

# Liens entre la dynamique de croissance dendritique et le champ de température local du liquide surfondu : Approche numérique.

Mohamad Ali JAAFAR<sup>1,2\*</sup>, Stéphane GIBOUT<sup>1</sup>, Jean-Pierre BÉDÉCARRATS<sup>1</sup>, Daniel R. ROUSSE<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Univ Pau & Pays Adour, Laboratoire de Thermique, Energétique et Procédés-IPRA, EA1932 64000, Pau, France

<sup>2</sup>Groupe de recherche industrielle, École de Technologie Supérieure, Montréal, Canada 1100, rue Notre-Dame Ouest, Montréal (Québec) H3C 1K3

\* (auteur correspondant : mohamadali.jaafar@univ-pau.fr ; jaafar.mohamadali@gmail.com)

**Résumé** - Dans des conditions de déséquilibre important, la cristallisation d'un liquide surfondu donne lieu à la croissance rapide de structures cristallines appelées dendrites. Une méthode numérique de suivi d'interface à double-maillage a été développée dans le but de modéliser l'évolution dynamique de l'interface liquide-solide lors de cette croissance dendritique. Après avoir présenté quelques tests classiques de validation, les différents paramètres caractérisant l'interface seront analysés pour montrer un lien étroit existant entre la vitesse de propagation et le gradient thermique local.

## Nomenclature

$A$	magnitude de l'anisotropie
$c$	capacité calorifique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$
$k$	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
$L$	chaleur latente de fusion, $J.kg^{-1}$
$m$	mode de symétrie
$\vec{n}$	vecteur normale
$t$	temps, $s$
$r$	rayon du germe, $m$
$T$	température, $K$
$T_m$	température de fusion, $K$
$T_h$	température frontière haute, $K$
$T_b$	température frontière basse, $K$
$\Delta T$	degré de surfusion, $K$
$v$	vitesse, $m.s^{-1}$

## Symboles grecs

$\rho$	masse volumique, $kg.m^{-3}$
$\gamma$	tension superficielle, $J.m^{-2}$
$\kappa$	courbure, $m^{-1}$
$\nu$	mobilité cinétique, $m.s^{-1}.K^{-1}$
$\theta$	angle de référence, $rad$
$\Delta t$	pas de temps de calculs, $s$
$\emptyset$	flux thermique, $W$

## Indices et exposants

$s$	solide
$l$	liquide
$f$	interface
$n$	normale
$\gamma$	tension superficielle
$\nu$	mobilité cinétique
$i$	itération de temps

## 1. Introduction

Le processus de solidification d'un liquide surfondu dépend fortement du degré de surfusion, i.e. l'écart entre la température d'équilibre liquide-solide et celle du liquide. Lorsque ce degré est faible, la solidification est dite stable et caractérisée par une interface nette (problème classique de Stefan [1]). En revanche, lorsque le degré de surfusion augmente suffisamment, la solidification d'un liquide surfondu entraîne la formation de structures cristallines appelées dendrites. Ce phénomène est dû à l'interaction complexe entre les nombreux effets géométriques et thermiques à l'interface mobile.

Outre les très nombreuses études expérimentales de visualisation (dont par exemple celles de Gilpin et de Braga [2-3] qui couvrent une période de 35 ans) de la croissance dendritique pour découvrir le comportement de l'interface liquide-solide, plusieurs méthodes numériques

ont été développées afin de modéliser la dynamique de l'interface lors de cette phase dendritique [11]. La difficulté principale rencontrée est que la position de l'interface séparant les deux phases constitue à la fois une limite du domaine et une inconnue du système à résoudre. Ce type de problèmes est classiquement nommé *moving boundary problems*.

Les méthodes numériques peuvent être classées selon la manière dont l'interface est représentée et suivie. Les méthodes de la première catégorie consistent à suivre l'interface explicitement, en utilisant un maillage indépendant du maillage global représentant le domaine diphasique (*front-tracking methods*). Juric et Tryggvason [4], par exemple, ont utilisé cette approche pour modéliser la croissance dendritique bidimensionnelle. Les auteurs ont étudié numériquement le cas de la solidification instable avec différents rapports de discontinuité des propriétés thermophysiques entre les deux phases, et différents types d'anisotropie. Les résultats montrent que les structures dendritiques obtenues sont semblables à celles observées expérimentalement. Plus tard, Al-Rawahi et Tryggvason [5] ont développé cette approche afin de prendre en compte l'effet de transfert thermique convectif dans la phase liquide. Les résultats concordent bien qualitativement avec des résultats expérimentaux pour des cas similaires.

Une deuxième catégorie de méthodes numériques a été développée pour résoudre le problème dendritique. Leur principe consiste à interpréter un paramètre supplémentaire défini dans le domaine entier, variant entre zéro et l'unité, pour localiser l'interface (*Order parameter methods*). Au contraire des méthodes de la première catégorie capables de localiser avec précision l'interface mobile, elle est représentée par une *mushy zone* (zone à la fois solide et liquide) dépendant des dimensionnements des cellules utilisées. Cependant, les méthodes paramétriques sont capables de traiter plus facilement les changements topologiques ayant lieu lors de la croissance dendritique (par exemple rencontre de deux germes). Les principales méthodes faisant partie de cette catégorie sont les *level-set* et les *phase-field*. La méthode *level-set*, utilisée par Chen et al. [6] et Gibou et al. [7], par exemple, suit l'interface à l'aide de la fonction des surfaces de niveau définie dans tout le système. L'interface est repérée par l'ensemble des nœuds où la fonction s'annule. Les résultats produits par cette méthode montrent qu'elle est efficace pour modéliser la croissance dendritique. D'autre part, la méthode de champs de phase consiste à suivre l'interface en introduisant une variable, champs de phase, qui définit l'état physique de chaque point du système. L'équipe de Karma, par exemple, s'est intéressée à développer une méthode de champs de phase pour modéliser la croissance dendritique. Dans un premier temps, Karma et Rappel [8] ont utilisé une approche modélisant la croissance dendritique bidimensionnelle. Plus tard, les mêmes auteurs [9] ont démontré qu'un modèle quantitatif en 3D est également possible avec cette approche de champs de phase.

Malgré le grand volume des études traitant les mécanismes fins intervenant lors de la croissance dendritique, plusieurs questions restent sans réponse satisfaisante quand on aborde le problème dans sa globalité. Par exemple, quels sont les paramètres qui guident la propagation dendritique ? Quelle est l'influence réelle de la thermique ?

Dans ce contexte, cet article a pour but d'étudier numériquement le couplage entre la thermique et la dynamique de l'interface. Ce couplage est obtenu en introduisant l'équation de Gibbs-Thomson (dans sa forme complète) qui décrit la condition d'équilibre thermodynamique locale à l'interface. Après avoir présenté succinctement les différentes équations décrivant la croissance dendritique à la rupture de surfusion des corps purs, l'approche numérique employée sera détaillée. Ensuite, des informations seront données quant à la validation du comportement de la méthode numérique d'une part, et d'autre part, à l'analyse des différents paramètres caractérisant l'interface.

## 2. Formulation numérique

La présente étude traite le cas idéal de la solidification instable des corps purs qui néglige la convection naturelle ayant lieu dans la phase liquide. Une modélisation 2D dans un plan horizontal est retenue, en considérant une épaisseur négligeable selon l'axe de la gravité. Les masses volumiques des deux phases liquide et solide sont supposées égales et constantes. Les discontinuités de capacité calorifique et de conductivité thermique entre les deux phases sont prises en compte. Le problème mathématique de la croissance dendritique consiste alors principalement à résoudre : les équations (1) et (2) de diffusion de la chaleur bidimensionnelle dans les deux régions liquide et solide, l'équation (3) du bilan d'énergie à l'interface, et la condition d'équilibre de Gibbs-Thomson d'une interface non-plane (4) et dynamique.

La diffusion de la chaleur dans les régions liquide et solide est traduite par les équations suivantes :

$$\rho \cdot c_s \cdot \frac{\partial(T)}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (k_s \cdot \vec{\nabla} T) \quad \text{Région solide} \quad (1)$$

$$\rho \cdot c_l \cdot \frac{\partial(T)}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (k_l \cdot \vec{\nabla} T) \quad \text{Région liquide} \quad (2)$$

Le bilan d'énergie à l'interface (projeté selon la normale à l'interface dirigée vers la phase liquide), tenant compte la chaleur latente et la discontinuité des flux conductifs, peut s'exprimer par l'équation suivante :

$$\rho \cdot L(T_f) \cdot v_n = (k_s \cdot \vec{\nabla} T_s - k_l \cdot \vec{\nabla} T_l) \cdot \vec{n} \quad (3)$$

où  $L(T_f)$  est la chaleur latente dépendante de la température de l'interface et  $v_n$  la composante normale de la vitesse locale de l'interface (positive lors de la cristallisation).

Enfin, la condition d'équilibre de Gibbs-Thomson doit être satisfaite afin de calculer la température à l'interface  $T_m$  tenant compte des différents effets géométriques, thermiques et physiques intervenant :

$$T_f = T_m - T_m \cdot \frac{\gamma(n) \cdot \kappa}{\rho \cdot L} - \frac{v_n}{v(n)} - T_m \cdot \frac{(c_l - c_s)}{L} \cdot \left( T_f \cdot \ln \left( \frac{T_f}{T_m} \right) + T_m - T_f \right) \quad (4)$$

## 3. Méthode numérique

L'étude numérique s'appuie sur un code C++ développé au laboratoire. Il résout le problème de la croissance dendritique en modélisant l'évolution bidimensionnelle de l'interface liquide-solide. La résolution numérique repose sur une approche de front-tracking à double maillage : le premier maillage bidimensionnel cartésien est utilisé pour la résolution des équations de transferts thermiques dans les phases liquide et solide ; le second correspond à une discrétisation représentant l'interface mobile. Les principaux avantages de cette approche résident dans les faits qu'elle permet la localisation précise de l'interface indépendamment de la finesse du maillage global thermique pour des études quantitatives d'une part, et d'autre part, qu'elle permet de résoudre simultanément les équations 1 et 2, ce qui permet d'envisager la parallélisation du code.

Une méthode de volumes finis est implantée pour discrétiser le système d'équations différentielles classiques qui décrit la diffusion de la chaleur. Par conséquent, les deux régions liquide et solide sont subdivisées en volumes élémentaires rectangulaires d'épaisseur unitaire. L'interface mobile est représentée, par un ensemble de points discrets en mouvement. Du fait de la déformation de l'interface, l'ajout et/ou la suppression de point est nécessaire afin de maintenir la précision de localisation tout en évitant l'explosion des temps de calcul.

L'algorithme numérique comporte principalement deux étapes itératives au cours du temps. La première étape correspond au calcul du mouvement élémentaire de tous les points d'interface, desquels on déduit la nouvelle géométrie de l'interface ainsi que les termes sources latents. En négligeant la convection naturelle dans la phase liquide, la seconde étape consiste à la mise à jour des champs de température des cellules, décomposant les deux phases liquide et solide, tenant compte des flux conductifs échangés avec les cellules entourant, ainsi que des termes sources latents calculés.

Le rayon de la courbure associé à chaque nœud de l'interface est évalué en considérant un cercle unique passant par le point considéré et la paire des points adjacents (fig. 1). La normale est également déduite du vecteur reliant le centre du cercle calculé et le point d'interface concerné.

Les expressions non-isotropes de la tension superficielle et de l'inverse de la mobilité cinétique sont tirées directement de la littérature [4] ;

$$\gamma(\theta) = \gamma \times \left\{ 1 + A_\gamma \left[ \frac{8}{3} \times \sin^4 \left( \frac{1}{2} \times m_\gamma \times (\theta - \theta_\gamma) \right) - 1 \right] \right\} \quad (5)$$

$$\frac{1}{v(\theta)} = \left( \frac{1}{v} \right) \times \left\{ 1 + A_v \left[ \frac{8}{3} \times \sin^4 \left( \frac{1}{2} \times m_v \times (\theta - \theta_v) \right) - 1 \right] \right\} \quad (6)$$

où  $\theta_\gamma$  et  $\theta_v$  donnent l'angle de l'axe de symétrie du cristal par rapport à une direction choisie comme référence (axe horizontale).

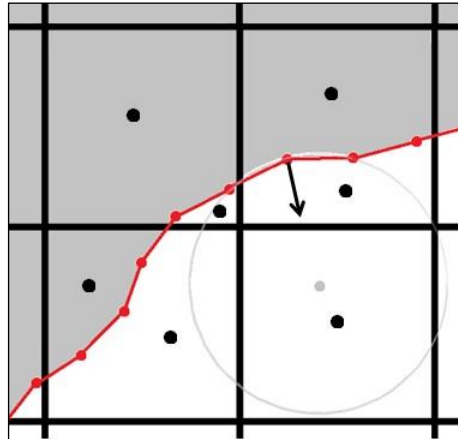


Figure 1 : *Quatre cellules adjacentes : (droite-bas) sans interface ; (trois autres) avec interface. Le cercle unique relie trois points de l'interface.*

Suite à l'évaluation de tous les paramètres nécessaires à la résolution du problème de l'interface à chaque point (éq. 3 et 4), les flux conductifs correspondant aux flux latents échangés entre les points d'interface et les deux phases seront déduits.

L'équation de diffusion est ensuite résolue pour chaque volume élémentaire en tenant compte des flux conductifs échangés entre les cellules adjacentes, et de la chaleur latente évacuée suite au processus de solidification dans les cellules contenant une interface. Un schéma explicite d'Euler est appliqué pour résoudre cette équation :

$$T_{cellule}^{i+1} = T_{cellule}^i + \Delta t. \left( \frac{\sum \phi_{cond.} + \sum \phi_{latents}}{\rho \cdot c \cdot V_{cellule}^i} \right) \quad (7)$$

$\sum \phi_{cond.}$  est la somme des flux conductifs avec les cellules adjacentes, et  $\sum \phi_{latents}$  est la somme des flux latents évacués par les portions d'interface présentes dans le volume

considéré. Les flux latents sont donc nuls dans les cellules où l'interface n'intervient pas (cellule droite-bas sur la fig. 1), mais non nuls dans les cellules où l'interface intervient (les autres cellules sur la fig. 1). La description complète de la méthode numérique est disponible dans [10].

## 4. Résultats

Dans cette section, quelques résultats sont présentés et discutés. La solidification est initiée en introduisant un petit germe solide circulaire de rayon  $r$  au sein du domaine contenant du liquide surfondu. Initialement, la température du solide est supposée constante et égale à la température de fusion  $T_m$ .

### 4.1. Solidification stable circulaire

La méthode numérique doit être capable de modéliser correctement le cas de solidification stable, pour lequel les effets d'anisotropie sont négligés. La température du liquide surfondu est considérée homogène et inférieure à  $T_m$ . Carslaw et Jaeger ont développé une solution analytique pour une géométrie circulaire, et ont déduit que le rayon de l'interface est proportionnel à la racine carrée du temps [1]. L'interface obtenue garde sa forme circulaire initiale, et les résultats obtenus de la variation du carré de son rayon moyen en fonction de temps sont représentés sur la figure 2 suivante. Comme montre cette figure, les résultats obtenus sont linéaires et alors en accord avec les prédictions analytiques, ce qui valide le comportement du code numérique. On notera que la déviation sur les temps longs provient des conditions aux limites qui ont été considérées adiabatiques dans cet exemple. En effet, la cristallisation s'accompagne d'une libération d'énergie qui induit une augmentation globale de la température du liquide et donc une réduction de la vitesse.

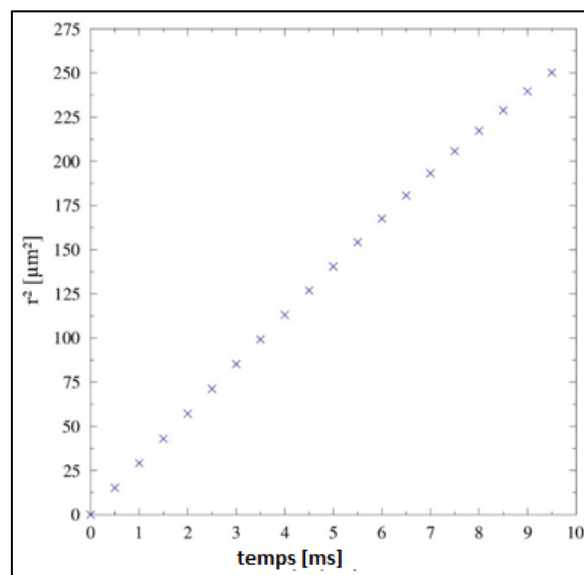


Figure 2 : Résultats numériques de la variation du carré du rayon moyenne en fonction de temps. Cas de solidification stable.

### 4.2. Solidification instable : quatre et six branches

Le code a également été testé dans des cas de solidification instable, pour lesquels des structures dendritiques peuvent apparaître. Ces cas peuvent être produits en considérant des propriétés anisotropiques de la tension superficielle et de la mobilité cinétique (éq. 5 et 6). Deux différents modes sont testés : les symétries impliquant quatre et six branches. Un

domaine de  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  est considéré dans les deux cas. Les résultats obtenus sont présentés sur les figures 3 et 4.

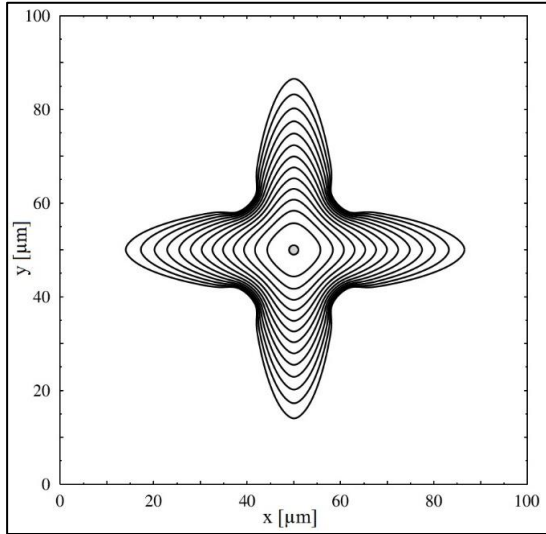


Figure 3 : Evolution de l'interface en mode quatre branches.  $r = 1 \mu\text{m}$ .  $\Delta T = 10 \text{ K}$ .  $m_\gamma = m_\nu = 4$ .  $\gamma = 0.05$ .  $\theta_\gamma = \theta_\nu = 0$ . Température imposée aux frontières  $T_\infty - 1 \text{ K}$ . Intervalle de temps entre interfaces  $1 \text{ ms}$ .

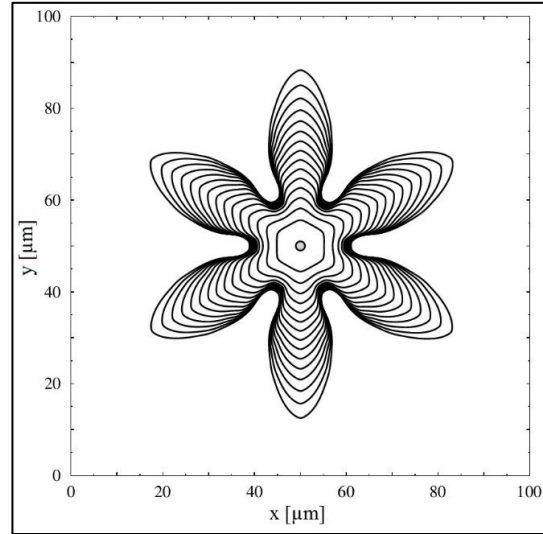


Figure 4 : Evolution de l'interface en mode six branches.  $r = 1 \mu\text{m}$ .  $\Delta T = 10 \text{ K}$ .  $m_\gamma = m_\nu = 6$ .  $\gamma = 0.05$ .  $\theta_\gamma = \theta_\nu = \frac{\pi}{6}$ . Température imposée aux frontières  $T_\infty - 1 \text{ K}$ . Intervalle de temps entre interfaces  $1 \text{ ms}$ .

Les interfaces obtenues dans ces cas instables ne gardent pas leurs formes circulaires initiales, mais se déforment selon le mode imposé par la tension superficielle et la mobilité cinétique : quatre et six directions privilégiées sont observables avec le mode de quatre et six branches, respectivement. Ces résultats démontrent la bonne implémentation de la méthode numérique ainsi que la bonne interaction entre les différents paramètres responsables des structures dendritiques dans des cas de solidification instables.

### 4.3. Dynamique de l'interface

Dans cette dernière section, au contraire des cas précédents, la température initiale du liquide n'est pas homogène ; un gradient thermique initial est imposé entre les deux frontières haute et basse du domaine. Le domaine est rectangulaire de  $120 \times 60 \mu\text{m}^2$ . Les températures imposées aux frontières haute et basse sont présentées pour tous les cas dans le tableau 1 ci-dessous. Les frontières droite et gauche sont supposées adiabatiques.

Cas	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
$T_h - T_m$	-7	-11	-15	-19	-12	-13.5	-16.5	-18	-19.5	-21
$T_b - T_m$	-1	-5	-9	-13	-12	-10.5	-7.5	-6	-4.5	-3

Tableau 1 : Caractéristiques thermiques des cas testant le comportement de la croissance dendritique dans une température initiale liquide non-homogène.

Du fait de la non-homogénéité des conditions thermiques imposées sur les frontières haute et basse (sauf cas 5 pour lequel des conditions homogènes sont considérées), la forme dendritique obtenue est asymétrique [10]. La dynamique de l'interface est étudiée en suivant la position des extrémités haute et basse de l'interface, dont on déduit les vitesses de

propagation des extrémités des dendrites<sup>1</sup>. Les variations de la vitesse haute et basse de la dendrite en fonction de temps sont respectivement présentées sur les figures 5 et 6 ci-dessous.

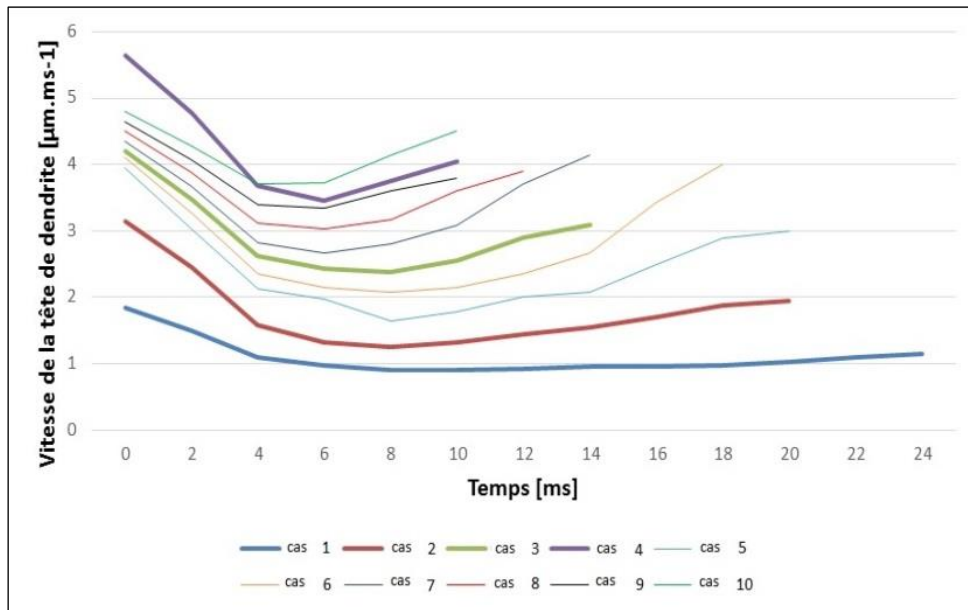


Figure 5 : Variation de la vitesse de la tête de la dendrite dans la région haute (ayant une température initiale plus basse) dans les cas 1 à 10 du tableau 1.

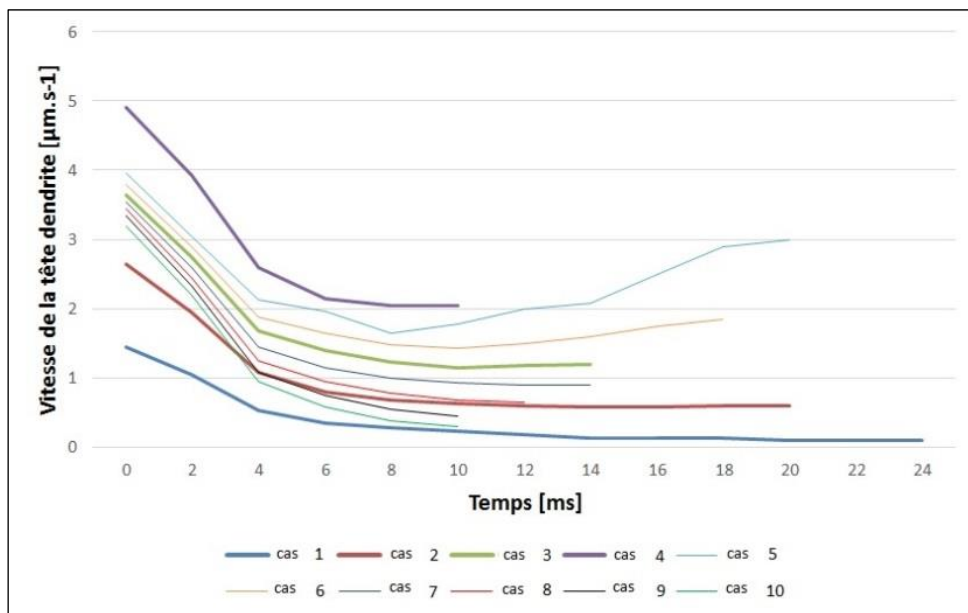


Figure 6 : Variation de la vitesse de la tête de la dendrite dans la région basse (ayant une température initiale plus haute) dans les cas 1 à 10 du tableau 1.

La figure 5 montre que les vitesses de la dendrite dans la région haute suivent la même allure en fonction de temps : elles diminuent rapidement juste après la rupture de surfusion, ensuite elles passent par une valeur minimale puis remontent significativement. Cette allure n'est pas respectée dans tous les cas dans la région basse, comme le montre la figure 6. On y observe globalement des vitesses plus basses, avec une diminution initiale mais sans remontée franche.

<sup>1</sup>  $v_{tip}^i = \frac{d_{tip}^{i+1} - d_{tip}^{i-1}}{2\Delta t}$ , où  $d$  représente la position de l'interface.

Cette différence met en évidence un lien étroit entre la dynamique de l'interface et le transfert thermique local de la chaleur latente évacuée par l'interface. En effet, lorsque l'interface se propage rapidement (par rapport au transfert thermique), elle se trouve dans une zone où la chaleur libérée par la cristallisation n'a pas encore diffusée : l'interface continue sa propagation sans être freinée. C'est le cas de la région haute où le gradient thermique est favorable. Dans le cas opposé, l'interface est relativement plus lente, et elle se propage dans une zone préchauffée par la chaleur évacuée aux instants précédents : l'interface est alors freinée et se propage moins rapidement.

## 5. Conclusion

Une méthode numérique de suivi d'interface a été développée dans le but de modéliser la dynamique de la croissance dendritique lors de la solidification instable des corps purs surfondus. L'interface est représentée par un ensemble des points mobiles sur un maillage thermique cartésien représentant le domaine entier.

L'approche de suivi d'interface est couplée avec une méthode des volumes finis pour la discrétisation des zones liquide et solide, et une intégration explicite d'Euler pour le temps.

Suite aux tests classiques vérifiant le bon comportement du code numérique, l'analyse des résultats obtenus avec une température initiale du liquide non-homogène montre un lien étroit existant entre la vitesse de propagation de l'interface et le gradient thermique local.

## Références

- [1] H. Carslaw and J. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, Clarendon Press, Oxford (1959).
- [2] R. R. Gilpin, The effects of dendritic ice formation in water pipes., *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 20 (1977), 693-699.
- [3] S.L. Braga, and J.J. Milon, Visualization of dendritic ice growth in supercooled water inside cylindrical capsules, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55 (2012), 3694-3703.
- [4] D. Juric, and G. Tryggvason, A front-tracking method for dendritic solidification, *Journal of Computational physics*, 123 (1996), 127-148.
- [5] N. Al-Rawahi, and G. Tryggvason, Numerical simulation of dendritic solidification with convection: Three-dimensional flow, *Journal of Computational physics*, 194 (2004), 677-696.
- [6] S. Chen, B. Merriman, S. Osher, and P. Smereka, A simple level set method for solving Stefan problems, *Journal of Computational physics*, 135 (1997), 8-29.
- [7] F. Gibou, R. Fedkiw, R. Caflisch, and S. Osher, A level set approach for the numerical simulation of dendritic growth, *Journal of Scientific Computing*, 19 (2003), 183-199.
- [8] A. Karma, and W-J. Rappel, Phase-field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics, *Physical Review E*, 53 (1996), 3017-3020.
- [9] A. Karma, and W-J. Rappel, Quantative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions, *Physical Review E*, 57 (1998), 4323-4348.
- [10] M.A. Jaafar. *Modélisation de la dynamique de la croissance dendritique des corps purs à la rupture de surfusion*. Thèse de doctorat en cotutelle internationale (2016). Université de Pau et des Pays de l'Adour, et Ecole de Technologie Supérieure de Montréal.
- [11] M.A. Jaafar, D.R. Rousse, S. Gibout, and J.P. Bédécarrats, A review of dendritic growth during solidification: mathematical modeling and numerical simulations. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 74 (2017), 1064-1079.