Éléments Finis (CAFE) parallèle pour la prédiction de structures de grains lors de la solidification d'alliages métalliques

**Résumé :** La formation de la structure de grains dans les métaux pendant la solidification est déterminante pour les propriétés mécaniques et électroniques des pièces coulées. En plus de la texture donnée au matériau, la germination et la croissance des grains sont liées en particulier avec la formation des phases thermodynamiques et les inhomogénéités en composition d'éléments d'alliage. La structure de grains est rarement modélisée à l'échelle macroscopique, d'autant plus que l'approximation 2D est très souvent injustifiée. Dans ces travaux, la germination et la croissance de chaque grain individuel sont suivies avec un modèle macroscopique 3D CAFE. La microstructure interne des grains n'est pas explicitement résolue. Pour valider les approximations faites sur cette microstructure, une comparaison directe avec un modèle microscopique "champ de phase" a été réalisée. Celle-ci a permis de valider les hypothèses de construction du modèle CAFE, de mettre en avant le lien entre données calculées par les modèles microscopiques et paramètres d'entrée des modèles à plus grande échelle, et les domaines de validité de chaque modèle. Dans un deuxième temps, un couplage avec la ségrégation chimique et les bases de données thermodynamiques a été mise en place et appliquée sur un alliage binaire étain-plomb. Une expérience de macroségrégation par convection naturelle a été simulée. L'accord entre les courbes de température expérimentales et simulées atteint une précision de l'ordre de 1 K, et la recalescence est correctement prédite. Les cartes de compositions sont comparables qualitativement, ainsi que la structure de grains. Les avantages du suivi de la structure ont été mis en évidence par rapport à une simulation par éléments finis classique. De plus, il a été montré que le calcul 3D était ici indispensable. Enfin, une implémentation parallèle optimisée du code a permis d'appliquer le modèle CAFE à un lingot de silicium polycristallin industriel de dimensions 0,192 x 0,192 x 2,08 m, avec une taille de cellules de 250  $\mu\text{m}$ . Au total, 4,9 milliards de cellules sont représentées sur le domaine, et la germination et la croissance de 1,6 million de grains sont suivies.

**Mots clés :** CAFE, solidification, structure de grains, macroségrégation, calcul parallèle

## Development of a 3D parallel Cellular Automaton-Finite Element (CAFE) model for grain structure prediction during solidification of metallic alloys

**Abstract:** Grain structure formation during solidification of metal parts has a big impact on the final mechanical and electronic properties. Besides determining the crystallographic texture, the nucleation and growth of grains are linked and interact with the appearance of thermodynamic phases and inhomogeneities in the alloy's chemical elements distribution. Grain structure is very rarely modeled on the macro scale, especially because the 2D approximation is often not justified. In this work, the nucleation and growth of each individual grain is tracked with the 3D CAFE macroscopic model. The internal microscopic structure is not explicitly solved. In order to validate the assumptions concerning this microstructure, a direct comparison has been done with a microscopic "phase field" model. That comparison led to the validation of some of the hypothesis on which the CAFE model is built. Moreover, the various data computed in microscopic models that can be used as input parameters of the macroscopic models have been identified, and the limits of each model clearly shown. Secondly, coupling with macrosegregation and thermodynamic databases was achieved, and applied to a binary tin-lead alloy. An experiment featuring macrosegregation induced by natural convection was modeled. The agreement between the experimental and the predicted cooling curves is within 1 K, and the recalescence is found to be correctly predicted. The composition maps and the grain structure agree qualitatively with the experiment. The improvement due to structure tracking was demonstrated, regarding a standard finite elements resolution. It was also shown that the 3D simulation is mandatory to reach a good description. Finally, the model was implemented through an optimized parallel algorithm. This permitted to apply the CAFE model on an industrial scale polycrystalline silicon ingot, which dimensions are 0,192 x 0,192 x 2,08 m. The cell size is chosen to be 250  $\mu\text{m}$ . In total, 4,9 billions of cells were represented, and the nucleation and growth of 1,6 million of grains were tracked.

**Keywords:** CAFE, solidification, grain structure, macrosegregation, parallel computation

