

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ À

L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAITRISE EN RESSOURCES ET SYSTEMES

PAR

GASTON RIVERIN

**PURIFICATION DE L'ALUMINIUM PAR
CRISTALLISATION FRACTIONNÉE**

JUIN 1993



Mise en garde/Advice

Afin de rendre accessible au plus grand nombre le résultat des travaux de recherche menés par ses étudiants gradués et dans l'esprit des règles qui régissent le dépôt et la diffusion des mémoires et thèses produits dans cette Institution, **l'Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)** est fière de rendre accessible une version complète et gratuite de cette œuvre.

Motivated by a desire to make the results of its graduate students' research accessible to all, and in accordance with the rules governing the acceptance and diffusion of dissertations and theses in this Institution, the **Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)** is proud to make a complete version of this work available at no cost to the reader.

L'auteur conserve néanmoins la propriété du droit d'auteur qui protège ce mémoire ou cette thèse. Ni le mémoire ou la thèse ni des extraits substantiels de ceux-ci ne peuvent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

The author retains ownership of the copyright of this dissertation or thesis. Neither the dissertation or thesis, nor substantial extracts from it, may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

A ma mère, à mon père

Résumé

Un réacteur expérimental est construit qui permet de fondre, solidifier et purifier de l'aluminium par cristallisation fractionnée. La température du métal liquide, l'agitation et le refroidissement peuvent être variés pour permettre d'étudier différents paramètres du procédé de cristallisation.

L'opération du réacteur ainsi que les essais faits à partir d'aluminium de pureté commerciale (99.7- 99.85%) sont décrits dans ce mémoire. Le réacteur possède une capacité de 200 kg d'aluminium. Le réacteur permet de purifier un mélange de 99.7 à plus de 99.9% du pureté.

Un modèle mathématique pour simuler la solidification de l'aluminium dans le réacteur expérimental est aussi construit. Le modèle permet de simuler les transferts de chaleur et de masse présents dans le réacteur durant le procédé de cristallisation en fonction de la vitesse d'agitation de l'aluminium liquide et du débit du fluide refroidissant dans le réacteur.

La modélisation du transfert de chaleur se fait par une méthode explicite en différences finies. Le transfert de masse est solutionné par un bilan autour de l'interface solide-liquide à la frontière de la solidification en y incorporant les coefficients de distribution des impuretés dans les phases liquide et solide.

Le modèle permet de prédire les températures du fluide refroidissant et des parois du réacteur durant la solidification. Par le transfert de masse, le modèle prédit la concentration des impuretés telles que le fer et le silicium dans le solide cristallisé à partir des concentrations de ces mêmes impuretés dans le mélange liquide de départ.

Finalement, une validation du modèle est obtenue par comparaison avec des données expérimentales.

Remerciements

Je tiens à remercier sincèrement le professeur André Charette, D. Sc., qui, comme directeur a su me supporter et m'encourager tout au long de ce travail.

Je veux aussi souligner la grande contribution de M. Cesur Celik, Ph. D., mon codirecteur, pour son engagement et la confiance qu'il a témoigné à mon égard pour la durée de cette recherche.

Je remercie les membres du GRIPS et en particulier, M. Guy Simard pour son rôle essentiel pour la modélisation du transfert de chaleur, ainsi que les membres du groupe transformation et en particulier, Messieurs Ghyslain Dubé, Serge Lavoie, Edgar Dernedde, Roger Pelletier, Serge Munger et Mario Bouchard, pour leurs conseils judicieux et leurs contributions pertinentes. Une pensée particulière à mon épouse, Lise Tremblay, pour son support du début à la fin de ce travail.

Je remercie la Fondation Asselin ainsi que Alcan International pour leur support financier tout au long de ce mémoire.

Table des matières

Résumé	iii
Remerciements	iv
Liste des figures	viii
Liste des tableaux	xii
Symboles	xiii
Introduction	1
1 La cristallisation fractionnée	4
1.1 Généralités	4
1.2 Mécanismes de la cristallisation fractionnée	4
1.3 Cristallisation fractionnée et transfert de masse	8
1.4 Travaux antérieurs	15
2 Description du réacteur expérimental et opérations	25
2.1 Description du réacteur expérimental	25
2.2 Appareils de mesure	31
2.3 Procédure expérimentale	34
2.3-1 Chargement et fonte de la charge initiale	34
2.3-2 Solidification du métal purifié	35
2.3-3 Coupe et analyse du métal purifié	36
3 Méthodes numériques de calcul	37
3.1 Introduction	37
3.2 Modélisation du système de solidification	38
3.2-1 Hypothèses utilisées	39
3.3 Transfert de chaleur	41
3.3-1 Equations fondamentales	41
3.3-2 Discrétisation de l'équation d'énergie sous la forme explicite	42

3.3-3	Méthode de solution	44
3.4	Transfert de masse	45
3.4-1	Méthode de solution des équations de transfert de masse	46
4	Résultats expérimentaux	48
4.1	Température	48
4.2	Agitation	49
4.3	Débit du fluide refroidissant	55
4.3-1	Débit d'air	56
4.3-2	Débit d'eau	60
5	Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle	65
5.1	Algorithme de résolution du modèle mathématique	65
5.1-1	Initialisation des variables et des différentes entrées	66
5.2	Validation du modèle: Les températures	68
5.2-1	Effet de la vitesse d'agitation sur les températures	69
5.2-2	Effet du débit d'air sur les températures.	77
5.2-3	Effet du débit d'eau sur les températures.	81
5.3	Validation du modèle: Concentration des impuretés dans le solide cristallisé.	86
5.3-1	Effet de la vitesse d'agitation sur la concentration des impuretés.	87
5.3-2	Effet du débit d'air sur la concentration des impuretés.	89
5.3-3	Effet du débit d'eau sur la concentration des impuretés.	90
Conclusion.	93	
Appendice A	Propriétés thermiques de l'aluminium.	95
Appendice B	Algorithme de résolution du modèle.	99
Appendice C	Diagrammes de phases pour le fer, le silicium le titane et le vanadium avec l'aluminium.	110

Bibliographie.	115
-------------------------------	-----

Liste des figures

Figure 1: Portion du diagramme de phases d'une impureté eutectique	5
Figure 2: Gradient de température à l'interface.	9
Figure 3: Volume élémentaire.	10
Figure 4: Interface de solidification.	11
Figure 5: Méthode Alcoa (1).	16
Figure 6: Méthode Alcoa (2).	17
Figure 7: Méthode Reynolds.	18
Figure 8: Méthode Péchiney.	19
Figure 9: Méthode Mitsubishi.	20
Figure 10: Méthode Nippon Light Metal.	21
Figure 11: Méthode Showa Aluminum (1).	22
Figure 12: Méthode Showa Aluminum (2).	23
Figure 13: Méthode Showa Aluminum (3).	24
Figure 14: Montage expérimental.	26
Figure 15: Circuit du fluide refroidissant.	28
Figure 16: Système d'agitation.	30
Figure 17: Position des thermocouples autour du montage.	33
Figure 18: Système de solidification.	37
Figure 19: Coupe axiale du prototype.	39

Figure 20:	Schéma du système Liquide-Solide-Fluidé refroidissant.	42
Figure 21:	Croissance du solide au haut du réacteur.	50
Figure 22:	Effet de la vitesse d'agitation sur la pureté.	51
Figure 23A:	Effet de la vitesse d'agitation sur les concentrations de fer et de silicium.	52
Figure 23B:	Effet de la vitesse d'agitation sur les coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium.	53
Figure 24A:	Effet de la vitesse d'agitation sur les concentrations de titane et de vanadium.	53
Figure 24B:	Effet de la vitesse d'agitation sur les coefficients de distribution effectif pour le titane et le vanadium.	54
Figure 25:	Effet du débit d'air sur la pureté.	57
Figure 26A:	Effet du débit d'air sur les concentrations de fer et de silicium.	58
Figure 26B:	Effet du débit d'air sur les coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium.	59
Figure 27A:	Effet du débit d'air sur les concentrations de titane et de vanadium.	59
Figure 27B:	Effet du débit d'air sur les coefficients de distribution effectif pour le titane et le vanadium.	60
Figure 28:	Effet du débit d'eau sur la pureté.	61
Figure 29A:	Effet du débit d'eau sur les concentrations de fer et de silicium.	62
Figure 29B:	Effet du débit d'eau sur les coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium.	63
Figure 30A:	Effet du débit d'eau sur les concentrations de titane et de vanadium.	63

Figure 30B: Effet du débit d'eau sur les coefficients de distribution effectif pour le titane et le vanadium.	64
Figure 31: Température du fluide refroidissant à la sortie, Agitation = 150 RPM (Résultats du modèle vs réacteur).	70
Figure 32: Température du fluide refroidissant à la sortie, Agitation = 225 RPM (Résultats du modèle vs réacteur).	71
Figure 33: Croissance typique du solide cristallisé	72
Figure 34: Schéma du comportement de l'eau dans la chambre de refroidissement	73
Figure 35: Interprétation physique des courbes des coefficients de transfert de chaleur pour le refroidissement de la surface d'un tube par un mélange air/eau	74
Figure 36: Température de la paroi au centre, Agitation = 225 RPM (Résultats du modèle vs réacteur).	76
Figure 37: Température du fluide refroidissant à la sortie, Débit d'air=4250 L/min.(Résultats du modèle vs réacteur).	78
Figure 38: Température du fluide refroidissant à la sortie, Débit d'air=5650 L/min.(Résultats du modèle vs réacteur).	79
Figure 39: Température de la paroi au centre, Débit d'air = 4250 L/min. (Résultats du modèle vs réacteur).	80
Figure 40: Température du fluide refroidissant à la sortie, Débit d'eau=0,2 kg/min.(Résultats du modèle vs réacteur).	82
Figure 41: Température du fluide refroidissant à la sortie, Débit d'eau=0,6 kg/min.(Résultats du modèle vs réacteur).	83
Figure 42: Température de la paroi au centre, Débit d'eau = 0,6 kg/min. (Résultats du modèle vs réacteur).	85
Figure B.1: Algorithme principal de résolution du modèle	105

Figure B.2: Algorithme pour évaluer l'enthalpie selon la nature du noeud (solide, liquide, refroidissant)	106
Figure B.3: Algorithme pour évaluer la transformée de Kirchoff	107
Figure B.4: Algorithme pour évaluer l'enthalpie à partir de la température	108
Figure B.5: Algorithme pour évaluer la température à partir de la enthalpie	109
Figure C.1: Diagramme de phases Aluminium-Fer	111
Figure C.2: Diagramme de phases Aluminium-Silicium.	112
Figure C.3: Diagramme de phases Aluminium-Titanium	113
Figure C.4: Diagramme de phases Aluminium-Vanadium.	114

Liste des tableaux

Tableau 1(a):	Données expérimentales obtenues en variant la vitesse d'agitation - Données initiales.	51
Tableau 1(b):	Données expérimentales obtenues en variant la vitesse d'agitation - Données finales.	52
Tableau 2(a):	Données expérimentales obtenues en variant le débit d'air - Données initiales.	57
Tableau 2(b):	Données expérimentales obtenues en variant le débit d'air - Données finales.	58
Tableau 3(a):	Données expérimentales obtenues en variant le débit d'eau - Données initiales.	61
Tableau 3(b):	Données expérimentales obtenues en variant le débit d'eau - Données finales.	62
Tableau 4:	Coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium en fonction de la variation de la vitesse d'agitation.	88
Tableau 5:	Coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium en fonction de la variation du débit d'air.	90
Tableau 6:	Coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium en fonction de la variation du débit d'eau.	91

Liste des symboles

A:	Aire	[m ²]
a:	Constante d'intégration	
b:	Constante d'intégration	
CA:	Concentration de l'impureté A	
CA _i :	Concentration de l'impureté A à l'interface	
CA _l :	Concentration de l'impureté A dans la phase liquide	
CA _s :	Concentration de l'impureté A dans la phase solide	
CPA:	Chaleur massique du fluide refroidissant	[J/m ³ -K]
C ₀ :	Concentration initiale	
D:	Diffusivité	[m ² /s]
DA-B:	Diffusivité massique de l'impureté A dans B	[m ² /s]
f:	Vitesse de solidification	[m/s]
H:	Enthalpie volumique	[J/m ³]
H _A :	Enthalpie volumique du fluide refroidissant	[J/m ³]
H _L :	Enthalpie volumique du liquide	[J/m ³]
H _M :	Enthalpie volumique du moule	[J/m ³]
H _P :	Enthalpie volumique du moule	[J/m ³]
h _C :	Coefficient de transfert de chaleur par convection du fluide refroidissant	[W/m ² -°C]
h _L :	Coefficient de transfert de chaleur dans le liquide	[W/m ² -°C]
h _R :	Coefficient de transfert de chaleur par rayonnement	[W/m ² -°C]
K:	Coefficient de distribution	
K _e :	Coefficient de distribution effectif	
K ₀ :	Coefficient de distribution à l'équilibre	
L:	La courbe liquidus	
M:	Chaleur latente de solidification	[KJ/kg]
M _A :	Point de fusion de l'aluminium pur	
	Masse molaire du composant A	[kg]

MB:	Massé molaire du composant B	[kg]
Q	Débit de chaleur	[W]
R:	Rayon du purificateur	[m]
S:	La courbe solidus	
T:	Température	[K]
TL:	Température du liquide	[K]
TP:	Température de la paroi du moule	[K]
t:	Temps	[s]
X	Composition moyenne du mélange original avec une concentration x % poids	%
w:	Fraction massique	
wi:	Fraction massique du composant à l'interface	
wL:	Fraction massique du composant dans le liquide	
ws:	Fraction massique du composant dans le solide	
z:	Distance à partir de la frontière de solidification [m]	
Zf:	Epaisseur du film diffusif	[m]

Lettres grecques

ρ_A :	Densité de l'impureté A	[kg/m ³]
ρ_L :	Densité du liquide	[kg/m ³]
θ :	Temps	[s]
α :	Diffusivité thermique modifiée par la transformée de Kirchoff	[m ² /s]
ν :	Evènement	
μ_B :	Viscosité du composant B	[kg/m-s]

Introduction

Dans la pratique, trois applications sont utilisées pour caractériser la pureté de l'aluminium:

- (1) aluminium commercial: 99.7 à 99.85% pds
- (2) aluminium de haute pureté: 99.9 à 99.99% pds et
- (3) aluminium d'extrême pureté: 99.99 pds +

L'aluminium de haute pureté est utilisé dans la production automobile et pour d'autres applications où l'obtention d'un fini brillant est important: matériaux de construction pour les réacteurs nucléaires, étalons pour les analyses spectrographiques, pièces pour conducteurs, feuilles pour condensateurs, dans l'industrie des peintures, etc... La brillance de l'aluminium est déterminée par sa concentration de fer et de silicium; pour obtenir une brillance maximale il est important de garder la concentration de fer et de silicium la plus basse possible. Un produit possède une brillance de bonne qualité si la concentration de fer et de silicium est de 0.05% pds ou moins.

L'aluminium de haute pureté est produit par une méthode ou une combinaison des méthodes suivantes:

- l'électrolyse à trois couches
- le raffinage par zone ("zone refining") et
- la cristallisation fractionnée [1].

Dans la méthode à trois couches, l'électrolyse est réalisée à travers un ensemble de trois couches de conducteurs électrolytiques placés dans un même bain d'électrolyse. Les volumes massiques différents des trois couches les gardent séparées les unes des autres. En utilisant cette méthode, des puretés de 99.99 à 99.999% peuvent être obtenues. Cependant, la consommation énergétique est énorme,

pouvant atteindre 10,000 fois la charge théorique. Dans le cas de la méthode de raffinage par zone, la purification du métal est faite seulement à échelle de laboratoire. C'est une méthode qui est basée sur un principe de ségrégation des impuretés. En déplacant lentement une barre d'aluminium dans un four, il se produit un déplacement correspondant d'une zone de métal en fusion d'un bout à l'autre de la barre. Les impuretés sont séparées dans cette zone en fusion et s'accumulent éventuellement dans le dernier bout de la barre. Ainsi, la pureté de la portion de la barre en amont du déplacement s'accroît. En répétant ce procédé plusieurs fois, la pureté de la barre peut atteindre les niveaux des autres méthodes connues. Cette méthode est difficile à réaliser et occasionne des investissements élevés.

La purification par cristallisation fractionnée de son côté est plus facile à opérer, requiert des investissements minimes et est économique à opérer. L'objectif principal de la cristallisation fractionnée est de former une phase solide purifiée à partir d'une phase liquide impure. Quand une quantité d'aluminium liquide, contenant des impuretés eutectiques (impuretés qui subissent une réaction eutectique avec l'aluminium comme le fer, le silicium, le gallium, etc...), est soumise à un refroidissement, le cristal qui sera solidifié possèdera une concentration d'aluminium plus élevée que la quantité d'aluminium liquide d'où il provient. Certains avantages rendent la cristallisation fractionnée comme une alternative attrayante par rapport aux autres procédés:

- (1) La séparation se fait à basse température (économie d'énergie).
- (2) Certaines impuretés de formes eutectiques peuvent être éliminées presqu'entièrement.
- (3) Le mécanisme impliquant la cristallisation en est un de diffusion (aucune addition chimique requise).

Le chapitre 1 de cette étude présente une vue générale de la cristallisation fractionnée en plus de faire une revue critique de la littérature sur le sujet. Au chapitre 2, le dispositif expérimental est décrit ainsi que la procédure expérimentale suivie lors des essais. Les méthodes de mesures sont aussi présentées au chapitre 2. Au chapitre 3, les calculs théoriques du transfert de chaleur et du transfert de masse sont développés. Par la suite au chapitre 4, les résultats expérimentaux sont résumés en fonction de différents

paramètres d'opération. Enfin le chapitre 5 présente les résultats numériques obtenus en les comparant aux résultats expérimentaux.

La cristallisation fractionnée

1.1 Généralités

La cristallisation fractionnée à partir de solutions est depuis longtemps utilisée pour purifier ou isoler différents éléments. Dans ce procédé, le mélange à être purifié est complètement fondu pour être ensuite solidifié partiellement en contrôlant les conditions agissant sur cette solidification; pour certains matériaux la cristallisation fractionnée est la seule méthode applicable [2]. La caractéristique principale de la cristallisation fractionnée est de séparer un solvant des solutés (impuretés), basé sur le fait que la composition solide diffère habituellement de la composition liquide quand il y a solidification partielle. L'avantage principal de la cristallisation fractionnée est qu'elle ne fait pas intervenir un troisième agent, qui pourrait contaminer l'élément à purifier [3].

1.2 Mécanisme de la cristallisation fractionnée

Le mécanisme de la cristallisation fractionnée est schématisé à la figure 1. Quand une quantité d'aluminium en fusion contenant des impuretés eutectiques (impuretés qui subissent une réaction eutectique avec l'aluminium liquide i.e. impuretés qui abaissent le point de fusion de l'aluminium comme le fer, la silice, le magnésium, le cuivre, etc...) à une concentration X est soumise à un refroidissement, les cristaux qui sont les premiers à se solidifier sont d'une concentration en aluminium Z supérieure à la concentration de la solution originale. Par conséquent, il est possible par solidification partielle du mélange de produire une fraction solide qui,

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

séparable de la fraction liquide en fusion, est d'une pureté supérieure à celle de la solution originale [4, 5, 6].

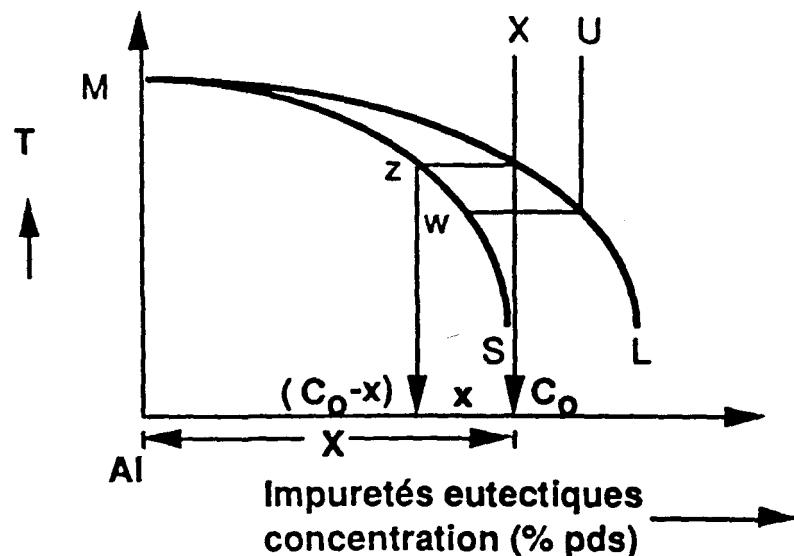


Figure 1: Portion d'un diagramme de phases d'une impureté eutectique.

M = point de fusion de l'aluminium pur

L = la courbe liquidus

S = la courbe solidus

X = la composition moyenne du mélange original avec une concentration d'impuretés eutectiques, X (% poids).

La formation d'une phase cristalline solide à partir d'une solution liquide survient généralement seulement quand la sursaturation ou un refroidissement sous le point de fusion du système a d'abord été obtenu. Cet état doit être obtenu dans toute opération de cristallisation et le degré de sursaturation est le facteur contrôlant la vitesse de déposition du cristal. La cristallisation peut être réalisée en trois étapes [7]:

- (1) atteinte de la sursaturation: la sursaturation d'une solution peut être atteinte par différents moyens; refroidissement de la solution sous son point de fusion, évaporation des solvants à partir de la solution, addition d'un agent précipitant ou résultat d'une réaction chimique.
- (2) formation du noyau du cristal (nucléation): la sursaturation seule ne cause pas la formation d'une phase solide, pour

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

qu'il y ait croissance du cristal, il doit y avoir présent dans la solution des particules servant de point de nucléation. Ces particules de nucléation peuvent être le résultat de divers phénomènes:

- (i) nucléation spontanée à partir d'une solution sans grains de nucléation
- (ii) attrition du cristal existant
- (iii) chocs mécaniques
- (iv) inoculation de la solution sursaturée avec de petites particules de cristaux et
- (v) gradients locaux de température et de concentration.

Le mécanisme le plus probable est celui de cristaux formés à partir des collisions moléculaires.

(3) croissance du cristal: après que des particules stables se soient formées à partir de la solution sursaturée, celles-ci continuent de croître jusqu'à devenir des cristaux visibles.

Plusieurs processus de croissance des cristaux sont décrits dans la littérature. Dans le cas d'une sursaturation provoquée par le refroidissement d'une solution, les cristaux ont souvent la forme de petits arbres appelés dendrites. Ce type de croissance est attribué à un transfert rapide de la chaleur. Les dendrites sont formées dès les premiers instants de la cristallisation, et un mince film liquide plus conducteur se forme près des dendrites. Cependant, l'agitation tend à briser cette croissance dendritique. Comme la croissance du cristal continue, les espaces générés par la configuration dendritique sont remplis, et un autre type de croissance cristalline a lieu. Dans ce type de croissance avec des espaces remplis, il est plus que probable que des impuretés soient piégées dans la structure cristalline.

Le type de croissance cristalline qui nous intéresse peut être illustré généralement à la figure 1 [2].

Durant le refroidissement, le mélange en fusion va théoriquement produire un solide enrichi en aluminium possédant la composition Z. La concentration d'impuretés eutectiques sera réduite de x (% poids)

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

et sera de $X-x$ (% poids). En continuant la solidification, le mélange en fusion devient de plus en plus concentré en impuretés eutectiques. A une concentration U , le solide produit a une composition W avec une concentration en aluminium moins élevée que le solide produit précédemment. Plus la pente de la courbe solidus S est prononcée, plus la différence de concentration entre les compositions Z et W sera faible i.e. moins la concentration du solide produit changera.

Dans les procédés de cristallisation conventionnels, il a été observé que dans la masse solide produite, une quantité d'impuretés est absorbée. Ceci dépend en grande partie de la grosseur et de la forme des cristaux générés lors de la cristallisation. Des cristaux gros et uniformes provenant d'une solution de faible viscosité, retiendront une faible quantité de solution mère, tandis que des petits cristaux non uniformes formés à partir de la solution mère retiendront une partie importante de la solution mère. Le cloisonnement de la liqueur mère dans le solide est probablement dû à plusieurs mécanismes:

- (1) Adsorption de surface: même après des procédés de séparation très efficaces, un mince film de liquide impur peut apparaître à la surface des cristaux solidifiés. En général, des cristaux de grandeurs respectables sont moins sujets à ce genre d'adsorption de surface.
- (2) Impuretés piégées: les irrégularités de croissance des cristaux vont résulter en des taux de croissance irréguliers, et à la formation de petites poches dans lesquelles une partie de la solution mère sera emprisonnée. Ce phénomène est particulièrement prononcé quand les cristaux ont la forme d'aiguilles ou de dendrites. La formation d'aiguilles et de dendrites est favorisée quand les cristaux sont générés à de hauts degrés de sursaturation (à des taux de refroidissement rapides). De plus, les cristaux qui sont en contact ont tendance à croître ensemble. Ceci résulte en un ensemble de cristaux de formes irrégulières, possédant plusieurs petites poches où la solution mère est prisonnière.
- (3) Attraction capillaire: les cristaux qui sont en contact forment des cavités et des canaux entre eux qui agissent

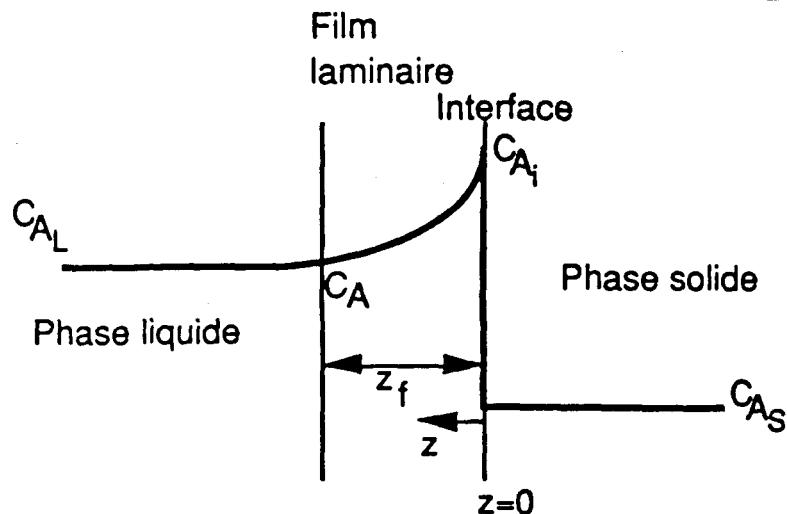
comme de petits capillaires.

1.3 Cristallisation fractionnée et transfert de masse

La cristallisation fractionnée fonctionne parce que la concentration de soluté dans le solide cristallisé, diffère de celle dans le liquide [2]. Cette différence reflète la nature de l'équilibre entre les phases liquide et solide, d'une solution durant la solidification. Toutefois, durant un procédé de solidification normale, la phase liquide peut ne pas avoir le temps nécessaire pour atteindre son état d'équilibre avec sa phase solide. Il semble que sous certaines conditions, l'équilibre est pratiquement atteint entre les régions solide et liquide très près de la frontière de solidification; cette frontière est appelée interface solide-liquide. Dans tout système liquide, en s'approchant de l'interface solide-liquide, la vitesse tend vers zéro à l'exception de l'écoulement normal à l'interface dû à la cristallisation. Donc, le transfert de masse se fait par diffusion dans la région près du cristal. Dans cette région, on suppose qu'il y a une couche laminaire à la frontière physique du système. L'épaisseur de cette couche ou de ce film, est une fonction de l'agitation appliquée dans la phase liquide; cette agitation assure aussi l'homogénéité de la concentration dans la phase liquide.

Le transfert de masse à travers le film est considéré uniquement diffusif. On suppose aussi que la diffusion dans la phase solide est négligeable, et qu'il n'y a aucune résistance au transfert de masse à travers l'interface lui-même [8, 9, 10]. Il est important de noter que l'équilibre entre la phase liquide et la phase solide, sera atteint seulement si la vitesse de cristallisation du solide tend vers zéro. Si la cristallisation est trop rapide, le solide qui se forme rejette les impuretés plus rapidement qu'elles ne peuvent diffuser dans la phase liquide, et il se produit un gradient de concentration. Donc, quand le solide s'accroît à un taux mesurable, l'équilibre à l'interface est perturbé [4, 11]. La figure 2 montre le gradient de concentration des impuretés à l'interface solide-liquide.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée



où:

C_A : Concentration de l'impureté

C_{A_L} : Concentration de l'impureté dans la phase liquide

C_{A_S} : Concentration de l'impureté dans la phase solide

C_{A_i} : Concentration de l'impureté à l'interface

z_f : Epaisseur du film diffusif

Figure 2: Gradient de concentration à l'interface

Le transfert de masse peut être analysé en supposant que l'interface est droite, que l'aire de transfert est uniforme, et en considérant que l'interface est à l'origine (figure 2). De plus, la diffusivité et la densité sont assumées indépendantes de la température dans l'élément d'incrément. La figure 3 représente l'élément étudié.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

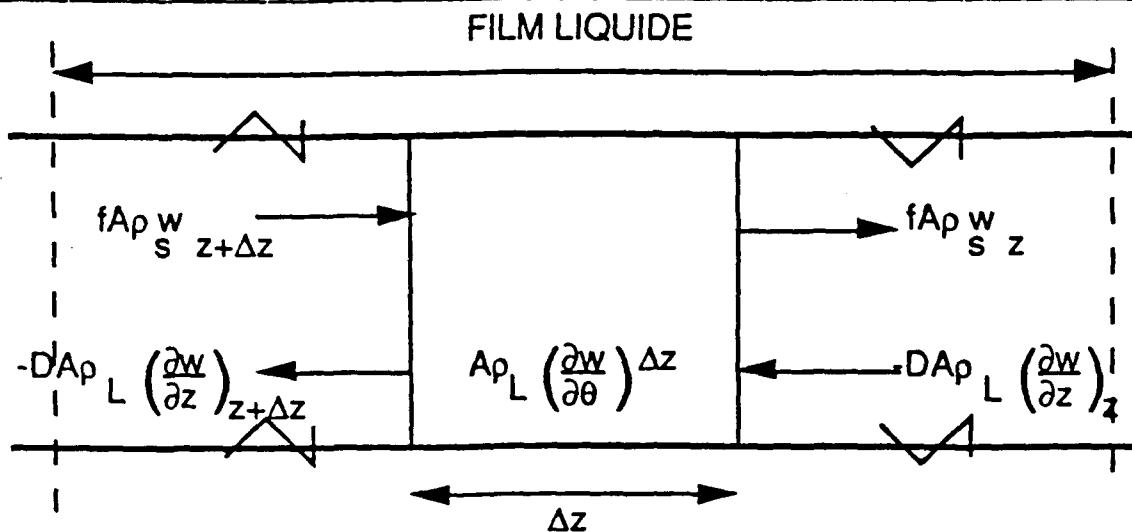


Figure 3 : Volume élémentaire

Un bilan de masse, pour un composant, autour de cet élément donne:

$$fA\rho_s w_s z + \Delta z - D A\rho_L \left(\frac{\partial w}{\partial z} \right)_z - fA\rho_s w_s z + D A\rho_L \left(\frac{\partial w}{\partial z} \right)_{z + \Delta z} = A\rho_L \left(\frac{\partial w}{\partial \theta} \right) \Delta z \quad (1)$$

où D est la diffusivité, A est l'aire, ρ_L est la densité du liquide, ρ_s est la densité du solide, f est la vitesse de l'écoulement massique (ou vitesse de solidification), w est la fraction massique du composant dans l'élément liquide, θ est le temps, Δz est la longueur de l'élément, et z est la distance à partir de l'interface de solidification.

Divisant l'équation (1) par Δz et prenant la limite lorsque Δz tend vers zéro, l'équation différentielle partielle suivante est obtenue:

$$D A\rho_L \left(\frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right) + f A\rho_s \left(\frac{\partial w}{\partial z} \right) = A\rho_L \left(\frac{\partial w}{\partial \theta} \right) \quad (2)$$

A l'état d'équilibre, l'équation devient:

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

$$\left(\frac{\partial w}{\partial z}\right)^2 + \frac{f\rho_s}{D\rho_L} \left(\frac{\partial w}{\partial z}\right) = 0 \quad (3)$$

La solution générale de l'équation (3) est:

$$w = a + b \exp\left(\frac{-f\rho_s z}{D\rho_L}\right) \quad (4)$$

où a et b sont des constantes d'intégration

Les conditions de frontières sont déterminées en considérant la figure 4.

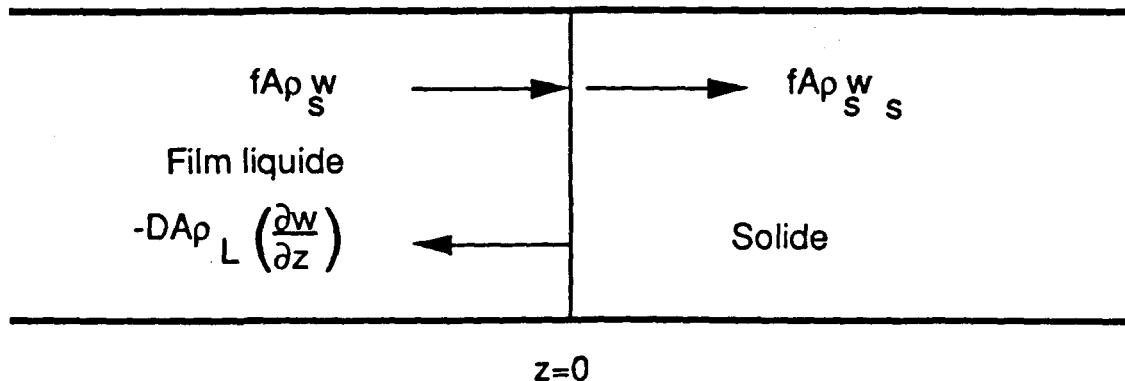


Figure 4: Interface de solidification

Le bilan de masse à l'interface de solidification $z = 0$ résulte en l'équation suivante:

$$-DAp_L \left(\frac{\partial w}{\partial z}\right) = fAp_s (w_s - w) \quad (5)$$

où w_s est la fraction massique du composant dans le solide.

$$\text{On a:} \quad \text{à } z = 0, \quad w = w_i \quad (6)$$

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

où w_i est la fraction massique du composant en équilibre avec w à l'interface.

De plus: à $z = z_f$, $w = w_L$ (7)

où w_L est la fraction massique du composant dans la phase liquide et z_f l'épaisseur de l'interface solide-liquide.

En appliquant ces conditions de frontière à l'équation (4), il en résulte:

$$\ln \frac{w_s - w_L}{w_s - w_i} = -f \frac{\rho_s z_f}{D \rho_L} \quad (8)$$

Donc l'équation (8) fournit une équation où l'on peut évaluer w_i à partir des résultats expérimentaux. En supposant que les densités solides et liquides sont égales à l'interface dans le cas d'une cristallisation d'un mélange en fusion, l'équation (8) devient:

$$\ln \frac{w_s - w_L}{w_s - w_i} = -f \frac{z_f}{D} \quad (9)$$

Si l'équation (9) est exprimée en terme de fractions molaires au lieu de fractions massiques, il en résulte l'équation suivante:

$$\ln \frac{C_{A_s} - C_{A_L}}{C_{A_s} - C_{A_i}} = -f \frac{z_f}{D} \quad (10)$$

Burton, Prim et Slichter [3] ont établi l'équation (10) en faisant l'approximation sur une surface de cristallisation infinie avec un liquide semi-infini. Ils définissent des coefficients de distribution qui caractérisent l'incorporation d'impuretés dans le cristal.

Un paramètre très utile pour discuter des gradients de concentration à l'interface, dans le liquide et dans le cristal sont les coefficients de distribution K [12,13]. K est défini par le rapport de la concentration

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

de l'impureté dans le solide cristallisé à la concentration dans la phase liquide. La valeur de K sera plus petite ou plus grande que l'unité, selon que l'impureté abaisse ou élève le point de fusion du liquide.

$$K = \frac{\text{Concentration dans le solide}}{\text{Concentration dans le liquide}}$$

La grandeur du coefficient K peut varier de 0,001 à des valeurs supérieures à 10, et sera dépendante des conditions de cristallisation tel que le degré d'agitation de la phase liquide. La valeur à l'équilibre du coefficient de distribution, désignée par K_0 , peut être calculée à partir du diagramme de phase. La valeur effective du coefficient K_e va dépendre des conditions de solidification et certaines propriétés du matériel.

Burton, Prim et Sclichter ont développé une équation qui permet de déduire la valeur de K_e à partir de la valeur de K_0 . En se référant à la figure 2, Burton et al. posent que la concentration de l'impureté dans la phase liquide est constante et égale à C_{AL} à une distance plus grande que z_f . Entre 0 et z_f , la vitesse de solidification est f . L'interface solide-liquide étant à $z = 0$, on pose que les valeurs seront positives dans la phase liquide à partir de cette interface. On peut réécrire l'équation (10) de la façon suivante:

$$\frac{C_{Ai} - C_{As}}{C_{AL} - C_{As}} = \exp \left(\frac{f z_f}{D} \right) \quad (11)$$

Dans le cas de la cristallisation fractionnée [14,15], on définit une relation additionnelle entre C_{As} et C_{Ai} pour l'état d'équilibre:

$$K_0 = \frac{C_{As}}{C_{Ai}} \quad (12)$$

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

Le coefficient de distribution, K , est décrit plus généralement comme dépendant de la vitesse de solidification f , et d'autres variables qui peuvent être l'agitation du fluide. La dépendance de K sur tous ces facteurs ne sera pas traitée plus en profondeur. Cependant, peu importe la dépendance de K , l'équation (11) amène l'expression suivante pour le coefficient de distribution effectif [14, 16].

$$K_e = \frac{K}{K + (1-K) \exp \left(\frac{-f z_f}{D} \right)} \quad (13)$$

Pour l'hypothèse importante où il y a l'équilibre à l'interface, et où l'équilibre est indépendant de la vitesse de solidification, l'expression devient:

$$K_e = \frac{K_0}{K_0 + (1 - K_0) \exp \left(\frac{z_f}{D_{A-B}} \right)} \quad (14)$$

Dans le cas des impuretés eutectiques, la valeur de K_e peut être comprise n'importe où entre K_0 et l'unité:

$$K_0 < K_e < 1$$

K_e tend vers K_0 quand la vitesse de solidification f est réduite, l'épaisseur du film de diffusion z_f est réduite et la diffusivité D est augmentée. La diffusivité est considérée constante et est indépendante du type d'impuretés étudiées, basée sur le fait que la température est constante. Donc en réduisant la vitesse de solidification f et l'épaisseur de l'interface z_f , la valeur de K_e se rapproche de K_0 , ce qui est le but dans un procédé de purification.

En résumé, pour augmenter l'efficacité de la purification, deux points principaux doivent être observés:

- (1) Décroître la vitesse de solidification à sa plus petite valeur possible.

- (2) Décroître l'épaisseur du film de diffusion à sa plus petite valeur possible.

Pour le cas de la purification de l'aluminium, quand un corps refroidissant est plongé dans l'aluminium liquide, l'aluminium ayant une plus grande pureté commence à cristalliser sur la surface de ce corps refroidissant. La solidification s'effectue pendant que des impuretés eutectiques sont rejetées dans la phase liquide au voisinage de l'interface solide-liquide pour former une couche de diffusion. La vitesse de solidification à ce moment est gouvernée par la quantité de chaleur retirée de l'aluminium en fusion par le corps refroidissant et par la quantité de chaleur apportée à l'aluminium en fusion de l'extérieur.

Au point de vue industriel, il est préférable d'obtenir le transfert de chaleur désiré à partir du liquide en fusion au corps refroidissant en contrôlant de façon avantageuse la surface et le refroidissement externe. De cette façon, on peut profiter d'un meilleur contrôle de la puissance de refroidissement tout en ayant une plus grande aire de cristallisation. De plus, quand le corps cristallisé ou la solution liquide est en rotation, la phase liquide et la phase solide bougent relativement l'une à l'autre. Le film diffusif formé près de l'interface solide-liquide est efficacement agité et permet le mélange des impuretés rejetées par la phase solide dans la phase liquide.

1.4 Travaux antérieurs

Il existe plusieurs méthodes proposées pour la production d'aluminium de haute pureté par cristallisation fractionnée [38]. La plupart de ces méthodes sont décrites dans des brevets d'invention, l'information y est souvent incomplète et plusieurs données techniques telles que les taux de solidification, les puretés de départ et finale sont manquantes. Les principales techniques proposées sont détaillées ci-dessous en décrivant brièvement leurs principes de fonctionnement et en incluant quelques remarques opérationnelles.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

Presque toutes les méthodes présentes sont basées sur le mouvement de la solution mère par rapport au solide cristallisé immobile; seulement une méthode (la technique Showa) utilise la rotation de l'aluminium solidifié dans un liquide immobile.

La première méthode décrite est celle d'Alcoa [17,18]; celle-ci est schématisée à la figure (5). Le principe de fonctionnement implique un refroidissement du dessus de la charge liquide et de la déposition des cristaux formés au bas du réacteur. Cette disposition des cristaux favorise le piégeage d'impuretés entre les cristaux accumulés au bas du réacteur. Une autre déficience du procédé est la large interface de diffusion avec le liquide.

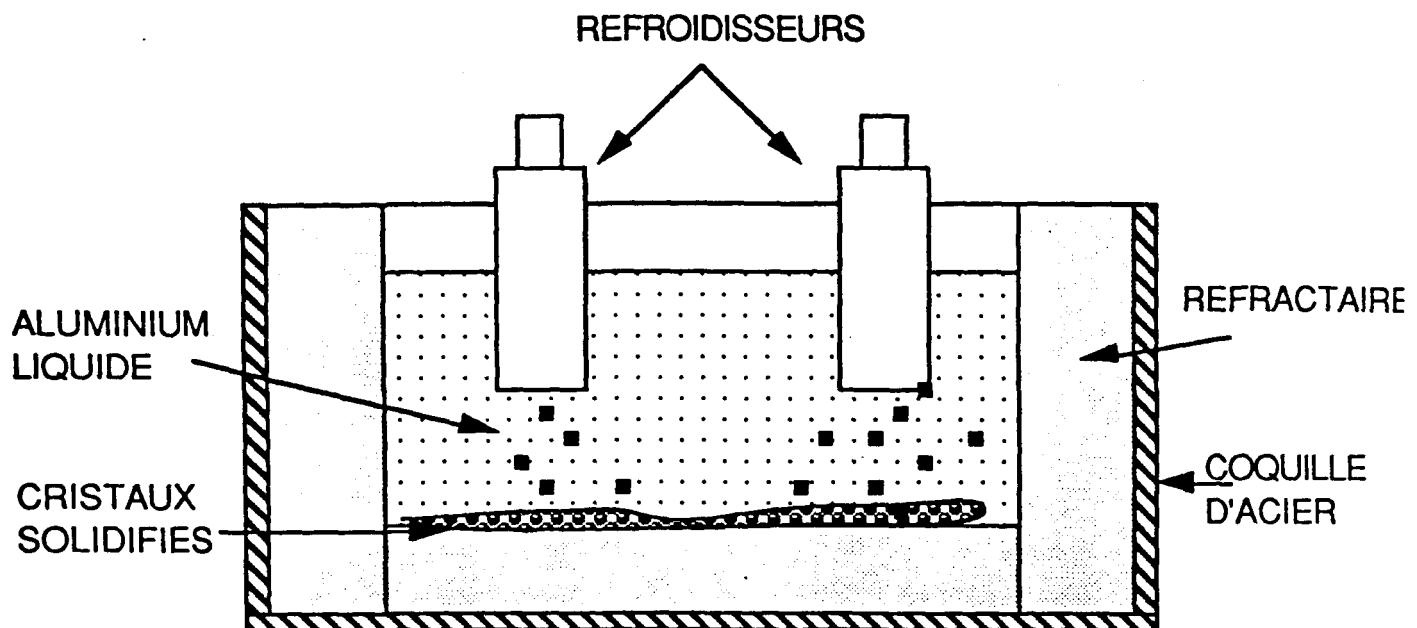


Figure 5: Méthode Alcoa (1)

La deuxième méthode décrite est aussi d'Alcoa [19]. Celle-ci est schématisée à la figure (6). Le principe de fonctionnement demeure le même, c'est-à-dire qu'un refroidissement appliqué au haut de la charge amène la formation de cristaux qui sédimentent au bas du réacteur. La différence avec le premier procédé Alcoa décrit précédemment est la surface de refroidissement au haut du réacteur beaucoup plus étendue. Ce procédé souffre aussi du piégeage

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

d'impuretés entre les cristaux accumulés et d'une large interface de diffusion avec le liquide.

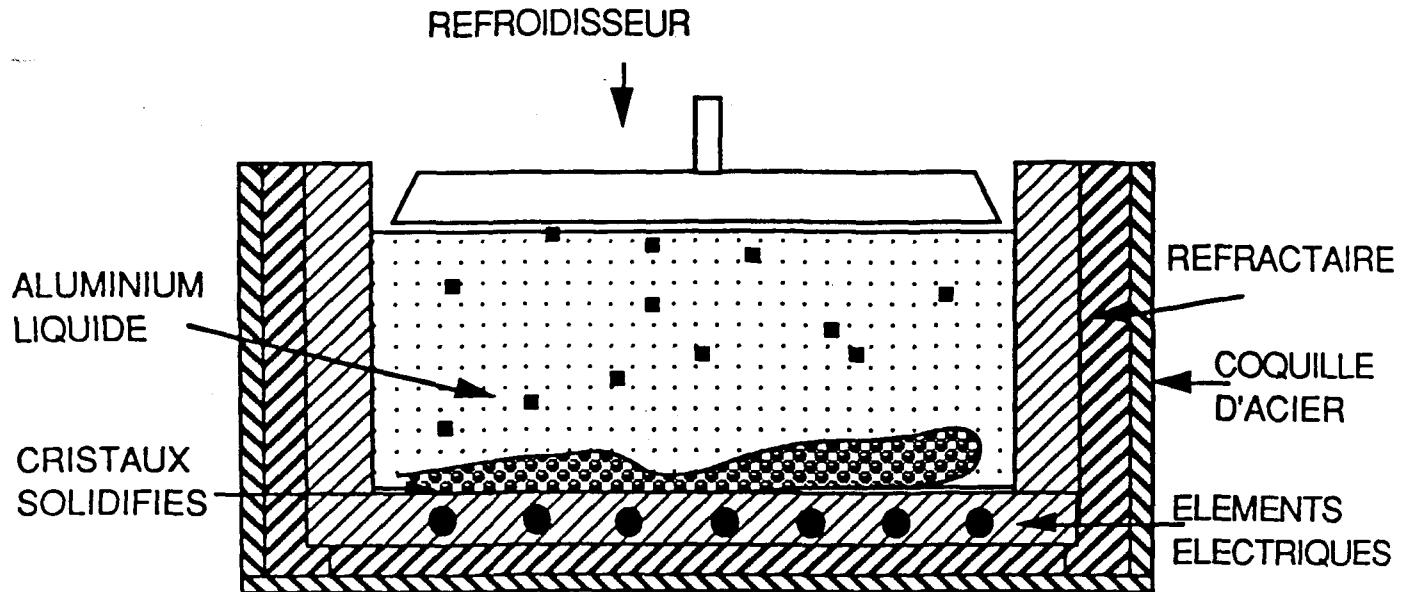


Figure 6: Méthode Alcoa (2)

La troisième technique est celle de Reynolds [20, 21], le procédé comprend une cristallisation fractionnée continue à partir d'une alimentation en aluminium liquide soumis à une agitation vigoureuse à l'interface solide-liquide (figure 7). Ce procédé ressemble à celui discuté dans ce mémoire mais il implique des investissements élevés et l'entretien est coûteux.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

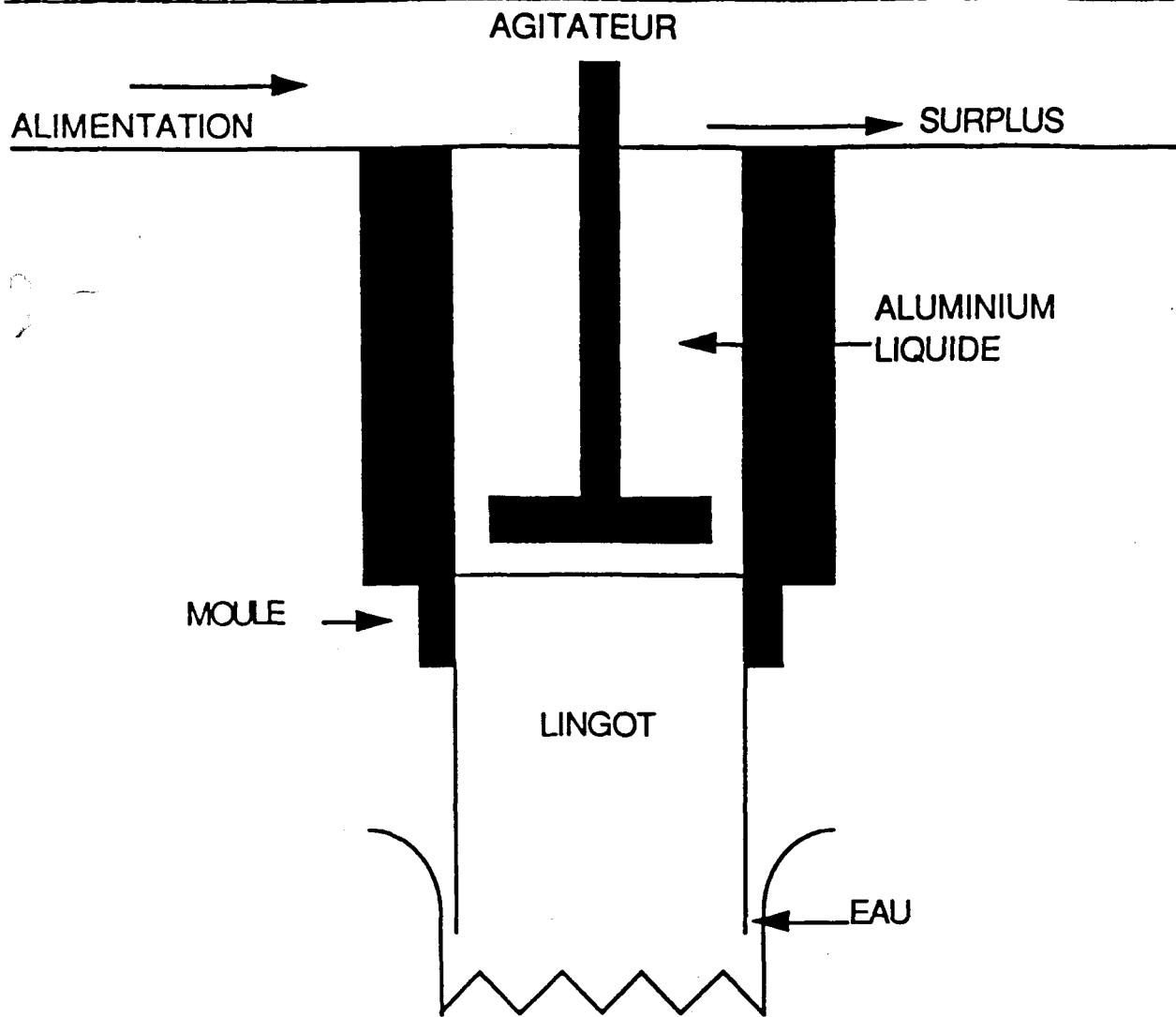


Figure 7: Méthode Reynolds

Le procédé développé par Péchiney [22] emploie un principe où l'aluminium est maintenu en phase liquide dans un creuset et le refroidissement se fait par des tubes de graphite dans lesquels circule le fluide refroidissant. Une plaque se déplace verticalement pour détacher les cristaux d'aluminium formés telle qu'illustrée à la figure (8). Plusieurs des composantes de ce système sont fragiles. La méthode est à très petite échelle (5 à 10 kg d'aluminium par essai). Ce n'est pas une méthode appropriée pour une production à grande échelle et le temps de traitement est relativement long pour une faible récupération d'aluminium purifié; le procédé est de 8 heures pour une production de 2 kg d'aluminium purifié.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

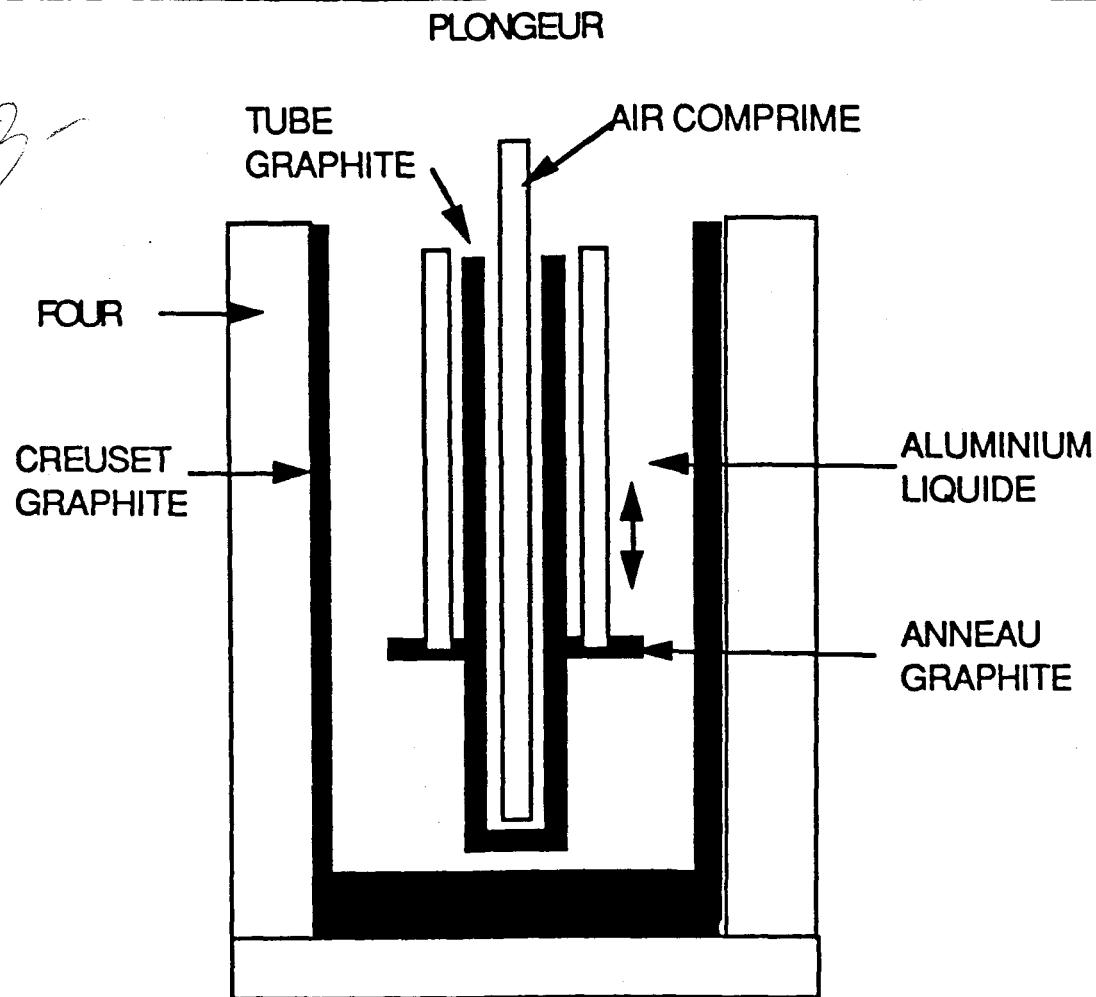


Figure 8: Méthode Péchiney

La compagnie Mitsubishi a breveté trois procédés différents pour de grandes unités de production. Les trois procédés peuvent être schématisés à la figure (9). Ils impliquent une production dans une fournaise rectangulaire et le refroidissement se fait au bas de celle-ci. L'aluminium liquide est contenu dans un réacteur possédant un plancher plat horizontal. Le métal est cristallisé par l'extraction de la chaleur par le plancher refroidissant pendant que l'aluminium liquide est agité.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

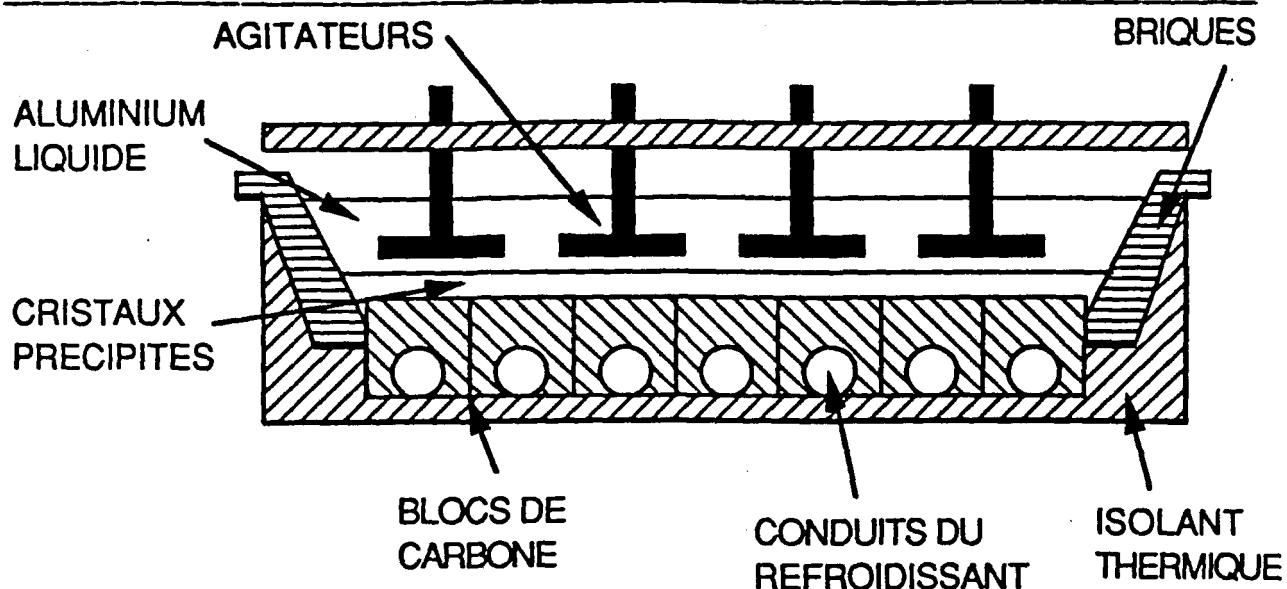


Figure 9: Méthode Mitsubishi

Le premier procédé breveté par Mitsubishi [23] présente un lent taux de solidification et l'enlèvement du système d'agitation n'est pas contrôlé adéquatement. De plus, le contrôle de température est difficile.

Le second procédé breveté [24] amène des problèmes d'expansion thermique avec le matériau utilisé. Des fissures dans les tuyaux de circulation du fluide refroidissant placés dans le plancher de la fournaise peuvent aussi amener l'infiltration de métal et des problèmes sérieux d'entretien.

Le dernier procédé breveté par Mitsubishi [25] présente une solution pour prévenir la formation de fissures dans le plancher de la fournaise. La solution consiste à toujours garder sur le plancher refroidissant une mince couche d'aluminium. Cependant, d'autres problèmes d'opération sont générés.

La compagnie Nippon Light Metal [26] utilise la même approche que les techniques développées par Péchiney et Alcoa. L'aluminium est fondu sous une atmosphère d'argon (pour prévenir l'oxydation) dans un

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

creuset de graphite. Le creuset est placé dans une coquille d'acier. Un pilon en graphite qui se déplace périodiquement de haut en bas frotte les cristaux qui se sont solidifiés sur la surface intérieure du creuset et compacte ceux-ci au fond du creuset (figure 10). L'efficacité de purification du métal par cette technique ne peut être discutée ici en raison de l'information technique insuffisante. Les taux de solidification apparaissent plus rapides que ceux obtenus par la technique de Péchiney. Néanmoins, les désavantages qui sont indiqués pour la technique de Péchiney s'appliquent aussi pour ce procédé, principalement les composantes fragiles et une faible échelle de production.

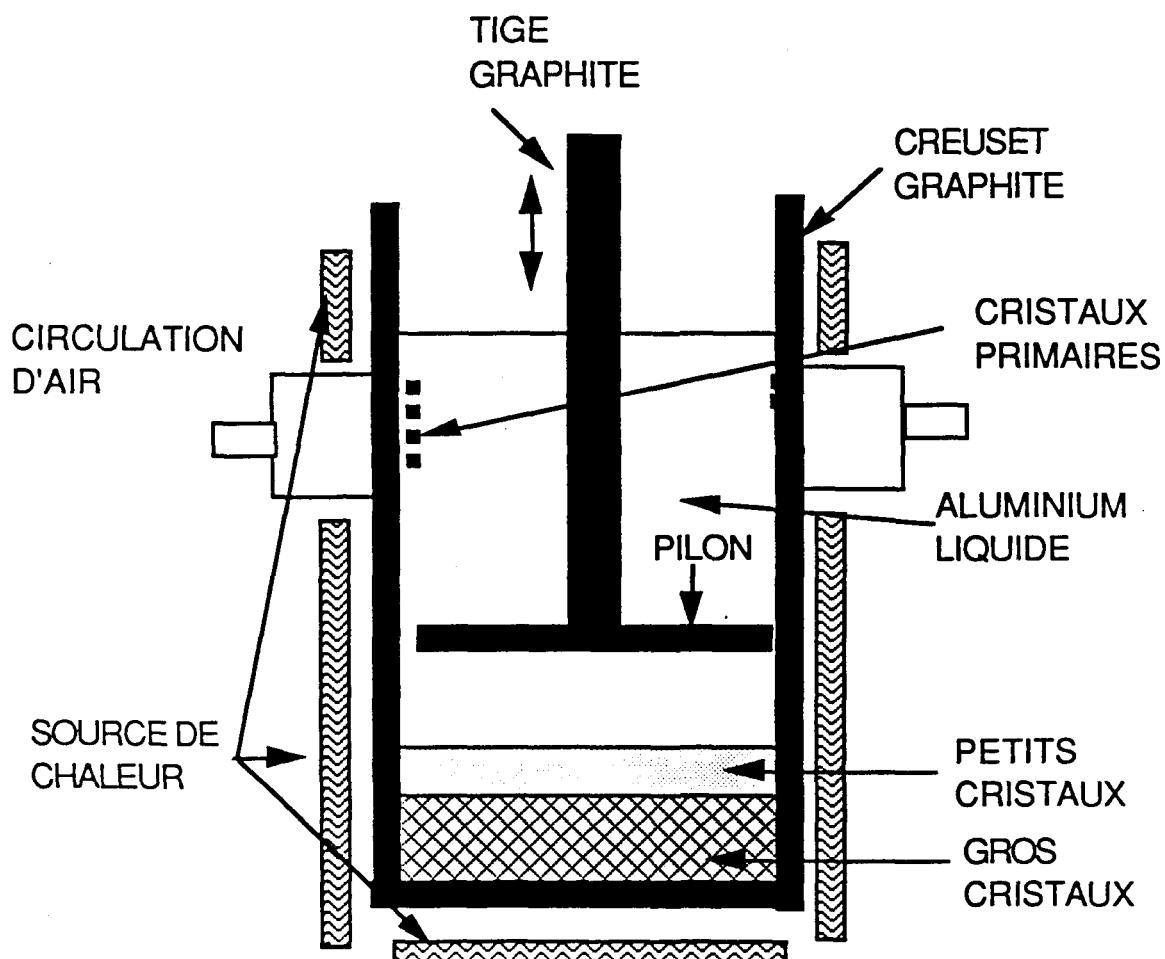


Figure 10: Méthode Nippon Light Metal

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

La compagnie Showa Aluminium est la compagnie la plus active pour le marché de l'aluminium de haute pureté aujourd'hui. La première des méthodes de Showa [27] est identique à celle de Reynolds discutée précédemment (figure 11).

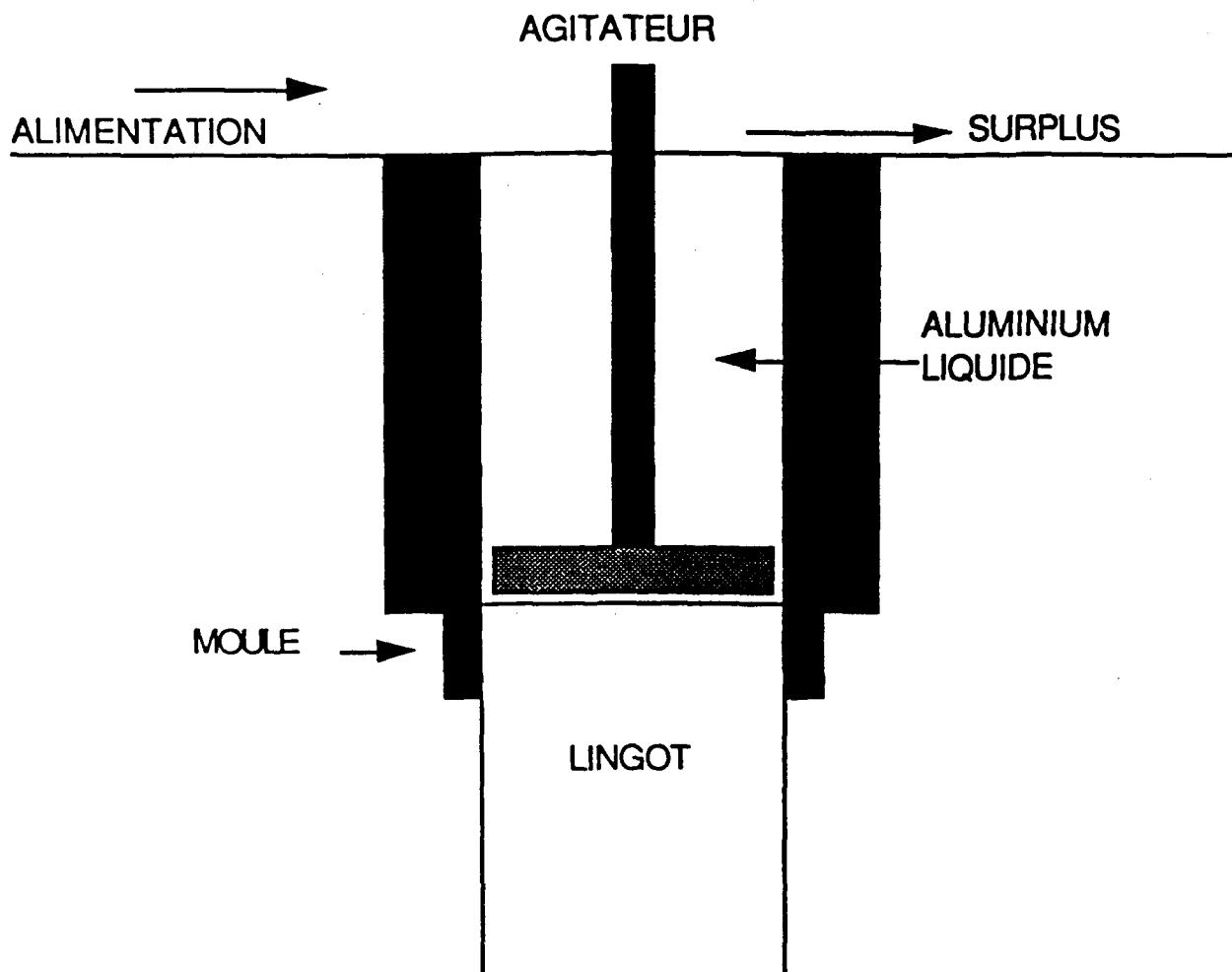


Figure 11: Méthode Showa Aluminum (1)

Dans la seconde méthode développée par Showa Aluminium [28], une unité refroidissante est immergée dans l'aluminium en fusion et un mouvement rotatif dans les deux directions est appliqué alternativement afin de refroidir l'aluminium en fusion jusqu'à ce que l'aluminium de haute pureté soit solidifié sur la surface de l'unité (figure 12). La méthode est utilisée à petite échelle.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

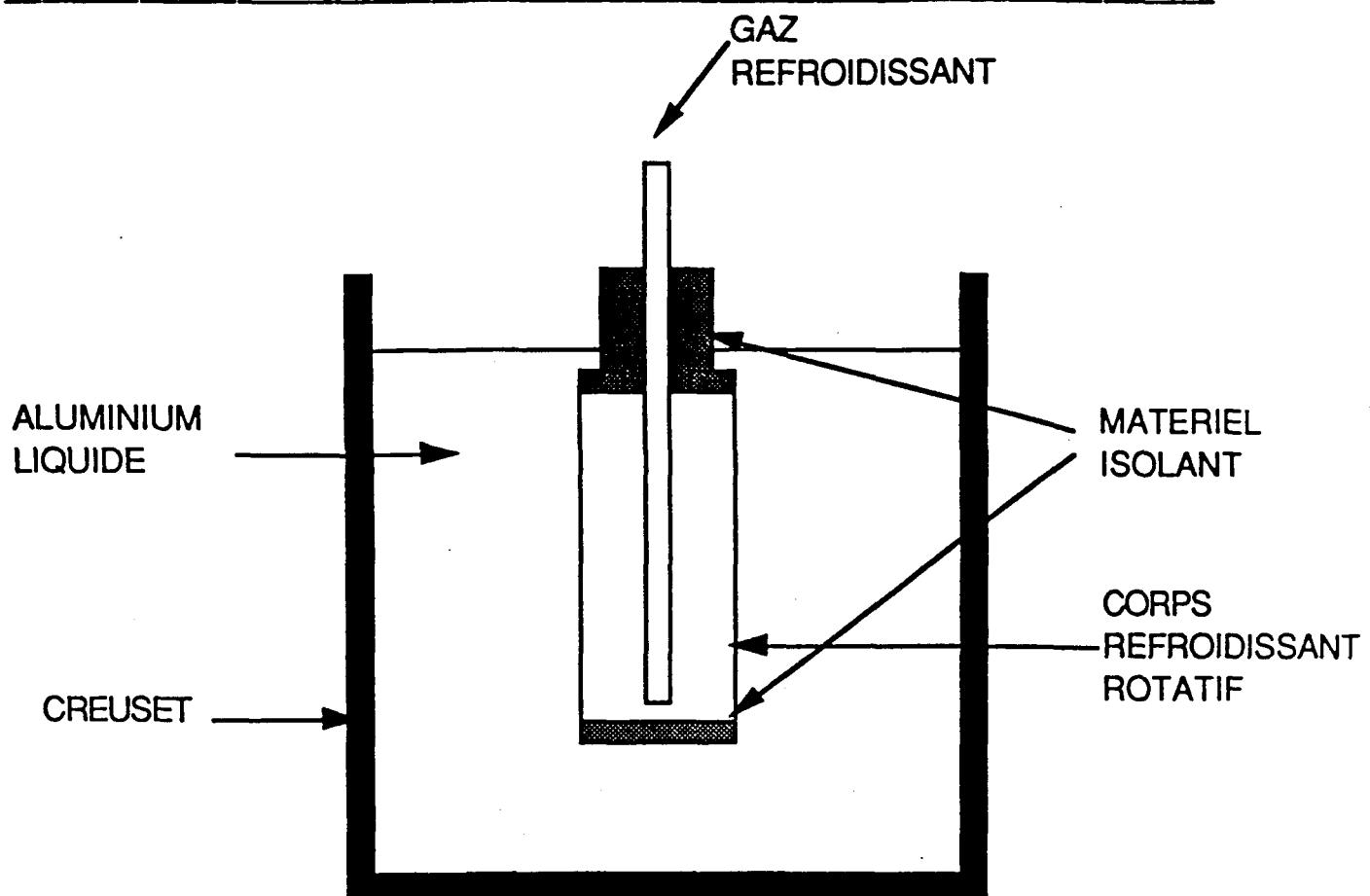


Figure 12: Méthode Showa (2)

Le dernier procédé développé par Showa utilise le bore afin d'enlever les impuretés péritectiques telles que le titane et le vanadium de la solution mère. Le mélange en fusion est agité durant 5 minutes suivant l'addition du bore. Une unité refroidissante est ensuite immergée dans le mélange liquide et est mise en rotation pendant qu'un fluide refroidissant est introduit pour cristalliser l'aluminium de haute pureté sur la surface de l'unité (figure 13). Cette solidification sur l'unité en rotation limite l'aire de cristallisation.

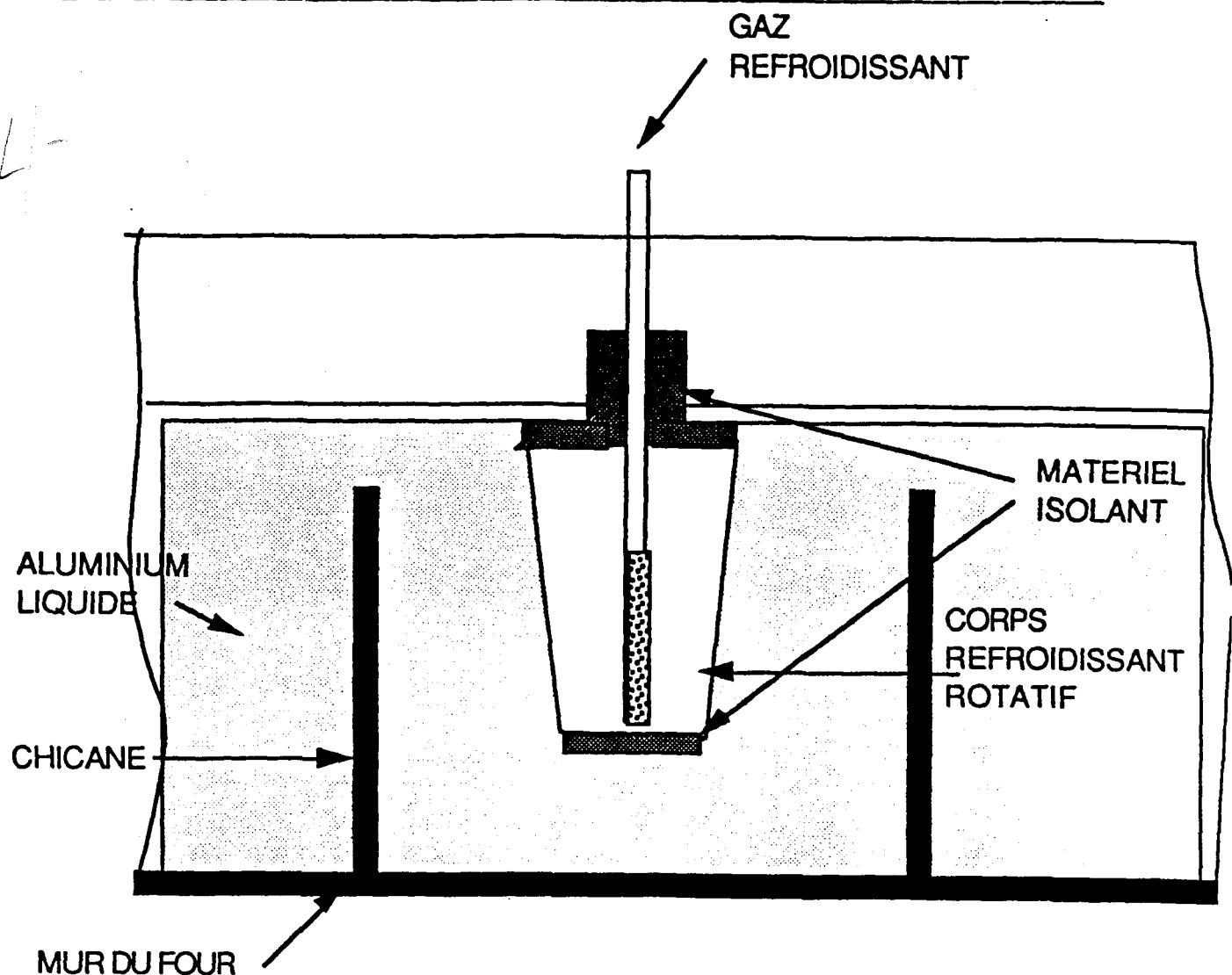


Figure 13: Méthode Showa (3)

La méthode décrite dans cette étude implique la solidification de l'aluminium purifié sur les parois d'un réacteur entouré d'une coquille de refroidissement. Le liquide est mélangé par un agitateur de graphite placé au centre du réacteur. Cette méthode a les avantages de permettre de hautes vitesses d'agitation pour une meilleure efficacité de purification et permet aussi une aire de solidification beaucoup plus importante ce qui améliore l'efficacité de production du réacteur. Le réacteur expérimental est présenté plus en détail au chapitre suivant.

Chapitre 1: La cristallisation fractionnée

L'objectif de ce travail est de concevoir, construire et d'opérer un réacteur expérimental qui permettra de faire la cristallisation fractionnée d'un mélange d'aluminium liquide de pureté commerciale. Les résultats expérimentaux pourront être utilisés pour la conception et la construction d'une unité commerciale. Un modèle mathématique simulant les transferts de chaleur et de masse à l'intérieur du prototype expérimental permettra d'augmenter la compréhension des phénomènes de cristallisations de l'aluminium et sera utilisé également pour la conception d'une unité commerciale.

2

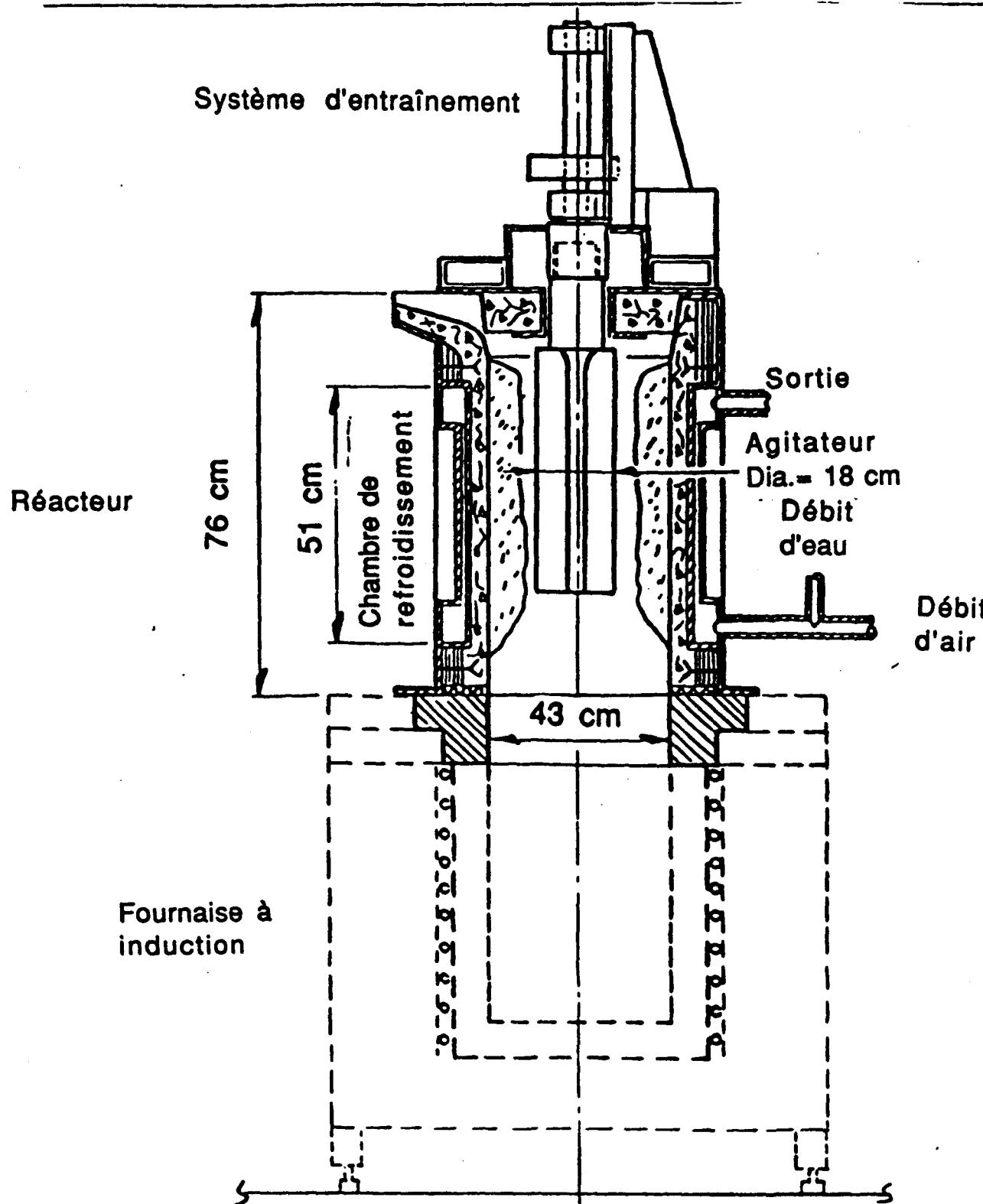
DESCRIPTION DU REACTEUR EXPERIMENTAL ET OPERATIONS

2.1 Description du réacteur expérimental

La figure 14 montre une vue générale du montage expérimental. Le réacteur a une forme cylindrique et est entouré d'une chambre de refroidissement. L'unité consiste en trois parties majeures:

- (1) une source de chaleur fournie par un four électromagnétique (partie du bas),
- (2) une chambre de cristallisation i.e. le réacteur (partie du haut)
- (3) une unité d'agitation consistant en un agitateur en graphite, un moteur alimenté à l'air, un système d'entraînement et un couvercle.

Le réacteur est posé sur la fournaise électromagnétique. Le principe premier de l'unité de cristallisation est de régulariser la vitesse de solidification de l'aluminium liquide sur les murs du réacteur pour produire un aluminium de haute pureté. La chambre de cristallisation d'une hauteur de 76 cm a un diamètre intérieur de 43 cm. Le four électromagnétique est la source de chaleur du montage; la distribution homogène de la chaleur est assurée par le brassage électromagnétique de la fournaise au bas du montage et par le brassage mécanique vigoureux dans la partie du haut.



Ciment réfractaire (carbure du silicium)



Couche isolante



Acier



Aluminium solidifié

Figure 14: Montage expérimental

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

Les différentes parties du réacteur sont décrites en détails plus bas, elles incluent le réacteur (les murs du réacteur, la chambre de refroidissement, le circuit du fluide refroidissant), le système d'agitation et la fournaise électromagnétique.

Murs du réacteur

La surface intérieure des murs est faite de ciment à base de carbure de silicium et est fabriquée de façon à être la plus lisse et uniforme possible dans le but de créer une surface de cristallisation homogène qui empêchera une trop grande adhérence de l'aluminium solidifié et ainsi facilitera l'enlèvement de celui-ci à la toute fin du procédé.

Le ciment réfractaire à base de carbure de silicium a été choisi en partie pour son bon comportement en présence de l'aluminium liquide et aussi pour sa bonne conductivité thermique qui facilite le refroidissement. Pour bien retenir le ciment réfractaire dans la coquille d'acier du réacteur, une mince couche de ciment (3 mm) est ajoutée. Cette couche est isolante mais considérant son épaisseur elle n'affecte que très peu le transfert de chaleur global entre le fluide refroidissant et l'aluminium liquide.

Chambre de refroidissement

La chambre de refroidissement consiste en une coquille d'acier qui entoure les murs du réacteur. La coquille d'acier est faite en deux parties en forme de demi-cercle à doubles parois qui sont attachées ensemble par des boulons. Les demi-cercles et les boulons sont parfaitement isolés un par rapport à l'autre afin de ne pas provoquer l'échauffement de la coquille d'acier par des courants induits générés par la fournaise électromagnétique. L'espace intérieur des deux demi-cercles sert de chambre de circulation pour le fluide refroidissant. L'épaisseur de cet espace est de 1 cm.

La chambre de refroidissement possède deux entrées et deux sorties pour le fluide refroidissant i.e. une entrée et une sortie pour chaque

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

demi-cercle. Les entrées sont situées dans le bas de la chambre et les sorties dans le haut de celle-ci. Sur chaque entrée et sur chaque sortie de la chambre, un thermocouple est placé dans le but d'enregistrer les températures du fluide refroidissant durant le procédé.

Circuit du fluide refroidissant

Le fluide refroidissant est amené à la chambre par deux boyaux de caoutchouc d'un diamètre intérieur de 1 cm (figure 15). Le fluide refroidissant consiste en un mélange d'air et d'eau. L'air est injecté à travers le circuit à une pression de 480 KPa (70 PSI). Le débit peut varier entre 0 et 7080 litres par minute (0 à 250 SCFM). L'eau est injectée au circuit avec le débit d'air. L'installation permet une variation du débit de l'eau entre 0 et 1 kg par minute.

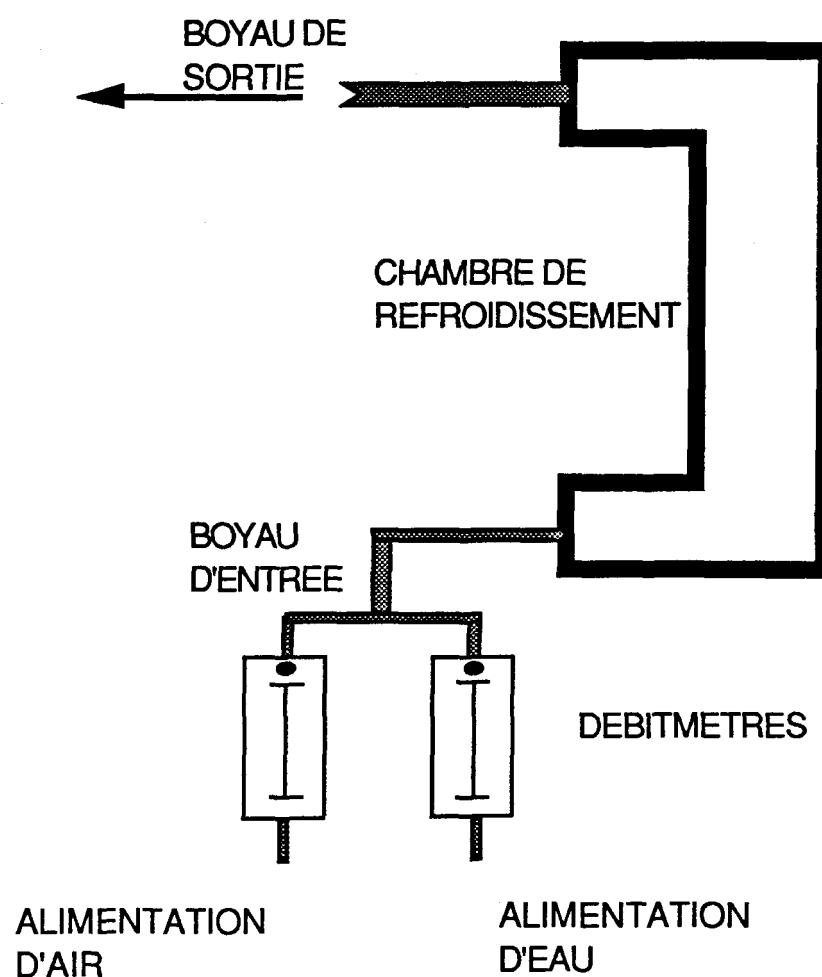


Figure 15: Circuit du fluide refroidissant

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

Le fluide refroidissant est injecté de chaque côté de la chambre par le bas de celle-ci. L'eau, à température de la pièce, est injectée par un T dans le débit d'air. Ceci provoque la génération de très fines gouttelettes d'eau ce qui facilite le transfert de chaleur à l'intérieur de la chambre de refroidissement. Des tests préliminaires ont permis de déterminer qu'au débit maximum d'air permis par le système (7080 litres par minute) sans mélange d'eau, la solidification de l'aluminium à l'intérieur du réacteur n'est pas significative. Il a été déterminé également que l'injection d'une quantité d'eau supérieure à 1.0 kg par minute provoque dans le bas de la chambre de refroidissement une accumulation d'eau liquide. Cette accumulation n'est pas désirable et peut engendrer des problèmes sérieux d'opération du réacteur. De plus pour éviter l'accumulation d'eau dans le bas de la chambre, de l'air seul est injecté dans le circuit au début et à la toute fin du procédé.

Fournaise électromagnétique

La source de chaleur utilisée pour la refonte de l'aluminium solide au début du procédé et pour le maintien de la charge liquide à température constante, est celle fournie par la fournaise électromagnétique placée au bas du montage expérimental. La fournaise électromagnétique a été choisie pour sa capacité de refonte rapide et aussi pour le fait qu'elle permet d'obtenir une circulation constante de l'aluminium dans le réacteur. Ceci permet une homogénéisation de la concentration des éléments présents dans la charge liquide. De plus, cette circulation constante permet de garder une température constante et homogène de l'aluminium liquide, ce qui facilite le contrôle de la température durant les opérations de cristallisation.

La fournaise possède une puissance de 125 kilowatts et fonctionne à une fréquence de 1000 Hz. Son système de refroidissement utilise soit du glycol seul, soit du glycol et de l'eau. La fournaise est munie d'un système de contrôle de température proportionnel rattaché à un thermocouple placé dans le métal entre le réacteur et la fournaise électromagnétique. Après la refonte de la charge et à l'équilibre, la température peut être maintenue au niveau désiré avec une précision d'environ 1 degré Celcius.

Système d'agitation

L'agitation de l'aluminium liquide durant la cristallisation est considérée comme un des paramètres les plus critiques. Le système d'agitation est schématisé à la figure 16. La forme de l'agitateur est telle qu'elle ne favorise pas la formation d'un vortex et minimise les éclaboussures à la surface du métal. Cependant, il a été observé durant l'expérimentation que le métal solidifié au haut du réacteur présente à l'occasion une forme irrégulière qui peut provoquer des éclaboussures. Ces éclaboussures de métal, qui se solidifient sur les parois du réacteur ou sous le couvercle du système d'agitation, peuvent entraîner à la limite l'arrêt de l'agitateur.

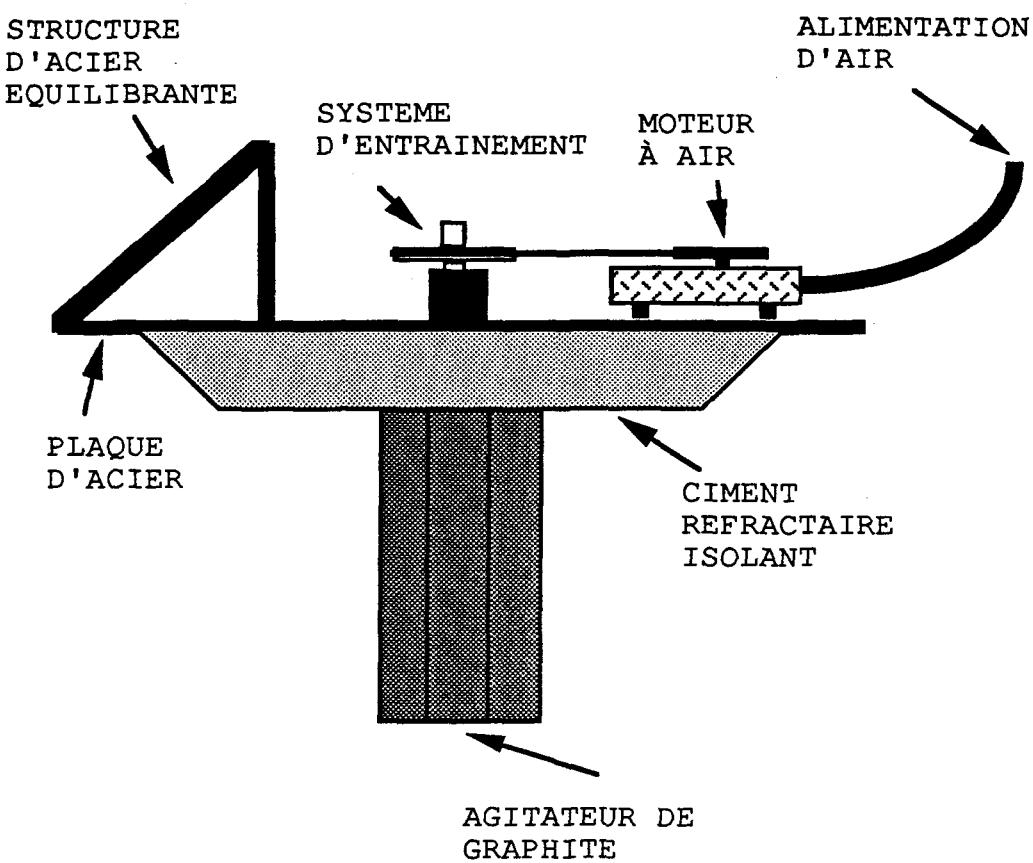


Figure 16: Système d'agitation

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

L'agitateur est raccordé à un système d'entraînement utilisant un moteur à air. Le moteur est alimenté par de l'air à une pression de 480 KPa (70 PSI) et permet de varier la vitesse de l'agitateur entre 0 et 250 RPM. Un régulateur muni d'une valve de précision permet de contrôler la vitesse de rotation de l'agitateur. L'agitateur est choisi en graphite parce que ce matériau possède un bon comportement sous les conditions de température choisies et parce qu'il ne se dissout pas en présence d'aluminium liquide et qu'il ne contamine donc pas le mélange.

2.2 Appareils de mesure

Vitesse de l'agitateur

La vitesse de rotation de l'agitateur est mesurée par un compte-tours de marque Matheson fonctionnant selon un principe optique. Cet instrument est en fonctionnement continu durant la durée complète de l'agitation. On évalue que la précision de l'appareil est d'environ 5 RPM.

Températures

Pour la mesure des températures durant les essais, des thermocouples de type K ont été utilisés à différents endroits sur le montage (figure 17). Les températures ont été enregistrées sur un appareil d'acquisition de données de marque Fluke. Elles ont été enregistrées à un intervalle régulier de 30 secondes durant le procédé. La figure 17 indique les endroits où les thermocouples ont été positionnés autour du montage. Un total de 10 températures ont été enregistrées à chaque intervalle de temps:

- (1) Température du mélange refroidissant air-eau à l'entrée (no.1) de la chambre de refroidissement.
- (2) Température du mélange refroidissant air-eau à l'entrée (no.2) de la chambre de refroidissement.

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

-
- (3) Température du mélange refroidissant air-eau à la sortie (no.1) de la chambre de refroidissement.
 - (4) Température du mélange refroidissant air-eau à la sortie (no.2) de la chambre de refroidissement.
 - (5) Température du mélange refroidissant air-eau au centre de la chambre de refroidissement.
 - (6) Température de la paroi d'acier (paroi interne de la chambre de refroidissement) dans le bas du réacteur.
 - (7) Température de la paroi d'acier (paroi interne de la chambre de refroidissement) au centre du réacteur.
 - (8) Température de la paroi d'acier (paroi interne de la chambre de refroidissement) au haut du réacteur.
 - (9) Température de l'aluminium liquide entre le réacteur et la fournaise électromagnétique.
 - (10) Température de l'aluminium prise à l'aide d'un thermocouple non-fixé au dessus de la charge entre le couvercle et le réacteur pour fin de vérification.

La précision des thermocouples est de l'ordre de 1 degré Celcius. L'étalonnage de l'enregistreur de températures est fait avant chaque essai par un ajustement au millivolt de l'appareil en utilisant deux points de référence: 20 degrés Celcius et 660 degrés Celcius (point de fusion de l'aluminium).

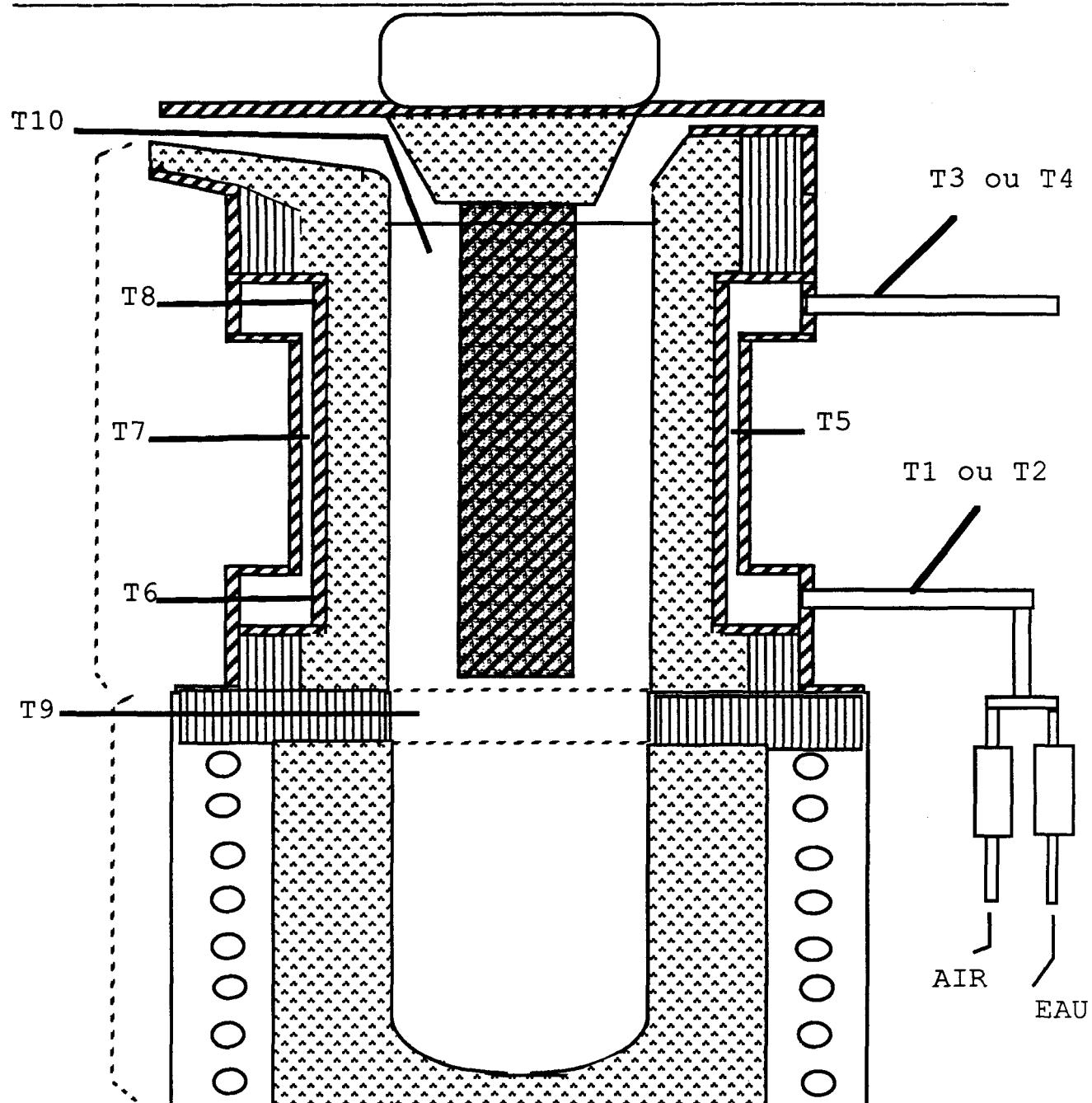


Figure 17: position des thermocouples autour du montage

Débits du mélange refroidissant

Le débit d'air est mesuré par un débitmètre de marque Cole Palmer. Le débitmètre est calibré entre 0 et 7080 litres par minute (0 et 250

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

SCFM). Il est muni d'une valve de précision pour un ajustement du débit d'air désiré. Un régulateur est placé devant le débitmètre pour régulariser la pression d'entrée de l'air à 480 KPa (70 PSI). Le débit d'eau est mesuré à l'aide d'un débitmètre de masse de marque Matheson calibré entre 0 et 2 kg par minute.

2.3 Procédure expérimentale

La procédure expérimentale se divise en trois parties distinctes:

- (1) Chargement et fonte de la charge initiale
- (2) Solidification (ou cristallisation) du métal purifié
- (3) Coupe et analyse du métal purifié

2.3-1 Chargement et fonte de la charge initiale

Le métal de départ est chargé dans la fournaise électromagnétique en lingots d'aluminium de pureté commerciale d'environ 25 kg chacun. Quand une première partie de la charge (200 kg) est fondue, le métal est graduellement ajouté, un lingot à la fois, jusqu'à ce que le niveau atteigne la hauteur correspondante au haut de la chambre de refroidissement dans la partie du réacteur. Le niveau de métal désiré est tel que l'espace est gardé minimum entre le couvercle du montage et la surface du métal de façon à restreindre le contact avec l'air ambiant dans le réacteur. Un excès d'air au-dessus de la surface peut favoriser l'oxydation de la charge liquide et réduire la propreté du métal solidifié.

Après refonte complète de la charge (environ 400 kg), celle-ci est amenée à la température d'opération désirée. Durant la refonte de l'aluminium, il y a toujours une couche d'oxyde (écume) produite à la surface; cette couche est soigneusement enlevée avant le début de l'essai. L'agitateur de graphite est ensuite suspendu à quelques centimètres au dessus de la surface de métal de façon à le préchauffer et éliminer l'humidité qui pourrait y être présente. Dans

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

un même temps, deux disques spectrographiques sont pris et serviront à l'analyse chimique pour connaître la composition de départ de la charge liquide. Quand l'agitateur est bien préchauffé, il est introduit dans le métal. Lorsque le couvercle est bien en place, l'agitateur est mis en marche à faible vitesse pour faciliter l'uniformité de la température du métal liquide dans le réacteur.

2.3-2 Solidification du métal purifié

Ayant attendu assez longtemps pour que la température du métal soit à l'équilibre (environ 20 minutes), l'agitateur est amené à la vitesse d'opération pré-déterminée. Par mesure de sécurité, on fait circuler un faible débit d'air dans la chambre de refroidissement. Les débits d'air et d'eau sont ensuite amenés aux conditions d'opération désirées. Simultanément, les données suivantes sont enregistrées:

- (1) Vitesse de l'agitateur
- (2) Température du métal liquide
- (3) Débit d'eau
- (4) Débit d'air
- (5) Températures (énumérées plus haut à la section 2.2)

Ces données sont enregistrées à toutes les 30 secondes du début à la fin de l'essai. Une attention particulière est portée aux températures à l'intérieur et aux sorties de la chambre de refroidissement. Une température du fluide refroidissant sous le point d'ébullition de l'eau (100 degré Celcius) peut indiquer la présence et l'accumulation possible d'eau à l'intérieur de la chambre de refroidissement. Les débits d'air et d'eau sont fréquemment vérifiés et ajustés selon les fluctuations des pressions dans les alimentations. De plus, la vitesse de rotation de l'agitateur tend à diminuer à la fin de l'essai, ceci s'explique par l'accumulation graduelle d'aluminium solidifié dans le haut de l'agitateur au niveau de la surface du métal; des corrections fréquentes de l'alimentation en air au moteur de l'agitateur doivent être faites pour ramener la vitesse de rotation au niveau désiré.

Typiquement, un essai dure 30 minutes ou jusqu'à ce que l'anneau de solide cristallisé sur les murs du réacteur empêche la rotation de l'agitateur. Il n'est pas possible durant l'essai de connaître la

Chapitre 2: Description du réacteur expérimental et opérations

quantité ou l'épaisseur de la croissance du solide purifié sur les murs du réacteur. Quand l'essai est terminé, la circulation de l'eau à l'intérieur de la chambre de refroidissement est arrêtée et seul l'air continue à circuler. Les risques d'accumulation d'eau dans la chambre de refroidissement sont ainsi écartés. La pression d'air sur le moteur est mise à zéro et le couvercle est ensuite retiré avec précaution. Deux disques spectrographiques pour l'analyse de la composition chimique du métal liquide résiduel sont prélevés.

Un bac destiné à recevoir le métal liquide résiduel est préchauffé avec un brûleur à gaz pour éliminer l'humidité sur les parois intérieures. Le métal liquide à l'intérieur du montage est alors versé dans le bac de métal en basculant l'ensemble fournaise électromagnétique - réacteur. Cette opération a le désavantage de fondre une partie du métal solidifié dans l'axe du bec de coulée. Il en sera tenu compte lors de la prise des échantillons solides pour les analyses. Quand le réacteur et le four électromagnétique sont vidés de leur charge liquide, le montage est ramené à sa position horizontale originale. La puissance du four est mise à zéro de manière à laisser refroidir la charge solide.

2.3-3 Coupe et analyse du métal purifié

Quand la charge est suffisamment froide et que la contraction thermique du métal a décollé l'anneau de métal purifié des murs du réacteur, celui-ci est retiré par le haut du réacteur. L'anneau est ensuite coupé selon l'axe vertical et selon le rayon du réacteur à différentes hauteurs (bas, centre et haut du réacteur). Les échantillons coupés sont identifiés et soumis aux analyses métallographiques et spectrographiques.

Quand ces opérations sont terminées, le four et le réacteur sont soigneusement nettoyés et une nouvelle charge est ajoutée dans le four pour l'essai suivant.

3

Méthodes numériques de calcul

3.1 Introduction

La modélisation des systèmes de solidification représente un domaine de recherche important en transfert de chaleur et de masse. Une bonne façon de représenter un système de solidification est illustré à la figure 18.

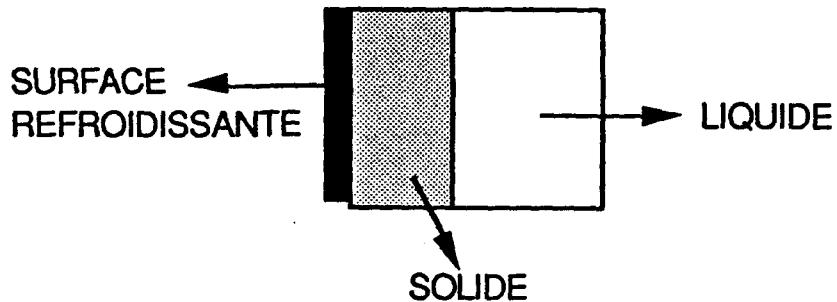


Figure 18: Système de solidification

Au temps $t=0$, la surface refroidissante est amenée à basse température $T < T_L$. Subséquemment, trois régions vont exister dans le système: une région uniquement solide, une région solide-liquide (interface) et une région uniquement liquide. Pour les systèmes métalliques, l'interface a généralement une structure dendritique cristalline.

A mesure que la solidification se poursuit, la phase soluté (impuretés) est rejetée des dendrites qui se solidifient dans la région de l'interface. A échelle microscopique, ce soluté est redistribué par processus de transport diffusif (micro-ségrégation). Des courants

générés par l'agitation mécanique du système redistribuent ce soluté à travers la phase liquide et déterminent la qualité finale du produit solidifié (macro-ségrégation).

3.2 Modélisation du système de solidification

Le système de solidification qui nous intéresse est essentiellement un système solide-liquide à deux phases. Conséquemment, les équations de conservation doivent être développées en tenant compte de chacune des phases. L'analyse est faite sur un modèle mathématique formulé à partir des équations de transfert de chaleur et de masse pour la solidification et l'écoulement d'un mélange d'air et d'eau dans la zone de refroidissement autour du moule [39]. Les équations sont solutionnées par une méthode explicite en différences finies [29, 30, 31 et 32]. Le modèle mathématique doit répondre à certaines exigences:

- 1- La vitesse moyenne à la frontière de solidification doit être autour de 5 mm/min; cette vitesse a été observée pour le procédé expérimental actuel. Ceci correspond à un taux de solidification choisi pour obtenir une cible de production désirée pour un futur réacteur commercial.
- 2- Le déplacement de la frontière de solidification doit être le plus symétrique possible par rapport à l'axe de rotation de l'agitateur. Notons que la frontière se déplace de la paroi du moule vers l'agitateur.

La figure 19 présente une coupe axiale du prototype à modéliser par le modèle mathématique.

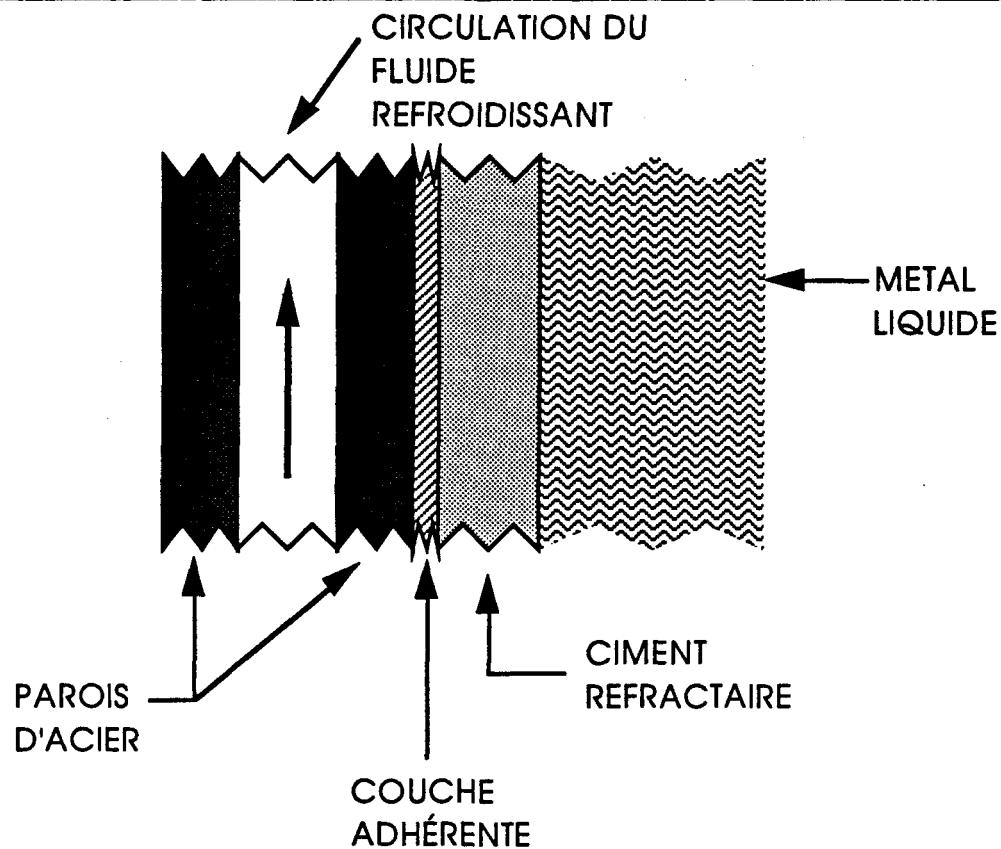


Figure 19: Coupe axiale du prototype

3.2-1 Hypothèses utilisées

Pour l'élaboration du modèle mathématique, on pose les hypothèses suivantes:

- 1- On considère les propriétés thermiques variables de l'aluminium pur à 99.7% (pureté moyenne de l'aluminium commercial utilisé comme charge de départ). Les changements de pureté de l'aluminium durant le procédé de cristallisation n'amènent que de faibles variations de ces propriétés thermiques. Les propriétés thermiques de l'aluminium sont données à l'appendice A [33].
- 2- La température de solidification de l'aluminium pur est de 660.2 °C et la chaleur latente volumique est de $9.53 \times 10^8 \text{ J/m}^3$ [34].

Chapitre 3: Méthodes numériques de calcul

-
- 3- La température de l'aluminium liquide dans le réacteur est considérée isotherme soit légèrement au-dessus de la température de solidification, sauf au voisinage de la frontière de solidification. Le brassage électromagnétique généré par le four à induction et le brassage puissant fourni par le système d'agitation uniformise la température du liquide.
 - 4- L'écoulement de la chaleur est unidirectionnel jusqu'à la solidification complète si le système suivant est considéré: agitation constante du liquide isotherme, forme circulaire du réacteur et de l'écoulement du fluide refroidissant.
 - 5- Découlant de l'hypothèse du transfert de chaleur unidirectionnel, les variations axiale et angulaire de la température dans l'aluminium solide sont négligées.
 - 6- Les dimensions du réacteur ne sont pas optimisées. A cette étape du projet, les dimensions du prototype ont été choisies suivant des considérations mécaniques, énergétiques et de disponibilité d'équipement.
 - 7- Les coefficients de transfert de chaleur par convection sont estimés par un procédé existant en usine, soit:

h_C = coefficient défini à la paroi interne de l'espace annulaire où circule le fluide réfrigérant; celui-ci est estimé à partir d'une relation tenant compte du mélange air et eau.

h_L = 5000 W/K.m² , coefficient défini dans le liquide à la frontière de solidification; la valeur est estimée à partir d'un procédé similaire [33].

- 8- L'écoulement du fluide refroidissant autour de la paroi du moule est considéré laminaire.
- 9- La température d'entrée du mélange refroidissant (air + eau) est de 293 K ou 20 °C. Cette température est mesurée et enregistrée durant les essais mais elle varie très faiblement.
- 10- La résistance thermique de la paroi extérieure du purificateur est considérée négligeable.

Chapitre 3: Méthodes numériques de calcul

11-Dans la zone de circulation (air - eau), on tient compte des transferts de chaleur convectif et radiatif.

12-Dans la zone de refroidissement, l'écoulement est supposé stationnaire.

13-II n'y a pas de film d'air présent entre les murs du réacteur et l'aluminium solidifié.

3.3 Transfert de chaleur

Pour la solution numérique des problèmes de conduction de chaleur avec changement de phase (problèmes de Stefan) par différences finies, les méthodes enthalpiques ou les méthodes de températures peuvent être utilisées. La situation physique ne favorise pas l'emploi d'une méthode de températures en raison du comportement des équations pour le traitement de la chaleur latente [29].

3.3-1 Equations fondamentales

Par la formulation enthalpique, le bilan de chaleur est respecté:

$$Q(\text{entrée}) - Q(\text{sortie}) = Q(\text{accumulée}) \quad (15)$$

Soit l'équation de l'énergie en coordonnées cylindriques pour les propriétés de l'aluminium pur [33]:

$$\frac{\partial H}{\partial t} = \alpha \left[\frac{\partial^2 H}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial H}{\partial r} \right] \quad (16)$$

où $r = i \Delta r$

pour $H \leq 0, \quad \alpha = 8,53 \times 10^{-5}$ (région solide)

$H > \rho L, \quad \alpha = 3,85 \times 10^{-5}$ (région liquide)

$$\rho L = 9,53 \times 10^8 \text{ [J/m}^3\text{]}$$

3.3-2 Discrétisation de l'équation d'énergie sous la forme explicite

La discrétisation de l'équation d'énergie (16) est décrite à l'aide de la figure 20 ci-dessous.

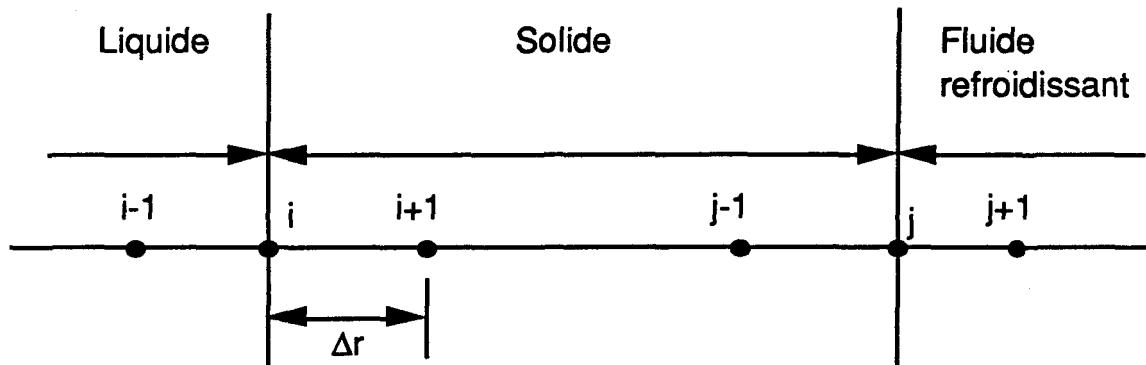


Figure 20: Schéma du système liquide-solide-fluide refroidissant

Nous pouvons donc reformuler l'équation (16) de la façon suivante:

$$\frac{H_{i+1}^{v+1} - H_{i+1}^v}{\Delta t} = \alpha \left[\frac{H_{i+1}^v - 2H_i^v + H_{i-1}^v}{\Delta r^2} \right] + \alpha \left[\frac{H_{i+1}^v - H_{i-1}^v}{2\Delta r} \right] \quad (17)$$

Le pas de temps Δt peut être exprimé selon la différence entre l'événement au temps $v+1$ moins l'événement au temps v . L'équation (17) se réécrit:

$$H_{i+1}^{v+1} = H_{i+1}^v + \alpha \left[\frac{H_{i+1}^v - 2H_i^v + H_{i-1}^v}{\Delta r^2} + \frac{1}{r} \frac{H_{i+1}^v - H_{i-1}^v}{2\Delta r} \right] \Delta t \quad (18)$$

Posons $r = i \Delta r$:

$$H_{i+1}^{v+1} = H_{i+1}^v + \alpha \left[\frac{H_{i+1}^v - 2H_i^v + H_{i-1}^v}{\Delta r^2} + \frac{1}{2i} \frac{H_{i+1}^v - H_{i-1}^v}{\Delta r^2} \right] \Delta t \quad (19)$$

Chapitre 3: Méthodes numériques de calcul

En réaménageant, on trouve:

$$H_{i+1}^{v+1} = H_{i+1}^v + \alpha \left[\frac{(2i+1) \left(\frac{v}{H_{i+1}} - \frac{v}{H_i} \right)}{\Delta r^2} + \frac{(2i-1) \left(\frac{v}{H_i} - \frac{v}{H_{i-1}} \right)}{\Delta r^2} \right] \Delta t \quad (20)$$

Au noeud à l'interface solide/liquide, on obtient par bilan:

$$\frac{k(H_i^v - H_{i-1}^v)}{\Delta r} = -h_L (H_L - H_R) \quad (21)$$

où h_L est le coefficient de transfert de chaleur dans le liquide, H_R est l'enthalpie au noeud dans le liquide et H_L est l'enthalpie dans le liquide. En introduisant l'équation (21) dans l'équation (20):

$$H_{i+1}^{v+1} = H_{i+1}^v + \alpha \left[\frac{(2i+1) \left(\frac{v}{H_{i+1}} - \frac{v}{H_i} \right)}{\Delta r^2} + \frac{(2i-1) h_L (H_R - H_L)}{k \Delta r} \right] \Delta t \quad (22)$$

Le même raisonnement s'applique au noeud du fluide refroidissant (à la paroi du moule). Ainsi:

$$\frac{k(H_{j+1}^v - H_j^v)}{\Delta r} = h_C (H_A - H_M) + h_R (H_P - H_M) \quad (23)$$

où h_C est le coefficient de transfert de chaleur par convection du fluide refroidissant, h_R est le coefficient de transfert de chaleur par rayonnement, H_A est l'enthalpie dans le fluide refroidissant, H_M est l'enthalpie à la paroi du moule. La combinaison des équations (20) et (23) donne:

$$H_{j+1}^{v+1} = H_{j+1}^v + \alpha \left[\frac{(2i+1) (h_C (H_A - H_M) + h_R (H_P - H_M))}{k \Delta r} + \frac{(2i-1) (H_{j+1}^v - H_j^v)}{\Delta r^2} \right] \Delta t \quad (24)$$

$$\frac{(2i-1) (H_{j+1}^v - H_j^v)}{\Delta r^2} \right] \Delta t$$

3.3.3 Méthode de solution

À $t = 0$

- pour toutes les cellules d'épaisseur Δz , on impose

$$T_{\infty} = 20 \text{ }^{\circ}\text{C}$$

- on suppose que la frontière de solidification se positionne à la paroi du moule

Pour chaque pas de temps Δt et pour chaque tranche Δz

- On évalue le coefficient de transfert de chaleur par rayonnement h_R à $T_M = T_M^{v-1}$, soit la température de la paroi du moule calculée au pas de temps précédent ($v-1$). Cette approximation est nécessaire de façon à conserver la relation linéaire.
- Par récursivité, on solutionne l'équation d'énergie par différences finies
- On évalue les coefficients de transfert de chaleur par convection naturelle et par rayonnement à la température de la paroi externe au pas de temps précédent.
- Par récursivité, on solutionne l'équation du bilan en régime stationnaire pour la température à la paroi T_P .
- On solutionne par récursivité, l'équation du bilan de chaleur en régime stationnaire pour la température du fluide refroidissant T_A à la tranche $(i+1)\Delta z$.

Si l'enthalpie au noeud dans la cellule liquide est inférieure à 0, alors on définit une nouvelle cellule adjacente à celle solidifiée. L'arrêt des simulations pour le procédé de solidification a lieu lorsqu'une cellule liquide se solidifie au rayon correspondant à la position de

l'agitateur. La logique de la programmation sur ordinateur de la modélisation du système de solidification est détaillée au chapitre 5.

3.4 Transfert de masse

Les équations de transfert de masse développées au point 1.3 sont intégrées aux équations de transfert de chaleur développées plus tôt. L'algorithme de solution des équations est expliqué en détails au chapitre 5 portant sur la validation des prédictions faites du modèle. Tel qu'expliqué au chapitre 1, le coefficient de distribution effectif K_e est le paramètre clef à connaître pour un système de solidification dynamique. Le coefficient K_e permet de prédire la concentration de l'impureté dans le solide cristallisé. Ce coefficient est fonction de la vitesse de solidification, de la diffusivité de l'impureté dans la solution et de l'épaisseur de l'interface entre le solide et le liquide. L'équation (14) introduite au chapitre 1 est reprise ici.

$$K_e = \frac{K_0}{K_0 + (1 - K_0) \exp \left(\frac{z_f}{D_{A-B}} \right)} \quad (14)$$

La diffusivité massique de l'impureté A dans le liquide DA-B est définie selon la corrélation suivante [35]:

$$D_{A-B} = \frac{7,4 \times 10^{-12} \times M_B^{0,5} \times T_L}{\mu_B \times \left(\frac{M_A}{\rho_A} \right)^{0,6}} \quad (25)$$

où M_B est le masse molaire du liquide, T_L est la température du liquide, μ_B est la viscosité du liquide, ρ_A est la densité de l'impureté et M_A est le masse molaire de l'impureté. Le coefficient de distribution à l'équilibre K_0 peut être déduit à partir du diagramme de phases de l'impureté avec l'aluminium. K_0 étant le rapport entre la concentration de l'impureté dans le phase liquide et la phase solide, on peut à partir du diagramme de phases et connaissant la

Chapitre 3: Méthodes numériques de calcul

concentration initiale de l'impureté dans le liquide, déterminer la concentration de l'impureté du solide à l'état d'équilibre. Un autre paramètre à connaître pour la résolution de l'équation (14) est l'épaisseur de l'interface z_f . Burton et Al. [36] ont développé une relation permettant d'estimer l'épaisseur de l'interface solide-liquide:

$$z_f = 1,6 \times D_{A-B}^{1/3} \times \mu_B^{1/6} \times (\text{vitesse angulaire})^{-1/2} \quad (26)$$

On peut donc solutionner l'équation (14) pour le coefficient de distribution effectif.

3.4-1 Méthode de solution des équations de transfert de masse

Au début de la simulation on détermine:

1) - pour chaque impureté étudiée dans l'aluminium, les propriétés physiques ou paramètres d'entrée suivants:

A-Masse molaire

B-Chaleur massique

C-Densité

D-Concentration dans le liquide (déterminer à partir d'une analyse spectrographique du métal liquide avant le début de la cristallisation)

E-Concentration dans le solide pour un système à l'équilibre à une vitesse de solidification très lente (déduit à partir du diagramme de phases)

2) - le coefficient de distribution à l'équilibre K_0

3) - pour chaque impureté le coefficient de diffusion massique de l'impureté dans l'aluminium D_{A-B}

Pour chaque cellule nouvellement solidifiée, on calcule:

- la vitesse de solidification de la cellule

Chapitre 3: Méthodes numériques de calcul

- l'épaisseur de l'interface solide-liquide
- le coefficient de distribution effectif K_e par l'équation (14)
- la concentration de l'impureté dans la nouvelle cellule solidifiée avec le coefficient de distribution effectif et la concentration de l'impureté dans le liquide.

L'arrêt des simulations pour le procédé de solidification a lieu lorsqu'une cellule liquide se solidifie au rayon correspondant à la position de l'agitateur. La concentration de chaque impureté étudiée pour chacune des cellules solidifiées est inscrite dans un fichier de données. Un traitement ultérieur du fichier permet de connaître la concentration moyenne de chaque impureté dans le solide cristallisé et de connaître les profils de concentrations de l'impureté en fonction du rayon ou de la hauteur du solide. La logique de la programmation sur ordinateur de la modélisation du système de solidification est détaillée au chapitre 5.

4

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

L'équipement utilisé pour les expériences ainsi que la procédure expérimentale suivie sont décrits au chapitre 2. Les résultats expérimentaux obtenus montrent les effets des paramètres d'opération sur la purification par cristallisation fractionnée de l'aluminium de pureté commerciale. Les paramètres étudiés sont le degré d'agitation et le débit du fluide refroidissant (air et eau). Les résultats sont décrits ci-après. Nous dirons auparavant quelques mots sur les difficultés rencontrées pour analyser l'effet de la température du liquide.

4.1 Température

Le premier paramètre étudié a été la température de l'aluminium liquide. Un contrôle efficace de la température à l'interface restreint la formation de dendrites et améliore le degré de purification comme expliqué précédemment (voir chapitre 1). Des essais effectués aux températures de 670 °C et 665 °C ont démontré que très peu de solidification se produit à ces températures. Avec les débits de fluide refroidissant disponibles, le taux d'extraction de la chaleur n'est pas assez important pour provoquer le taux de croissance d'aluminium solide désiré.

Les limitations pratiques du réacteur ne nous ont pas permis d'étudier l'effet de la température en détails. Même si une surchauffe de 10 °C peut être facilement obtenue par la source d'induction électromagnétique, cette surchauffe ne peut être extraite

efficacement par la chambre de refroidissement. La conception originale du réacteur et de sa chambre de refroidissement avec une épaisseur de 4 cm de ciment réfractaire en carbure de silicium a provoqué des fractures de façon répétitives, causant ainsi de l'infiltration d'aluminium liquide entre le ciment et les parois d'acier du réacteur et conduisant à l'arrêt du four à induction par suite d'un court-circuit. Une solution de compromis a été prise en employant une couche monolithique de ciment réfractaire lisse ce qui a résulté en une chute de conductivité de 16 à 7 W/m-°C. Ceci limite l'extraction de la chaleur du réacteur et restreint la cristallisation sur les murs intérieurs du réacteur. Cependant, la résistance aux chocs thermiques est augmentée et la surface lisse apportée par ce revêtement s'est révélée très efficace.

Par suite de ces difficultés d'ordre pratique, l'effet de la température de l'aluminium liquide n'a pu être étudié. La température de l'aluminium liquide a été gardée constante à 660 °C et divers taux de solidification ont été obtenus en variant les autres paramètres i.e. la vitesse de l'agitateur et le débit du fluide refroidissant (air et eau).

4.2 Agitation

Durant la solidification, la croissance incontrôlée des dendrites au front de cristallisation conduit au piégeage de la solution mère concentrée en impuretés d'éléments eutectiques. Une agitation forte brise les dendrites ce qui empêche le piégeage. De plus, le degré d'agitation réduit l'épaisseur de la couche de diffusion à l'interface solide-liquide. Comme conséquence, le transfert de masse des impuretés est augmenté, résultant en un solide de plus haute pureté.

Les niveaux d'agitation testés au cours de la présente étude variaient entre 150 et 250 rotations par minute (RPM) i.e. 19 à 32 cm/seconde (mesurée à l'extrémité des palmes de l'hélice). Des vitesses de rotation plus élevées n'ont pu être testées dû à des limitations opérationnelles. Comme expliqué au chapitre 2, la chaleur est fournie par la fournaise électromagnétique au bas du réacteur et l'extraction de la chaleur est faite par la chambre de refroidissement entourant le réacteur. Aucune chaleur additionnelle n'est ajoutée par le dessus du cristallisateur. Une couche d'air d'approximativement 5 cm et des

éclaboussures causées par l'agitation ont produit un taux de solidification plus élevé dans le haut du réacteur, tel que démontré schématiquement à la figure 21. Cette croissance rapide restreint la rotation de l'agitateur et peut causer un arrêt anticipé du procédé. D'un autre côté, l'opération au-dessous de 150 RPM n'apporte pas de brassage suffisant du métal liquide.

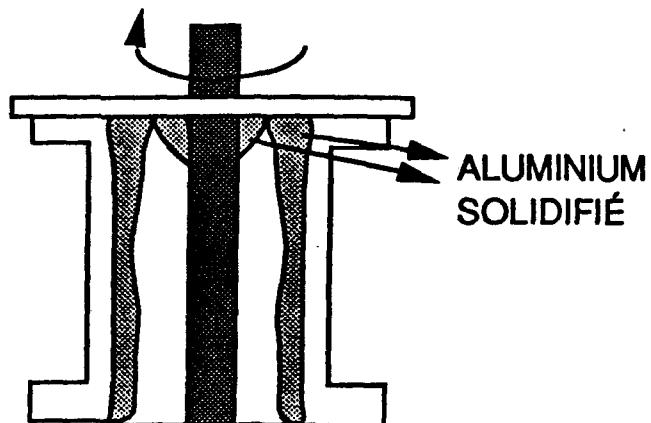


Figure 21: Croissance du solide au haut du réacteur

La figure 22 montre l'effet de la vitesse d'agitation sur la pureté finale. Les conditions d'opération suivantes ont été gardées constantes:

Débit d'air:	4250 L/min (150 SCFM)
Débit d'eau:	0,40 kg/min
Température du métal liquide:	660 °C

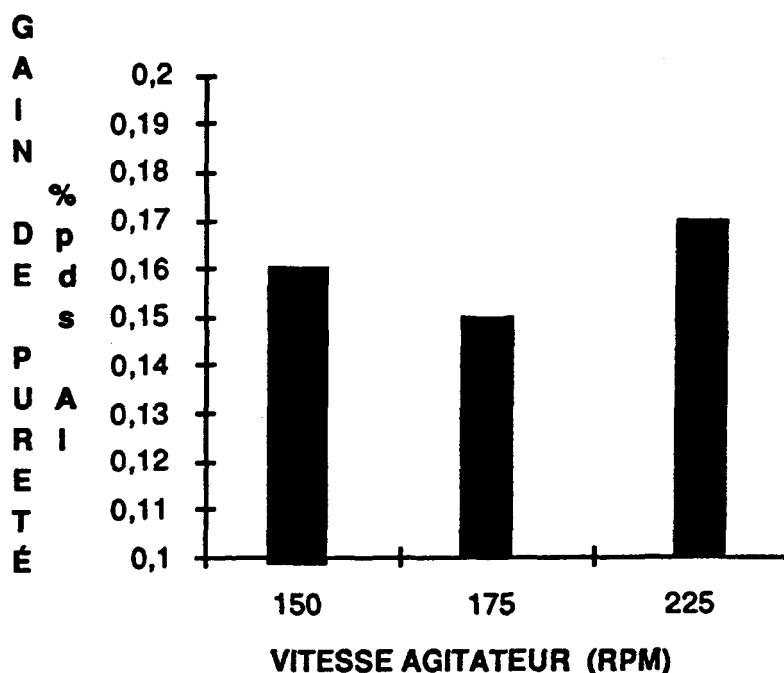


Figure 22: Effet de la vitesse d'agitation sur la pureté

Les valeurs qui ont permis d'obtenir ces résultats sont présentées au tableau 1. Les concentrations des deux principaux éléments eutectiques (le fer et le silicium) et des deux principaux éléments péritectiques (le titane et le vanadium) y sont également données.

VITESSE AGITATEUR RPM	PURETÉ DE DÉPART %pds Al	Fe %pds	Si %pds	Ti %pds	V %pds
150	99,76	0,152	0,053	0,0034	0,0081
175	99,76	0,14	0,05	0,004	0,009
225	99,75	0,15	0,051	0,004	0,008

Tableau 1(a): Données expérimentales obtenues en variant la vitesse d'agitation - Données initiales

VITESSE AGITATEUR RPM	PURETÉ FINALE %pds Al	Fe		Si		Ti		V	
		% pds	K_e						
150	99,92	0,042	0,28	0,019	0,35	0,012	3,62	0,02	2,5
175	99,91	0,049	0,35	0,02	0,41	0,012	2,94	0,02	2,24
225	99,92	0,035	0,24	0,017	0,34	0,014	3,41	0,022	2,8

Tableau 1(b): Données expérimentales obtenues en variant la vitesse d'agitation - Données finales

A la figure 23, les concentrations (en % poids) et les coefficients de distribution effectifs (K_e) sont illustrés en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur pour les deux éléments eutectiques majeurs soient le fer et le silicium. La figure 24 montre l'effet de l'agitation pour les deux péritectiques majeurs soient le titane et le vanadium.

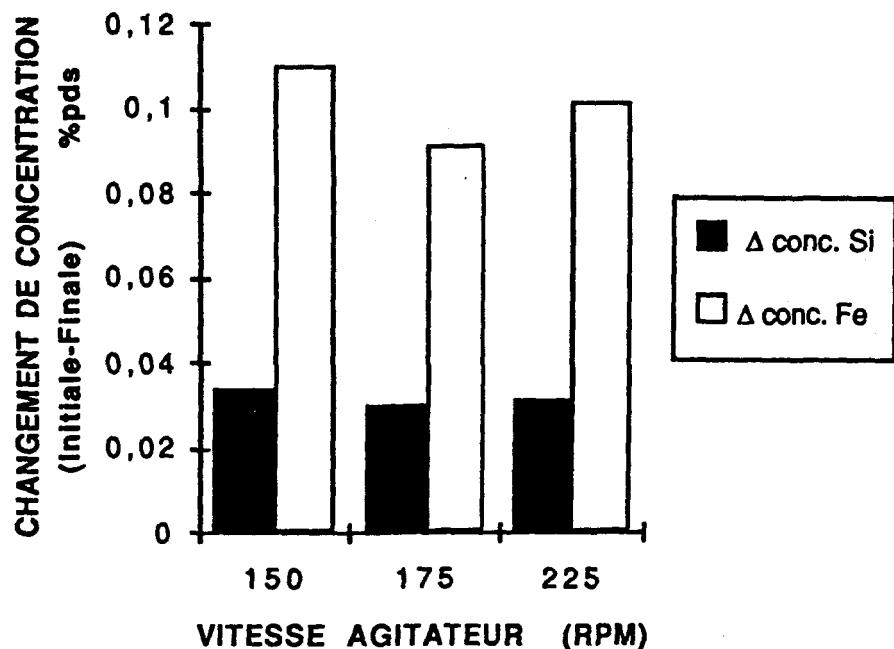


Figure 23 (A): Effet de la vitesse d'agitation sur les concentrations de fer et de silicium

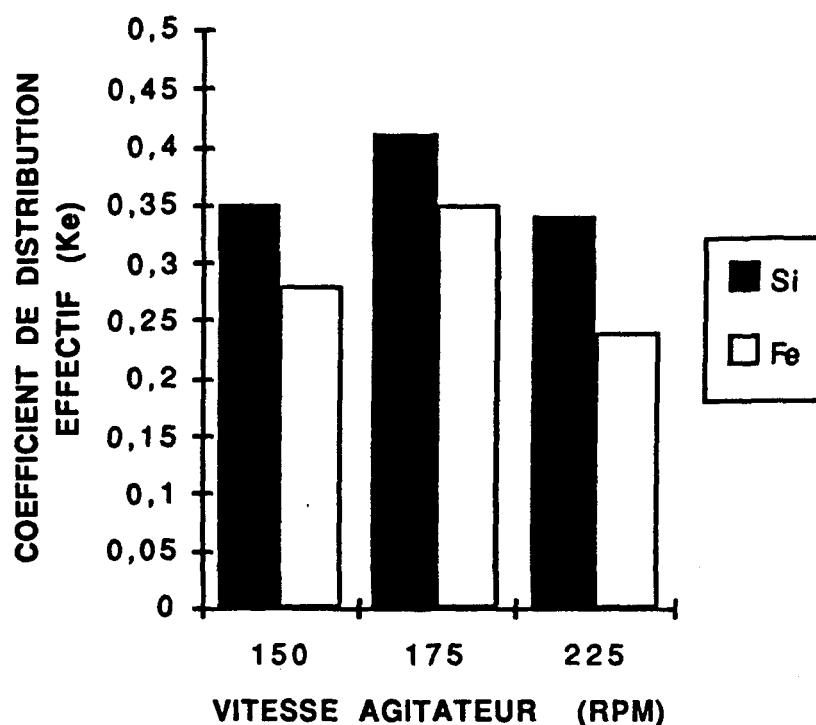


Figure 23 (B): Effet de la vitesse d'agitation sur le coefficient de distribution effectif pour le fer et le silicium

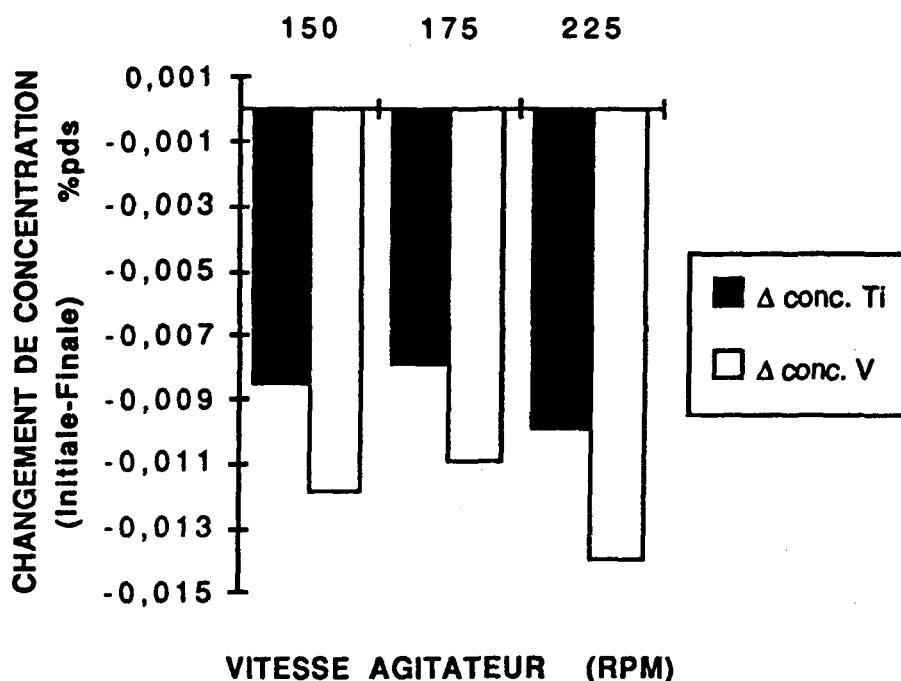


Figure 24 (A): Effet de la vitesse d'agitation sur les concentrations du titane et du vanadium

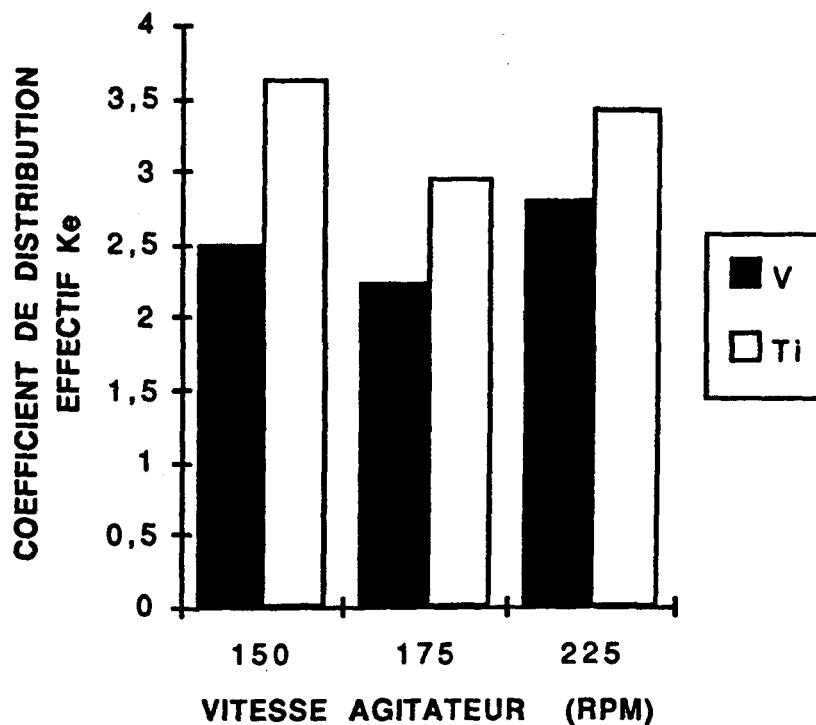


Figure 24 (B): Effet de la vitesse d'agitation sur les coefficients de distribution effectif du titane et du vanadium

Les éléments péritectiques tels que le titane et le vanadium se concentrent dans le solide lors de la cristallisation fractionnée. Un traitement ultérieur, tel qu'une précipitation avec le bore, permet d'éliminer ces éléments du métal purifié. Rappelons que le coefficient de distribution effectif est défini de la façon suivante:

$$K_e = \frac{\text{Concentration de l'élément dans le métal purifié}}{\text{Concentration de l'élément dans la solution liquide mère}}$$

Donc, plus la valeur de K_e est petite, meilleure est la séparation des impuretés du métal. Cependant, il y a une valeur limite que K_e ne peut dépasser, il s'agit de la valeur à l'équilibre K_0 , déduite à partir des diagrammes de phases (voir chapitre 1). Dans le cas des éléments énumérés au tableau 1, les valeurs K_0 sont les suivantes:

$$K_0 (\text{Fe}) = 0.024$$

$$K_0 (\text{Si}) = 0.13$$

$$K_0 (\text{Ti}) = 10$$

$$K_0 (\text{V}) = 10$$

Dans le cas des éléments eutectiques, tel que le fer et le silicium, il s'agit de valeurs minimales des concentrations possibles dans le solide purifié; pour les éléments péritectiques, il s'agit de valeurs maximales. Les concentrations de fer et de silicium, lesquels réagissent de façon eutectique avec l'aluminium, sont légèrement moins élevées à une vitesse de rotation de 225 RPM qu'à 150 RPM. La théorie prédit que des concentrations plus basses en éléments eutectiques dans le solide purifié devraient être obtenues avec des vitesses d'agitation plus élevées. Toutefois la tendance est difficile à percevoir dans les résultats expérimentaux puisqu'une concentration minimale est obtenue à 150 RPM. De façon générale, l'effet est inversé pour les éléments péritectiques (titane et vanadium), i.e. l'obtention d'une concentration plus élevée avec une vitesse d'agitation plus élevée.

4.3 Débit du fluide refroidissant

Un accroissement du débit du liquide refroidissant augmente le taux de solidification. Dans le but de minimiser le piégeage des impuretés dans le cristal solide, il est désirable de former des cristaux parfaits, libres de dendrites. La formation de ce type de cristaux est favorisée à des taux de solidification faible (à un faible taux de sursaturation).

Quand le taux de cristallisation décroît, le rejet des impuretés du solide à l'interface solide-liquide se fait plus lentement. Il est donc plus facile de redistribuer ces impuretés dans la solution liquide ce qui diminue les chances de piéger ces impuretés dans le solide. Il en résulte une meilleure séparation puisque la diminution du débit du liquide refroidissant décroît le taux de cristallisation. Il faut garder en tête qu'il y a une limite inférieure pour le débit du fluide refroidissant; celui-ci doit être suffisamment élevé pour produire un taux de transfert de chaleur apte à maintenir un degré de sursaturation nécessaire à la cristallisation.

Le fluide refroidissant consiste en un mélange d'air et d'eau. Une faible quantité d'eau (entre 0.2 et 0.6 kg par minute) a été ajoutée à un débit d'air (entre 3000 et 7000 litres par minute) à une pression de

482.5 KPa (70 PSI) avant l'entrée dans la chambre de refroidissement. Le fluide refroidissant consiste donc en un écoulement d'air contenant de très fines gouttelettes d'eau. Le taux de transfert de chaleur en est grandement amélioré comparativement à l'air seul. La chaleur massique de l'air est de 0.23 calories/gramme comparativement 1.0 calorie/gramme pour l'eau et 0.46 calories/gramme pour la vapeur.

Puisque le fluide refroidissant est un mélange d'air et d'eau et que le débit de chacun peut être ajusté indépendamment, les sous-chapitres suivant décriront l'effet de leurs variations respectives dans le procédé sur la pureté du métal solidifié.

4.3-1 Débit d'air

Un débit constant d'eau de 0,3 kg/minute a été utilisé en variant les débits d'air. Pour chacun des trois essais, la solidification a été obtenue grâce à cette addition d'eau. La proportion d'eau dans l'air détermine le degré de solidification du solide sur les murs du réacteur. Plus le rapport de l'eau par unité de volume du fluide refroidissant (voir colonne 2 du tableau 2) est bas, plus le taux de solidification est bas, résultant en un degré de purification plus élevé. La figure 25 montre l'effet du débit d'air en fonction de la pureté finale du solide. Pour ces essais, les paramètres suivants ont été gardés constants:

Vitesse d'agitation:	150 RPM
Débit d'eau:	0.3 kg/minute
Température métal liquide:	660 °C

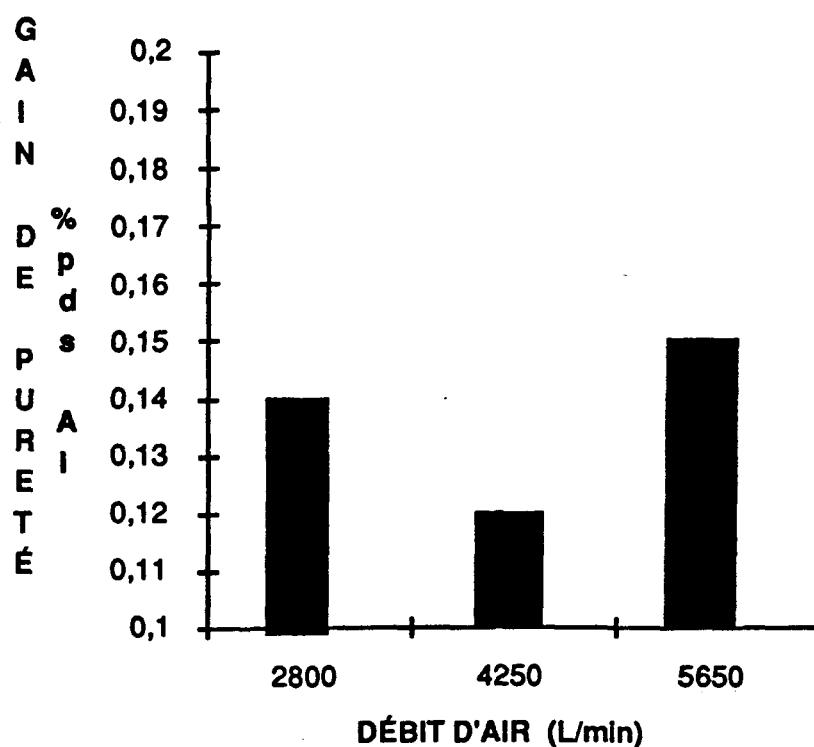


Figure 25: Effet du débit d'air sur la pureté

Le tableau 2 présente les résultats de façon plus détaillée. On y donne les concentrations des deux principaux éléments eutectiques (fer et silicium) et des deux principaux éléments péritectiques (titane et vanadium).

DÉBIT D'AIR L/min	Proportion d'eau dans l'air g eau/L d'air	PURETÉ DE DÉPART %pds Al	Fe %pds	Si %pds	Ti %pds	V %pds
2800	0,107	99,77	0,14	0,048	0,003	0,008
4250	0,0705	99,78	0,13	0,048	0,004	0,009
5650	0,053	99,77	0,14	0,047	0,004	0,009

Tableau 2A: Données expérimentales obtenues en variant le débit d'air
Données initiales

DÉBIT D'AIR L/min	PURETÉ FINALE %pds Al	Fe		Si		Ti		V	
		% pds	K_e						
2800	99,91	0,05	0,36	0,02	0,42	0,01	3,36	0,019	2,36
4250	99,9	0,05	0,39	0,023	0,49	0,012	3,07	0,021	2,3
5650	99,92	0,039	0,28	0,016	0,35	0,011	2,68	0,019	2,15

Tableau 2B: Données expérimentales obtenues en variant le débit d'air
Données finales

Une étude de la figure 25 et du tableau 2 montre que le degré de purification ne s'améliore pas significativement avec le débit d'air. Cependant, on doit souligner que l'air seul comme fluide refroidissant et peu importe le débit circulé (jusqu'à 7080 litres minute) ne peut produire une solidification significative de cristal sur les murs du réacteur.

A la figure 26, les concentrations et les coefficients de distribution sont tracés en fonction du débit d'air pour les éléments de fer et de silicium.

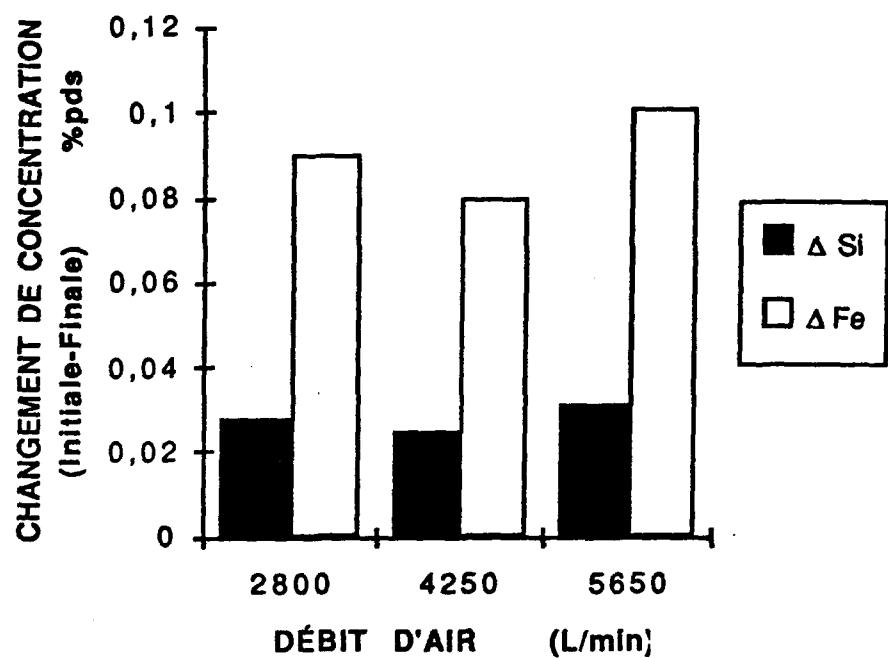


Figure 26 (A): Effet du débit d'air sur les concentrations de fer et de silicium

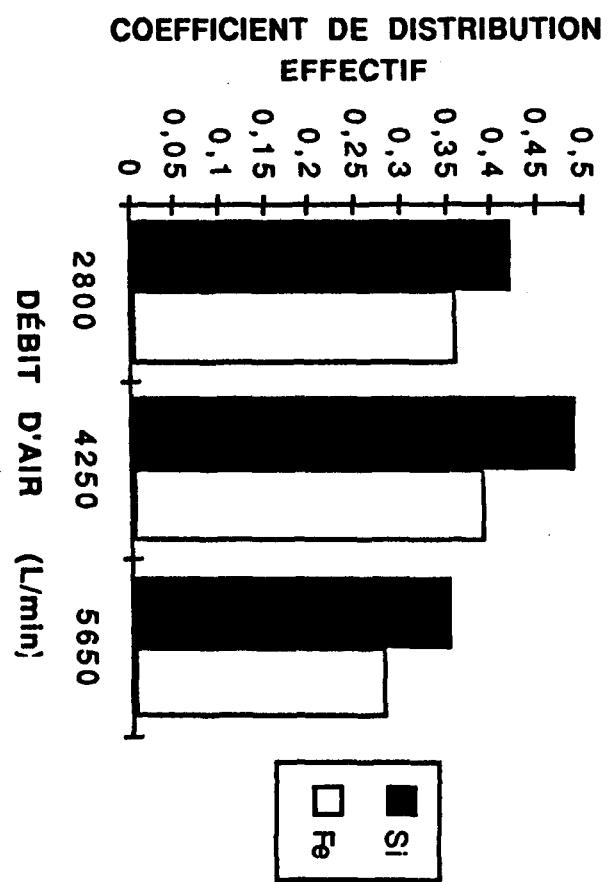


Figure 26 (B): Effet du débit d'air sur le coefficient de distribution effectif pour le fer et le silicium

La figure 27 montre les mêmes relations pour les éléments périactiques du titane et du vanadium.

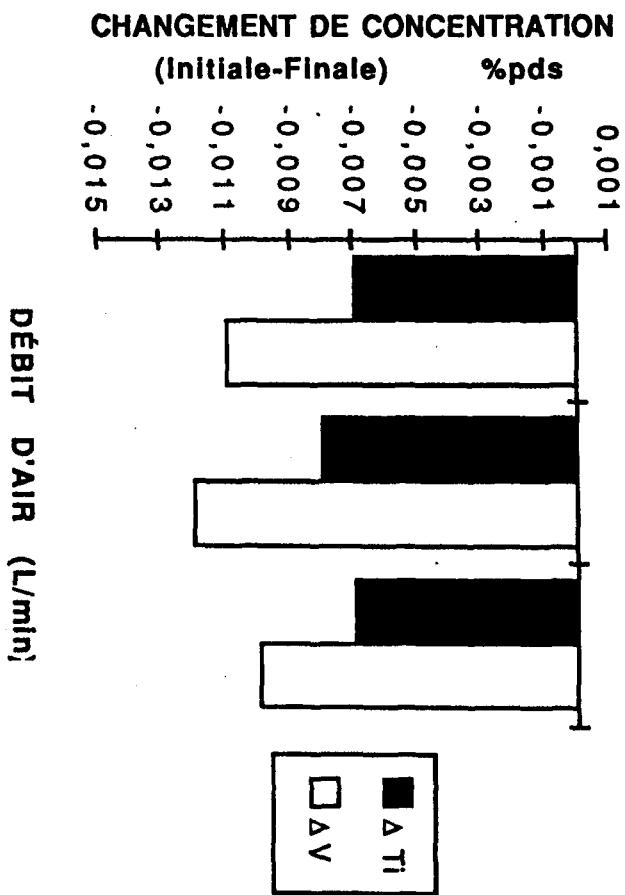


Figure 27 (A): Effet du débit d'air sur les concentrations de titane et de vanadium

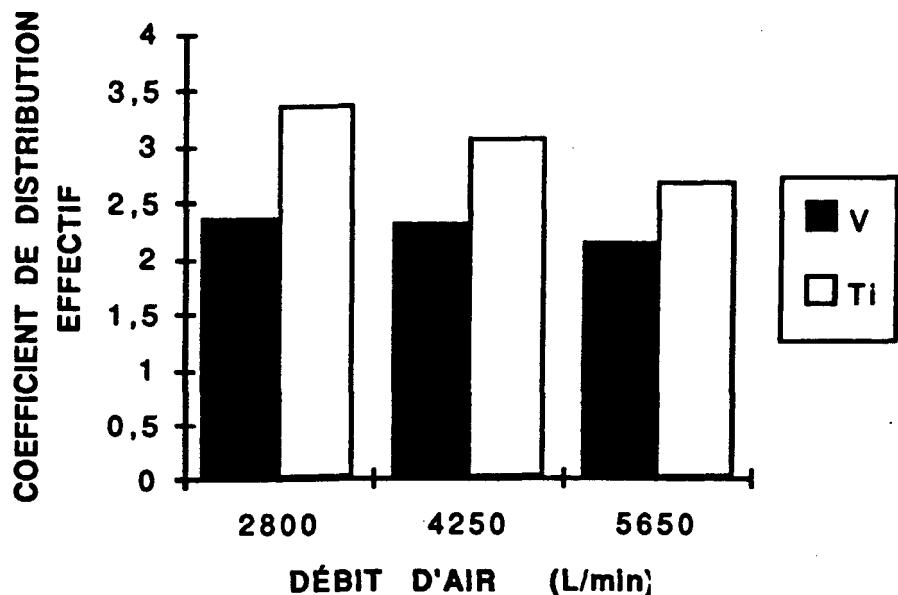


Figure 27 (B): Effet du débit d'air sur les coefficients de distribution effectif du titane et du vanadium

Avec des taux de solidification plus élevés (débit d'air plus bas), la concentration des éléments péritectiques dans le solide cristallisé a augmenté et la concentration des éléments eutectiques a diminué.

4.3-2 Débit d'eau

La figure 28 montre l'effet du débit d'eau sur la pureté finale du solide cristallisé. Pour ces essais, les conditions suivantes ont été gardées constantes:

Vitesse d'agitation:	150 RPM
Débit d'air:	4250 L/min (150 SCFM)
Température du métal liquide:	660 °C

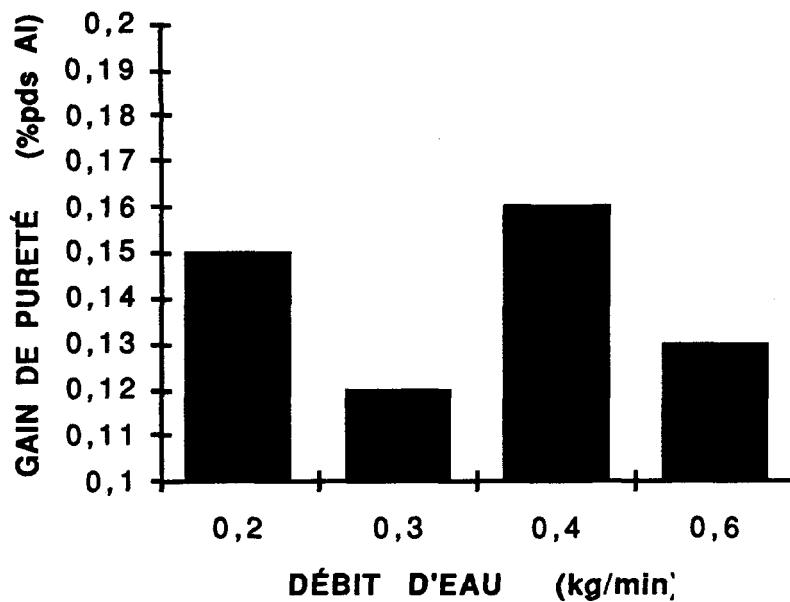


Figure 28: Effet du débit d'eau sur la pureté

Les valeurs utilisées pour obtenir la figure 28 sont données au tableau 3. Les concentrations des deux principaux éléments eutectiques (le fer et le silicium) et des deux éléments péritectiques (le titane et le vanadium) sont aussi données au même tableau. Nous avons déjà expliqué que le débit d'eau est l'élément principal qui contrôle le taux de solidification (voir partie 4.3-1). Une augmentation de la quantité d'eau par unité de volume d'air génère un taux de solidification plus rapide; il devrait en résulter une dégradation du degré de purification, ce qui n'est pas observé à la figure 28.

DÉBIT D'EAU kg/min	PROPORTION D'EAU DANS L'AIR g eau/L d'air	PURETÉ DE DÉPART %pds Al	Fe %pds	Si %pds	Ti %pds	V %pds
0,2	0,047	99,77	0,14	0,049	0,004	0,009
0,3	0,0705	99,78	0,13	0,048	0,004	0,009
0,4	0,094	99,76	0,152	0,053	0,0034	0,0081
0,6	0,1416	99,76	0,14	0,05	0,005	0,009

Tableau 3(a): Données expérimentales obtenues en variant le débit d'eau - Données initiales

DÉBIT D'EAU kg/min	PURETÉ FINALE %pds Al	Fe		Si		Ti		V	
		% pds	K_e						
0,2	99,92	0,037	0,26	0,017	0,34	0,012	3,1	0,021	2,4
0,3	99,9	0,05	0,39	0,023	0,49	0,012	3,07	0,021	2,3
0,4	99,92	0,042	0,28	0,019	0,35	0,012	3,62	0,02	2,5
0,6	99,89	0,06	0,44	0,024	0,48	0,011	2,78	0,018	2,02

Tableau 3(b): Données expérimentales obtenues en variant le débit d'eau -Données finales

A la figure 29, les concentrations et les coefficients de distribution effectifs pour le fer et le silicium sont tracés en fonction du débit d'eau.

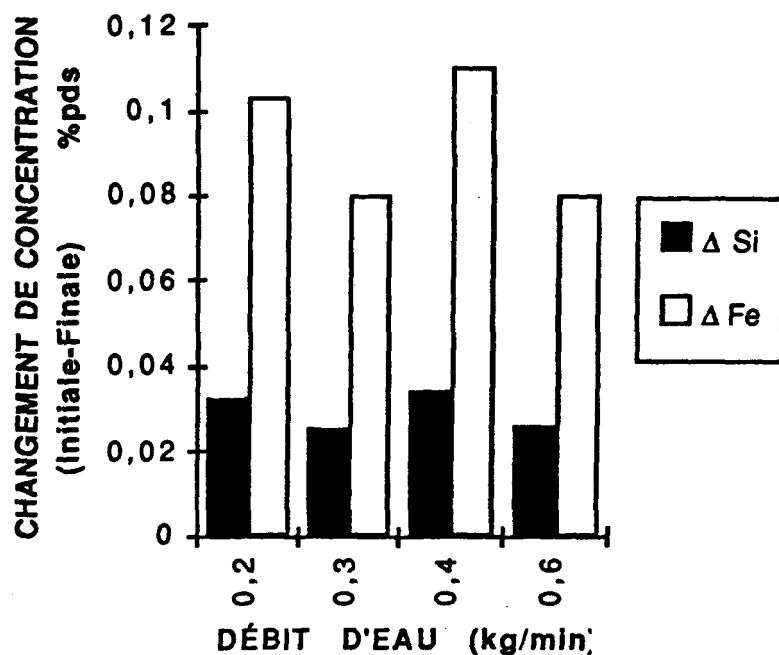


Figure 29 (A): Effet du débit d'eau sur les concentrations de fer et de silicium

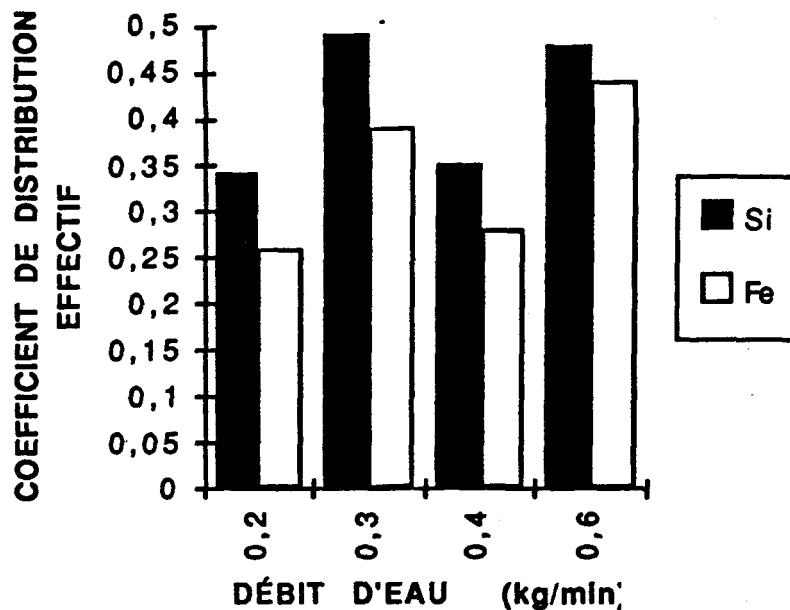


Figure 29 (B): Effet du débit d'eau sur le coefficient de distribution effectif pour le fer et le silicium

La figure 30 montre les mêmes relations pour le titane et le vanadium.

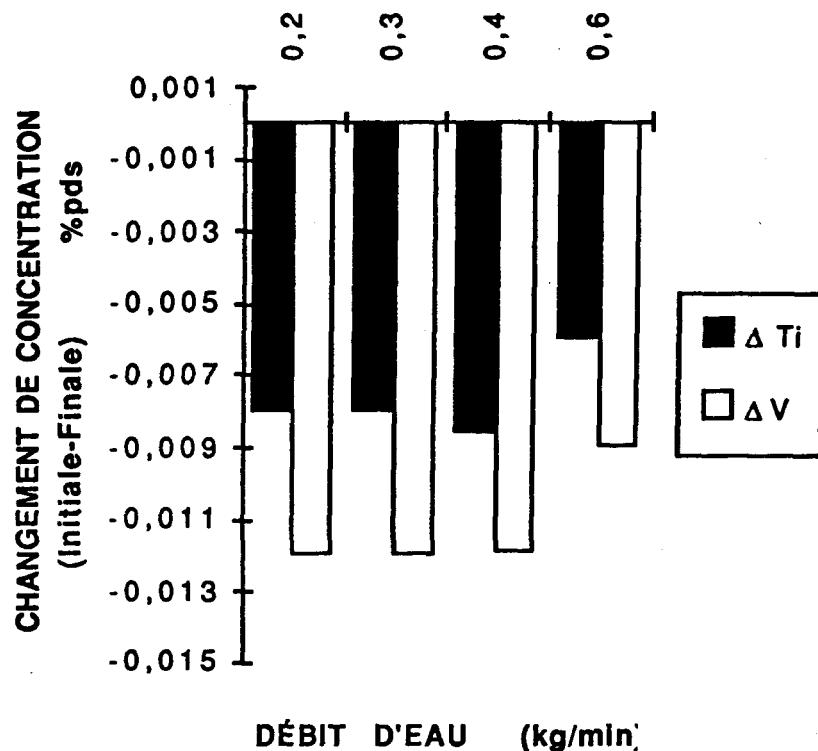


Figure 30 (A): Effet du débit d'eau sur les concentrations du titane et du vanadium

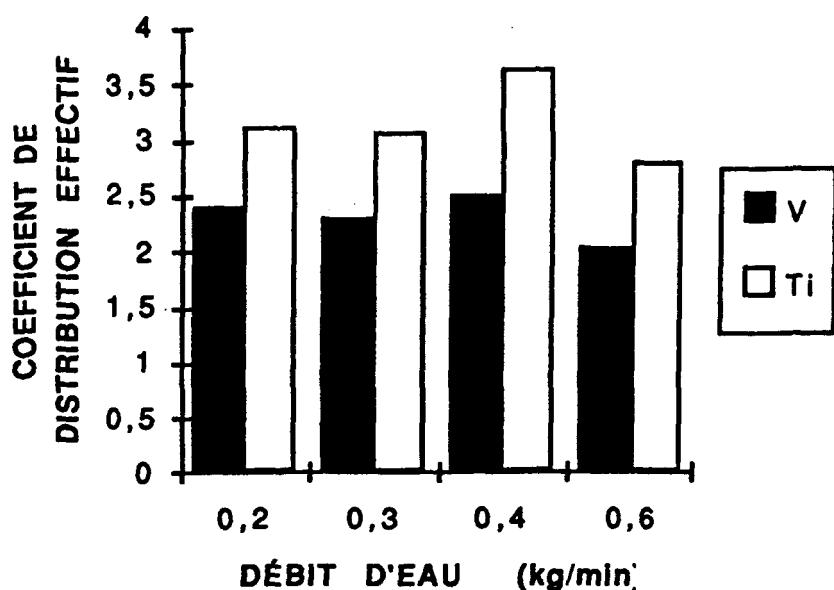


Figure 30 (B): Effet du débit d'eau sur le coefficient de distribution effectif du titane et du vanadium

Un accroissement du débit d'eau amène une augmentation du taux de transfert de chaleur, une diminution de la concentration des éléments péritectiques (figure 30) et une augmentation de la concentration des éléments eutectiques (figure 29) dans le solide cristallisé.

5

COMPARAISON DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX A CEUX DU MODELE

Dans ce chapitre, nous comparons les résultats expérimentaux obtenus à ceux du modèle mathématique. Le modèle mathématique, décrit brièvement au chapitre 3, permet de prédire différents résultats lors d'essais de solidification d'aluminium par cristallisation fractionnée selon les diverses conditions d'opération employées (vitesse d'agitation, débits du fluide refroidissant, composition chimique de la solution de départ) en respectant la géométrie du réacteur expérimental. Le modèle permet de prédire les concentrations des impuretés dans le solide purifié ainsi que les températures obtenues à différents points du réacteur durant la solidification. Les principaux résultats expérimentaux concernant les concentrations des impuretés dans le solide cristallisé ont été présentés en détails au chapitre 4.

La première partie du chapitre explique l'algorithme de résolution du modèle pour les transferts de chaleur et de masse appliqués au réacteur expérimental. La seconde partie compare les résultats expérimentaux et calculés pour le transfert thermique et enfin la troisième partie compare les résultats expérimentaux et calculés pour le transfert de masse i.e. les concentrations chimiques des impuretés dans le solide purifié à la fin de chaque essai.

5.1 Algorithme de résolution du modèle mathématique.

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

L'algorithme de résolution est présenté en détails à l'appendice B et peut être résumé en 5 étapes importantes:

- 1- Initialisation des variables et différentes entrées (paramètres d'opération du réacteur) du modèle
Calcul des nombres adimensionnels
- 2- Calcul des incrément de calcul du modèle selon le rayon et la hauteur du réacteur.
-Calcul des critères de convergence pour la méthode de calcul employée
- 3- Distribution de la température et de l'enthalpie en chaque point du maillage pour les différences finies.
- 4- Début de la simulation - Calculs de l'enthalpie et du transfert de masse pour la solidification dans le réacteur
- Arrêt de la simulation lorsque la frontière de solidification atteint la position de l'agitateur ou après un temps de solidification pré-déterminé selon l'essai qui est simulé.
- 5- Traitement des résultats - Ecriture de la variation des températures en fonction du temps pour différents points du réacteur. - Calcul de la concentration des impuretés dans le solide cristallisé.

5.1-1 Initialisation des variables et des différentes entrées

Pour le fonctionnement du modèle mathématique, une liste de variables doit être indiquée avant le début des simulations. La première liste comprend la géométrie et les propriétés physiques du réacteur étudié:

(1)	Rayon intérieur du purificateur	m
(2)	Epaisseur du ciment réfractaire	m
(3)	Conductivité thermique du ciment réfractaire	W/m-°C
(4)	Epaisseur de la couche isolante	m
(5)	Conductivité thermique de la couche isolante	W/m-°C
(6)	Epaisseur de la paroi d'acier	m
(7)	Conductivité thermique de la paroi d'acier	W/m-°C

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

(8)	Hauteur du purificateur	m
(9)	Rayon de l'agitateur	m
(10)	Largeur de la zone de circulation du fluide refroidissant	m
(11)	Emissivité de la paroi interne	
(12)	Emissivité de la paroi externe	

La géométrie et les propriétés physiques du réacteur demeurent inchangées pour chaque simulation effectuée. Les valeurs des conductivités thermiques des matériaux ont été prises à partir de données publiées par les fabricants. Une description détaillée du réacteur expérimental est donnée au chapitre 2.

En second lieu, les paramètres d'opération du réacteur sont précisés:

(13)	Débit massique de l'air	kg/s
(14)	Débit massique de l'eau	kg/s
(15)	Vitesse de rotation de l'agitateur	RPM

Ces trois paramètres sont les seuls qui sont pleinement contrôlés lors de l'expérimentation et qui ont une influence directe sur l'efficacité de la cristallisation. A chaque fois qu'un de ces paramètres est changé, une nouvelle simulation doit être faite. La température du fluide refroidissant ne pouvait être contrôlée et variait d'un essai à l'autre. Cette température a été mesurée durant chaque essai et fait partie des entrées du modèle. Il convient d'ajouter toutefois qu'elle demeurait stable lors des essais.

(16)	Température d'entrée du fluide refroidissant	°C
------	--	----

Troisièmement, les propriétés physiques de la solution mère de départ (aluminium liquide) doivent être connues:

(17)	Température de l'aluminium liquide	°C
(18)	Masse molaire du liquide	kg/kmol
(19)	Viscosité dynamique du liquide	kg/m-s

Quatrièmement, le fer et le silicium sont les impuretés eutectiques choisies pour l'étude puisqu'elles représentent les deux principales impuretés mesurées dans la solution liquide de départ. La

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

concentration de départ de ces impuretés est déterminée à partir d'une analyse par spectrographie sur un échantillon pris après la refonte de l'aluminium liquide avant le début de la cristallisation fractionnée. Ces données sont utilisées comme entrées du modèle. Typiquement dans l'aluminium de pureté commerciale utilisé comme solution de départ pour les essais, la concentration de fer varie entre 0,05 et 0,20%. La concentration de silicium varie entre 0,02 et 0,10%. De plus, certaines propriétés physiques du fer et du silicium doivent être connues pour démarrer les simulations avec le modèle.

(20) Concentration molaire du fer de départ	kmol/m ³
(21) Densité du fer	kg/m ³
(22) Masse molaire du fer	kg/kmol
(23) Coefficient de distribution à l'équilibre du fer	
(24) Concentration molaire du silicium de départ	kmol/m ³
(25) Densité du silicium	kg/m ³
(26) Masse molaire du silicium	kg/kmol
(27) Coefficient de distribution l'équilibre du silicium	

Les coefficients de distribution à l'équilibre sont déduits des diagrammes de phases de chaque impureté dans l'aluminium (Appendice C).

Pour certains essais, le procédé de cristallisation a dû être arrêté avant que le solide n'atteigne l'agitateur suite à une perte de puissance de la fournaise électro-magnétique ou un arrêt de l'agitateur. Dans de tels cas, un temps de solidification égal à celui mesuré durant l'essai, doit être imposé avant le début de la simulation.

5.2 Validation du modèle: Les températures

Comme indiqué au chapitre 2, la température est mesurée à intervalles réguliers à 10 points différents autour du réacteur. Pour alléger la validation des résultats, nous limitons la comparaison à deux températures:

- (i) la température de sortie du fluide refroidissant

 (ii) la température de la paroi du réacteur au centre du réacteur

5.2-1 Effet de la vitesse d'agitation sur les températures

La figure 31 présente les valeurs expérimentales et calculées pour la température du fluide refroidissant à la sortie du réacteur. Les paramètres de l'essai pour cette validation sont les suivants:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,4 kg/min

La figure 32 présente une seconde simulation pour la température du fluide refroidissant à une vitesse d'agitation plus élevée:

Vitesse de l'agitateur:	225 RPM
Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,4 kg/min

Dans les deux cas, la valeur expérimentale est légèrement plus élevée que la valeur prédite par le modèle. Dans le cas de l'essai à 225 RPM (figure 32), le métal liquide était brassé très vigoureusement ce qui a provoqué une excroissance non désirée du métal au haut du réacteur causant un arrêt prématuré de l'agitateur au temps $t=1400$ secondes tel qu'illustré à la figure 21 du chapitre 4.

Pour obtenir ces résultats, des modifications importantes ont dû être fait au modèle mathématique. En effet, lors des premières simulations, il y avait un écart important entre les valeurs expérimentales et celles du modèle. L'écart important entre les valeurs obtenues lors des premières simulations peut être expliqué par des considérations autant expérimentales que théoriques. Pour établir la méthode numérique de calcul pour le transfert de chaleur durant la solidification, une série d'hypothèses ont été posées. Ces hypothèses sont décrites en détails au chapitre 3 (section 3.2-1) de ce mémoire. Cependant, durant l'expérimentation, on a constaté deux

FIGURE 31: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE, AGITATION :
150 RPM (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)

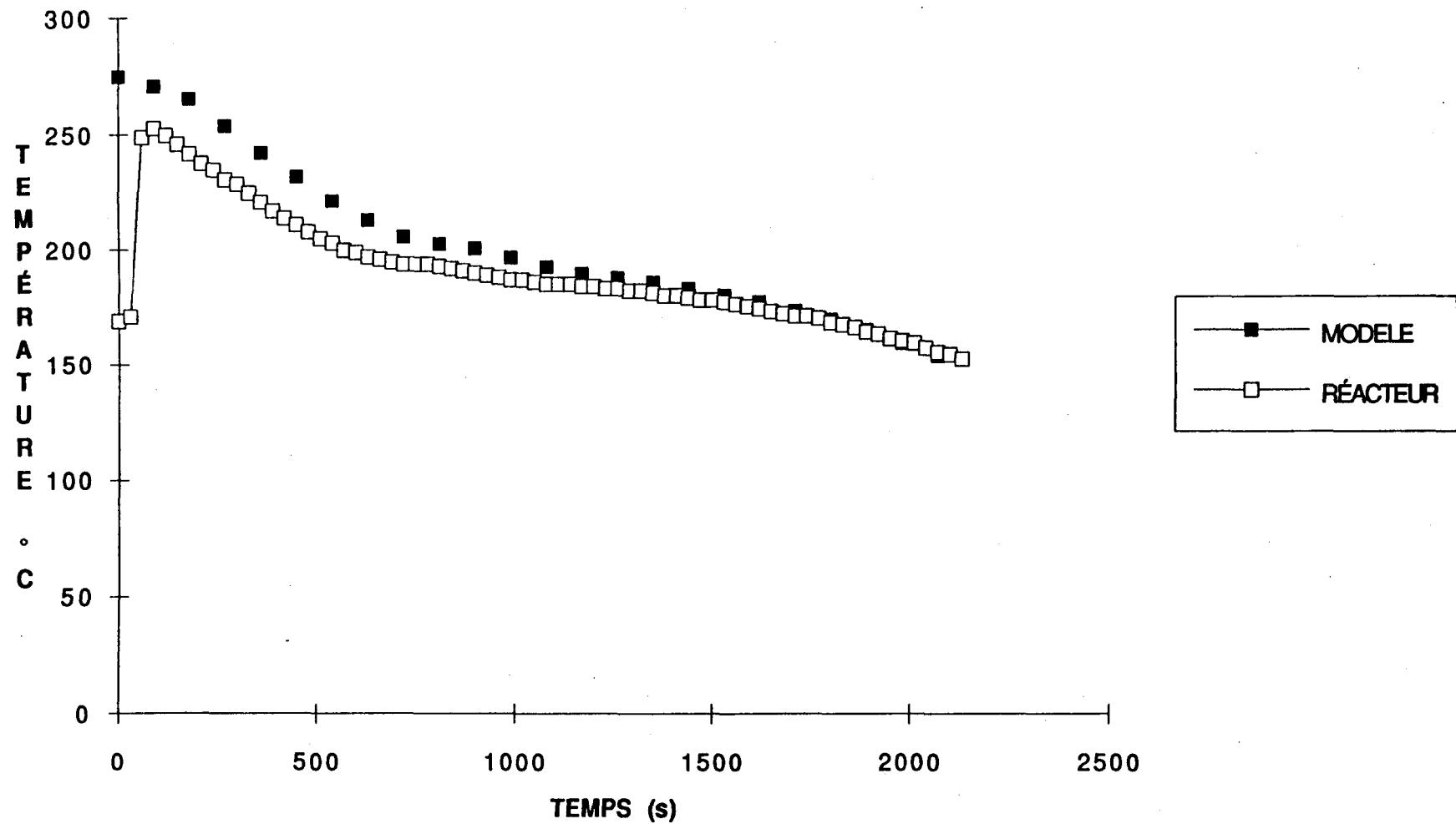
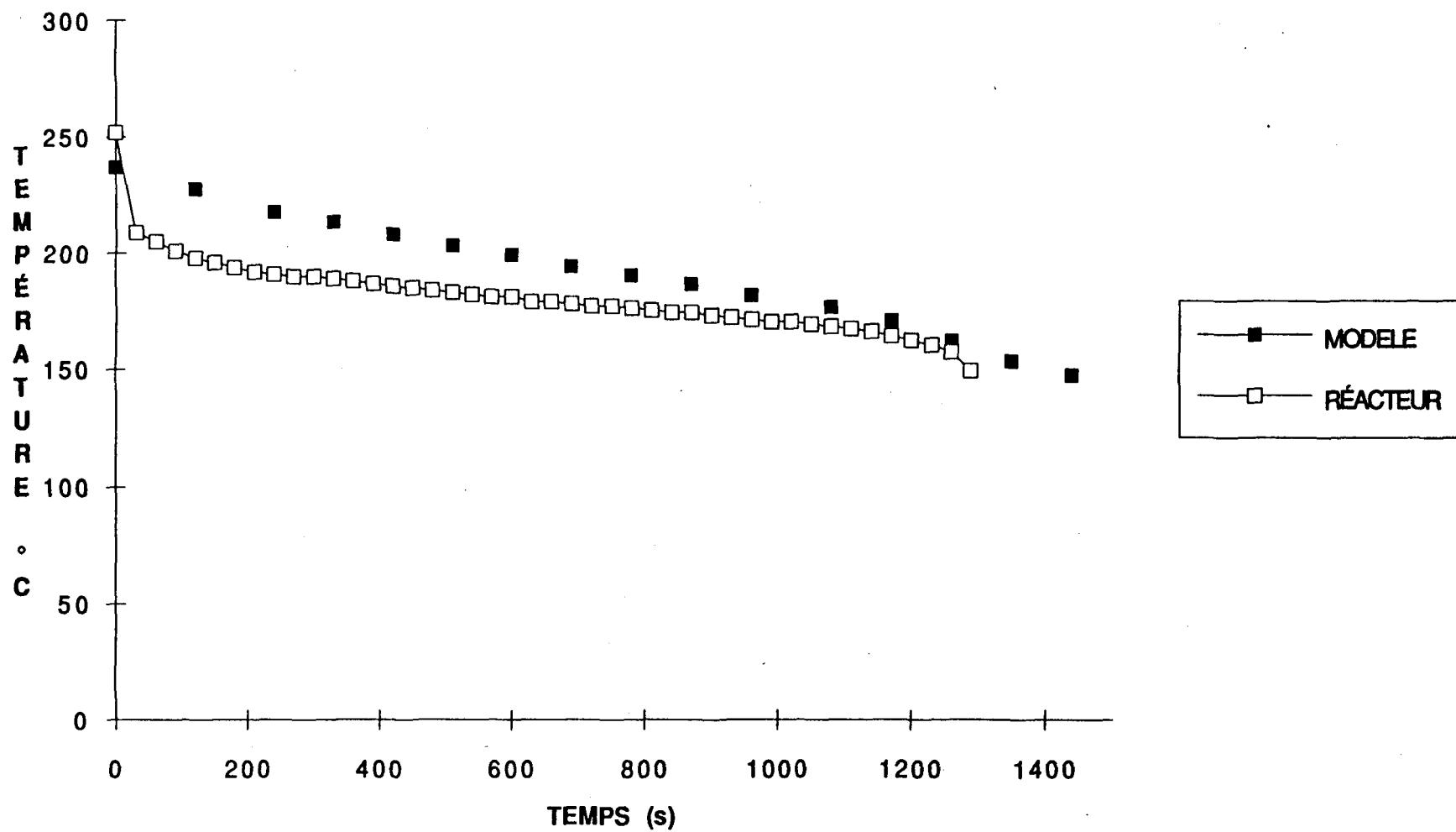


FIGURE 32: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE, AGITATION :
225 RPM (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)



Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

phénomènes qui diffèrent sensiblement des hypothèses de départ.

Premièrement, l'épaisseur du solide cristallisé ne se développait pas uniformément sur la surface refroidie du réacteur. L'agitation durant la cristallisation provoquait de fortes turbulences à l'intérieur du réacteur, ce qui a produit une forme irrégulière du solide cristallisé le long des murs du réacteur. La forme du solide cristallisé durant l'expérimentation peut être typiquement schématisée à la figure 33 ci-dessous.

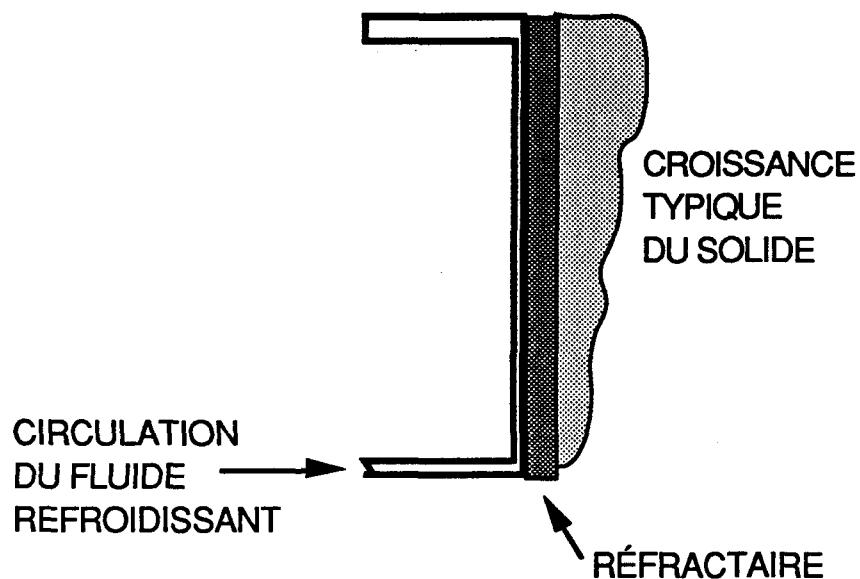


Figure 33: Croissance typique du solide cristallisé

Ce déplacement non-uniforme de la frontière de solidification cause des changements au transfert de chaleur entre le liquide et la zone de refroidissement. Ce comportement est difficilement détecté par le modèle ce qui peut expliquer une partie des écarts entre les valeurs expérimentales et celles obtenues du modèle.

La deuxième considération expérimentale qui diffère des hypothèses posées pour le modèle est le comportement du fluide refroidissant (air + eau) dans la zone de refroidissement. Pour le calcul de transfert de chaleur du modèle, on suppose qu'à une température supérieure à 100 °C, la totalité de l'eau injectée dans la chambre de refroidissement est évaporée. Des mesures prises durant

Chapire 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

l'expérimentation amènent à supposer qu'une partie de l'eau injectée ne s'est pas vaporisée même si la température moyenne mesurée à l'intérieur de la chambre de refroidissement est supérieure à 100 °C. En effet durant l'expérimentation, la température de la paroi extérieure a été mesurée inférieure à 100 °C en quelques occasions durant la cristallisation. Ainsi, il est possible qu'un film d'eau liquide se soit formé sur cette paroi durant la cristallisation. Ce phénomène est schématisé à la figure 34.

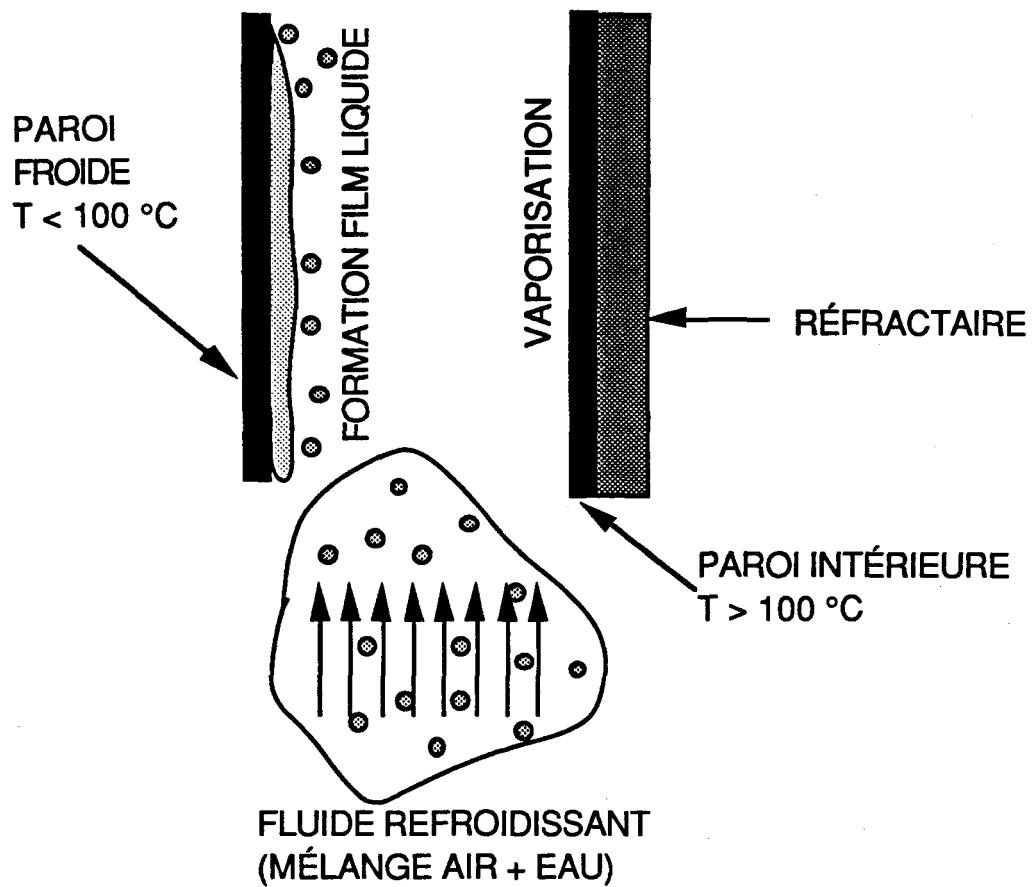


Figure 34: Schéma du comportement de l'eau dans la chambre de refroidissement

La présence d'une paroi où il y a une température élevée (évaporation complète de l'eau) et paroi plus froide (possibilité de formation d'un film d'eau) perturbe sensiblement le transfert de chaleur dans la chambre de refroidissement tel qu'expliqué par Nakayama et al. [37]. Pour un système de refroidissement air/eau, le transfert de chaleur est directement influencé par la température et donc par la phase de l'eau dans le mélange refroidissant. La figure 35 montre trois courbes

Chapire 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

représentant les relations typiques entre les coefficients de transfert de chaleur et la température dans le cas du refroidissement avec un mélange air/eau autour d'un tube.

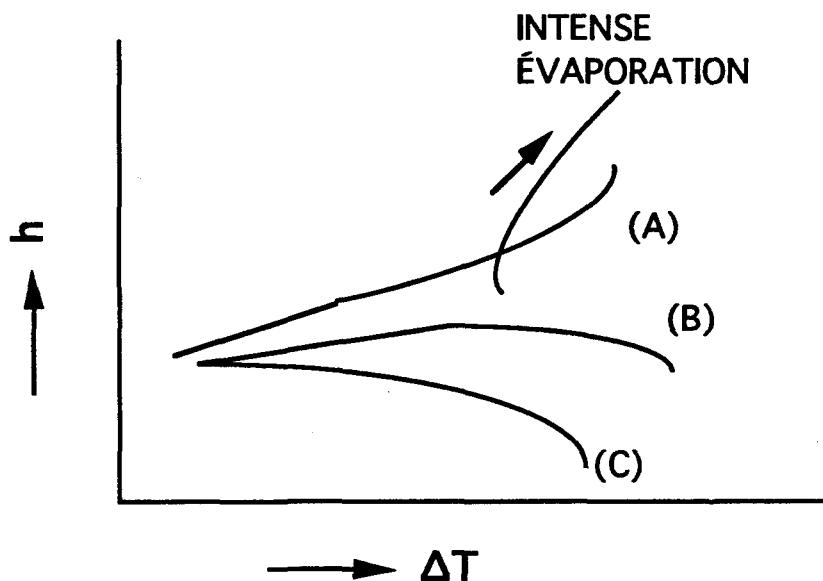


Figure 35: Courbes qualitatives montrant l'évolution des coefficients de transfert de chaleur pour le refroidissement de la surface d'un tube par un mélange air/eau.

Le ΔT représente la différence des températures de la paroi et du fluide refroidissant. La courbe (A) montre un cas où il y a un apport d'eau important à la surface. Le tube se mouille et une augmentation du ΔT conduit à une augmentation du coefficient de transfert de chaleur. En effet, lorsqu'il y a évaporation intensive d'eau à la surface, le coefficient de transfert de chaleur atteint les valeurs les plus élevées. La courbe (B) est le cas d'un apport modéré d'eau à la surface. Pour les petits ΔT , le coefficient de transfert de chaleur croît avec l'augmentation du ΔT dû à une évaporation plus importante. Dépassé un certain niveau de ΔT , la portion de la surface du tube devenant sèche s'accroît et le coefficient de transfert de chaleur commence à décroître. La courbe (C) est le cas d'un apport faible d'eau à la surface et donc d'une surface de transfert très sèche. Le coefficient de transfert de chaleur décroît avec l'augmentation du ΔT .

L'interprétation des figures 34 et 35 nous amène aux observations suivantes pour le transfert de chaleur dans la chambre de

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

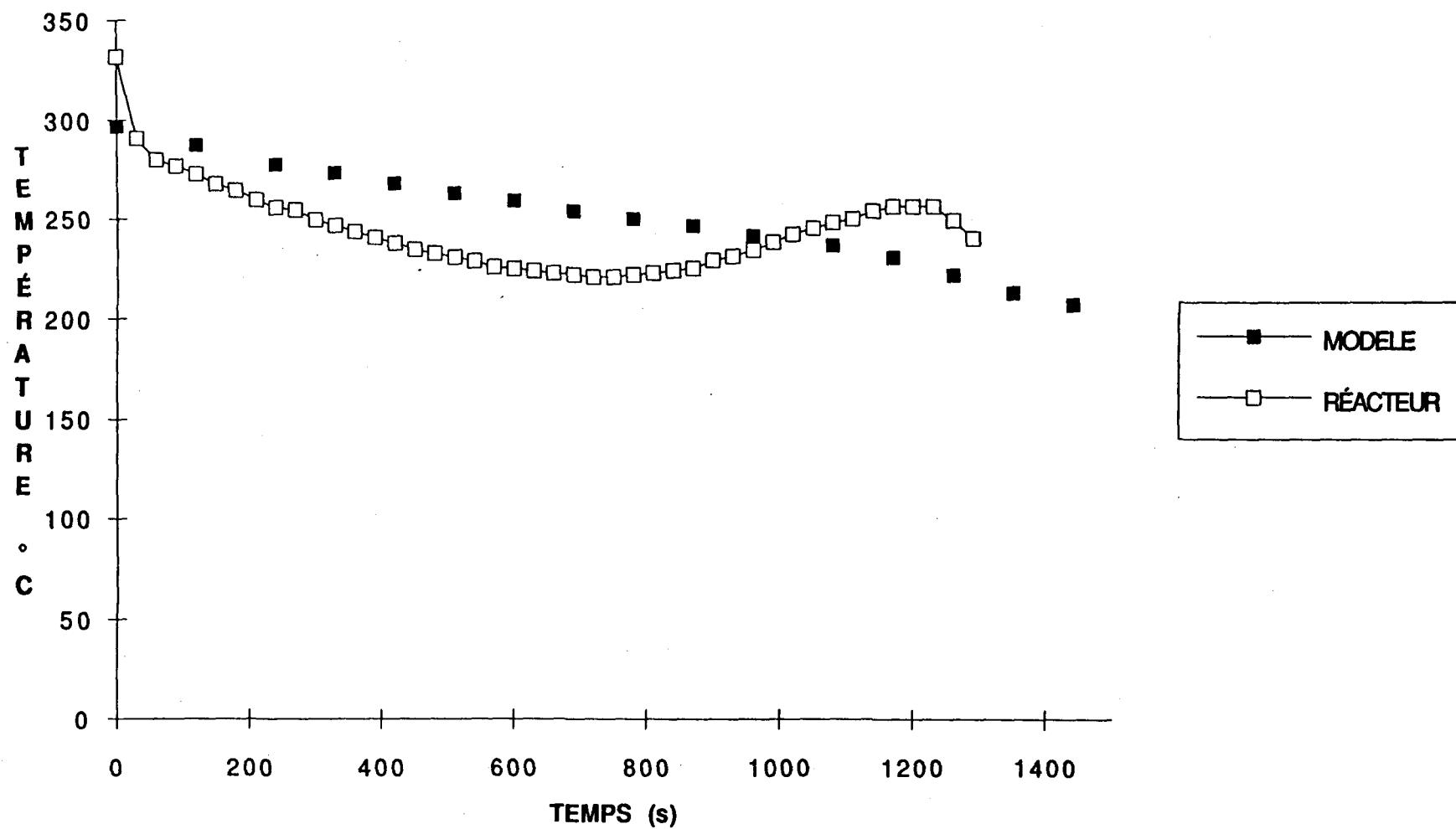
refroidissement du réacteur. Pour la surface intérieure, la courbe (C) est celle qui représente le mieux le coefficient de transfert de chaleur tandis que la courbe (A) représente le mieux le coefficient de transfert de chaleur pour la surface extérieur de la chambre de refroidissement.

Les valeurs de températures plus basses mesurées expérimentalement peuvent s'expliquer par une perte de chaleur à l'environnement plus importante que celle prévue par le modèle en raison des coefficients de transfert différents entre les parois externe et interne de la chambre de refroidissement.

Donc pour améliorer la validation du modèle aux valeurs obtenues expérimentalement, on a imposé lors du calcul du transfert de chaleur une perte de chaleur à l'extérieur du prototype par les parois de 15% supérieure à celle prédictes à l'aide des hypothèses de départ. L'examen des figures 31 et 32 révèle un léger écart entre les valeurs mesurées et expérimentales.

La figure 36 présente les courbes des températures mesurées et calculées dans la zone de refroidissement sur la surface intérieure de la paroi d'acier (position du thermocouple T-7, figure 17 chapitre 2) pour un essai à 225 RPM avec les mêmes conditions décrites plus haut. Ici aussi, les mêmes modifications expliquées plus haut ont été appliquées au modèle.

FIGURE 36: TEMPÉRATURE DE LA PAROI AU CENTRE, AGITATION = 225 RPM
(RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)



Chapire 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

5.2-2 Effet du débit d'air sur les températures

Pour étudier l'influence du débit d'air sur la solidification dans le réacteur, un débit d'eau constant de 0,3 kg/min est injecté en variant les débits d'air. La figure 37 présente les valeurs expérimentales et calculées par le modèle pour la température du fluide refroidissant à la sortie du réacteur en fonction du temps, le temps 0 seconde étant le début de la solidification. Les paramètres de l'essai étaient les suivants:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,3 kg/min

La figure 38 présente des résultats similaires avec un débit d'air différent:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'air:	5650 L/min
Débit de l'eau:	0,3 kg/min

Ici aussi, les mêmes modifications au modèle pour le calcul du transfert de chaleur appliquées lors de la validation pour la variation de la vitesse d'agitation ont été faites. Une augmentation du débit d'air amène une augmentation de la vitesse du mélange air/eau dans la chambre de refroidissement. L'augmentation de vitesse ne semble pas affecter la formation d'un film d'eau liquide sur la paroi externe de la chambre. Également, le changement du débit d'air n'a pas généré une croissance de solide plus uniforme sur les murs du réacteur.

La température de la paroi intérieure de la chambre de refroidissement au centre du réacteur est prise comme deuxième point de validation du modèle. La figure 39 trace l'évolution de cette

FIGURE 37: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE AVEC DÉBIT D'AIR = 4250 L/min. (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)

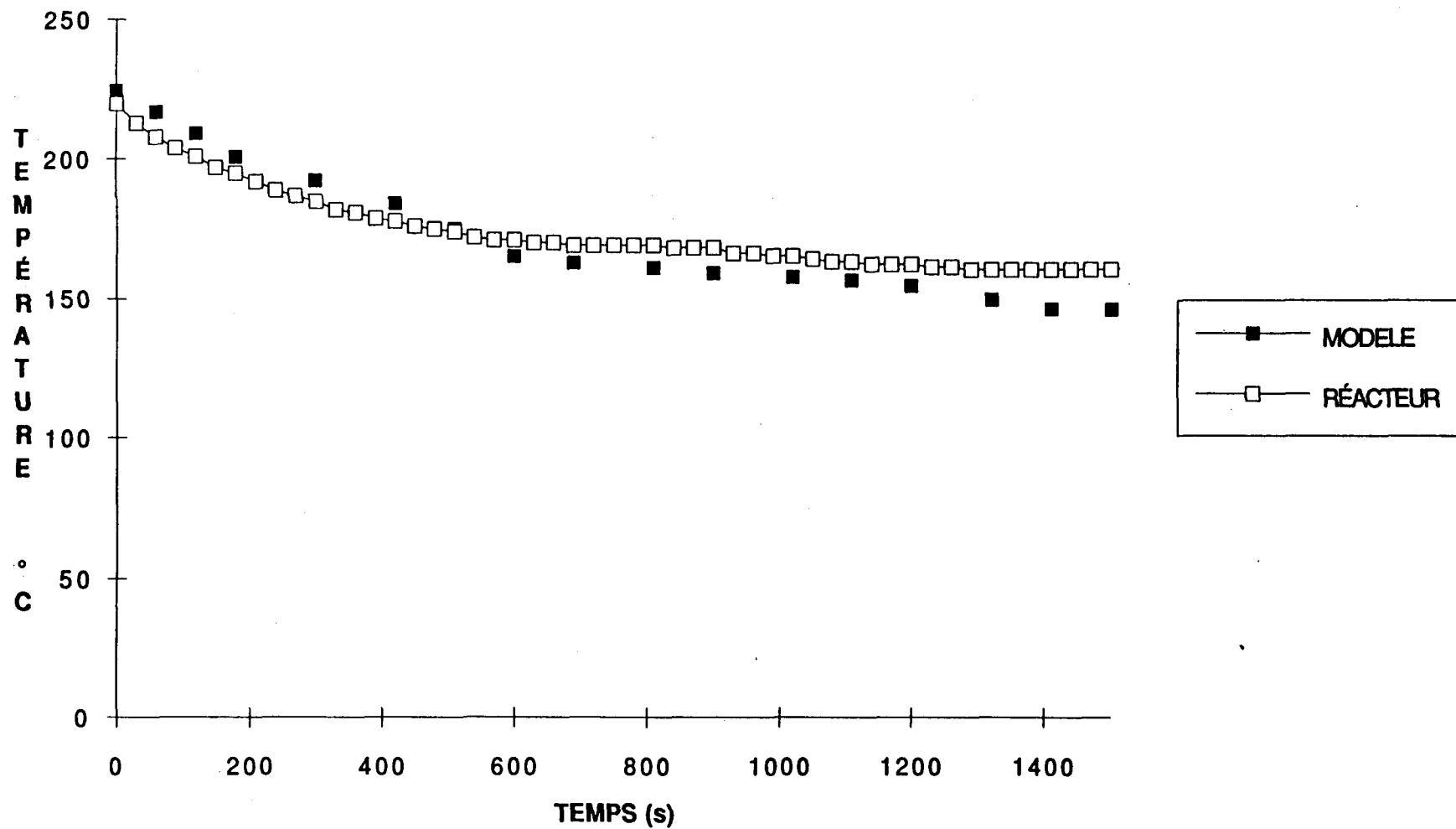


FIGURE 38: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE AVEC DÉBIT D'AIR = 5650 L/min. (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)

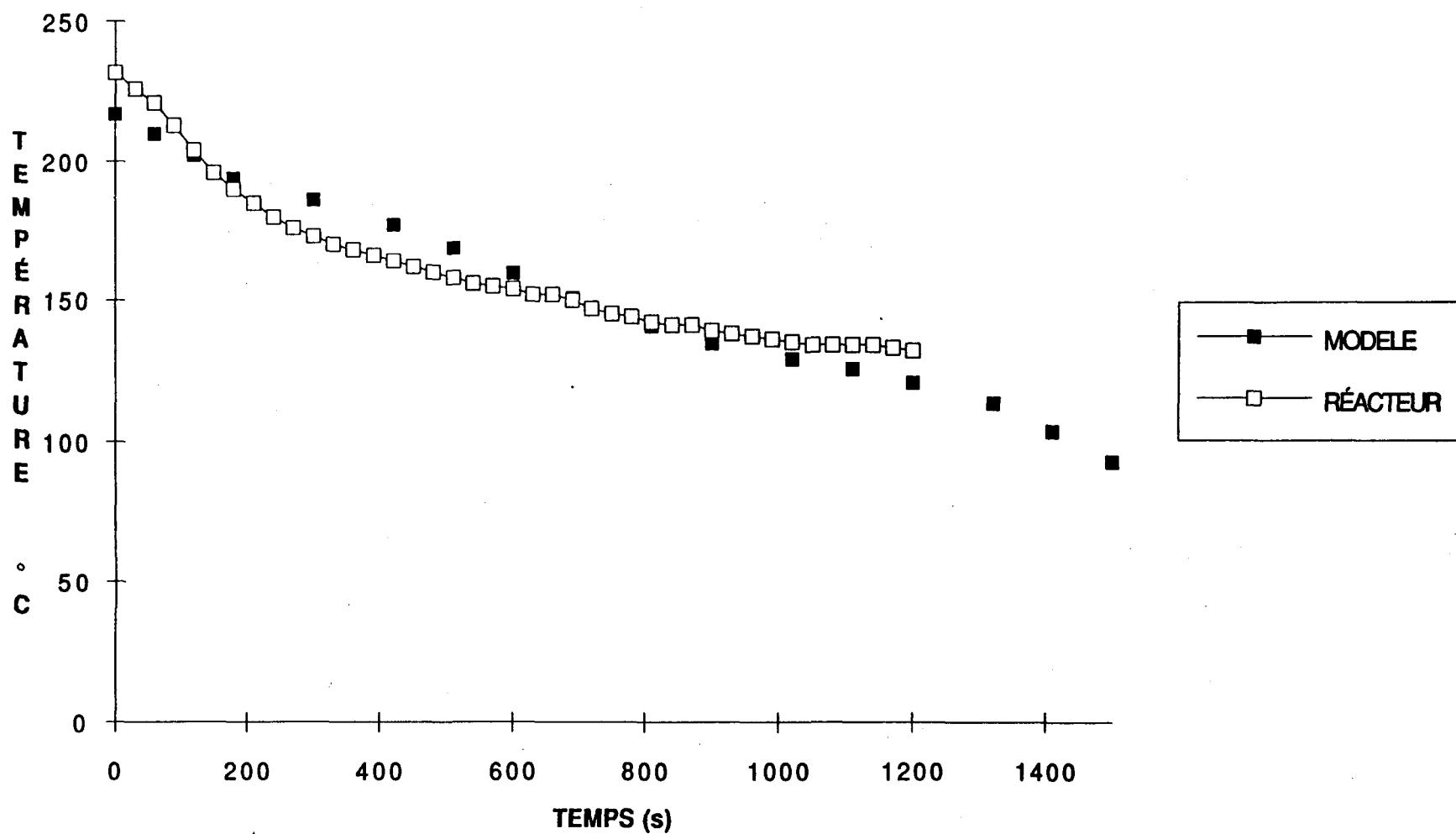
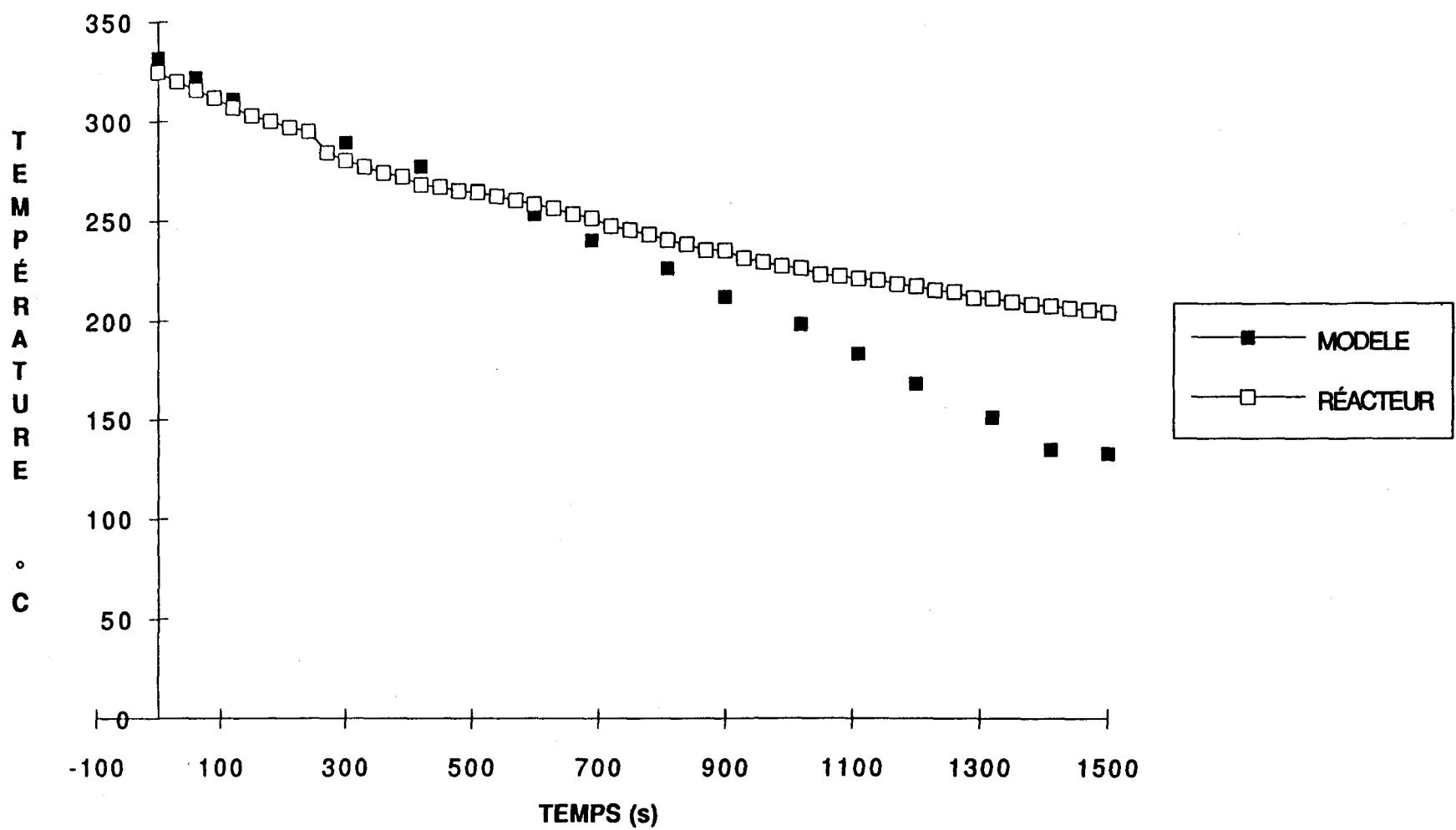


FIGURE 39: TEMPÉRATURE DE LA PAROI AU CENTRE AVEC DÉBIT D'AIR = 4250 L/min. (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)



température en fonction du temps pour l'essai avec un débit d'air de 4250 L/min. Pour la température de la paroi interne, les valeurs prédites par le modèle mathématique coïncident presque avec les mesures expérimentales jusqu'à un temps de solidification de 800 s, après quoi les courbes s'écartent.

5.2-3 Effet du débit d'eau sur les températures

Pour l'étude de l'influence du débit d'eau sur la solidification dans le réacteur, un débit d'air constant de 4250 L/min est injecté en variant les débits d'eau. L'eau possédant une chaleur massique supérieure à celle de l'air, un changement du débit devrait influencer le transfert de chaleur dans le réacteur d'une manière plus importante que le changement du débit d'air. Durant l'expérimentation, le débit d'eau a été varié de 0,2 à 0,6 kg/min dans le fluide refroidissant. Nous utiliserons donc les deux débits extrêmes pour la validation du modèle mathématique. La figure 40 présente les valeurs expérimentales et calculées par le modèle pour la température du fluide refroidissant à la sortie du réacteur en fonction du temps; le temps 0 seconde étant le début de la solidification. Les paramètres de l'essai étaient les suivants:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,2 kg/min

La figure 41 présente les résultats avec le débit d'eau le plus élevé:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,6 kg/min

Pour la figure 41, les valeurs expérimentales sont inférieures aux valeurs prédites par le modèle mathématique. Cependant, pour un débit d'eau élevé (0,6 kg/min), les valeurs du modèle et celles prises lors de l'essai se rapprochent. Dans le cas de l'essai à haut débit d'eau, le transfert de chaleur étant plus important dans le réacteur, la vitesse de solidification du solide à l'intérieur du réacteur fut plus

FIGURE 40: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE, DÉBIT D'EAU :
0,2 kg/min (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)

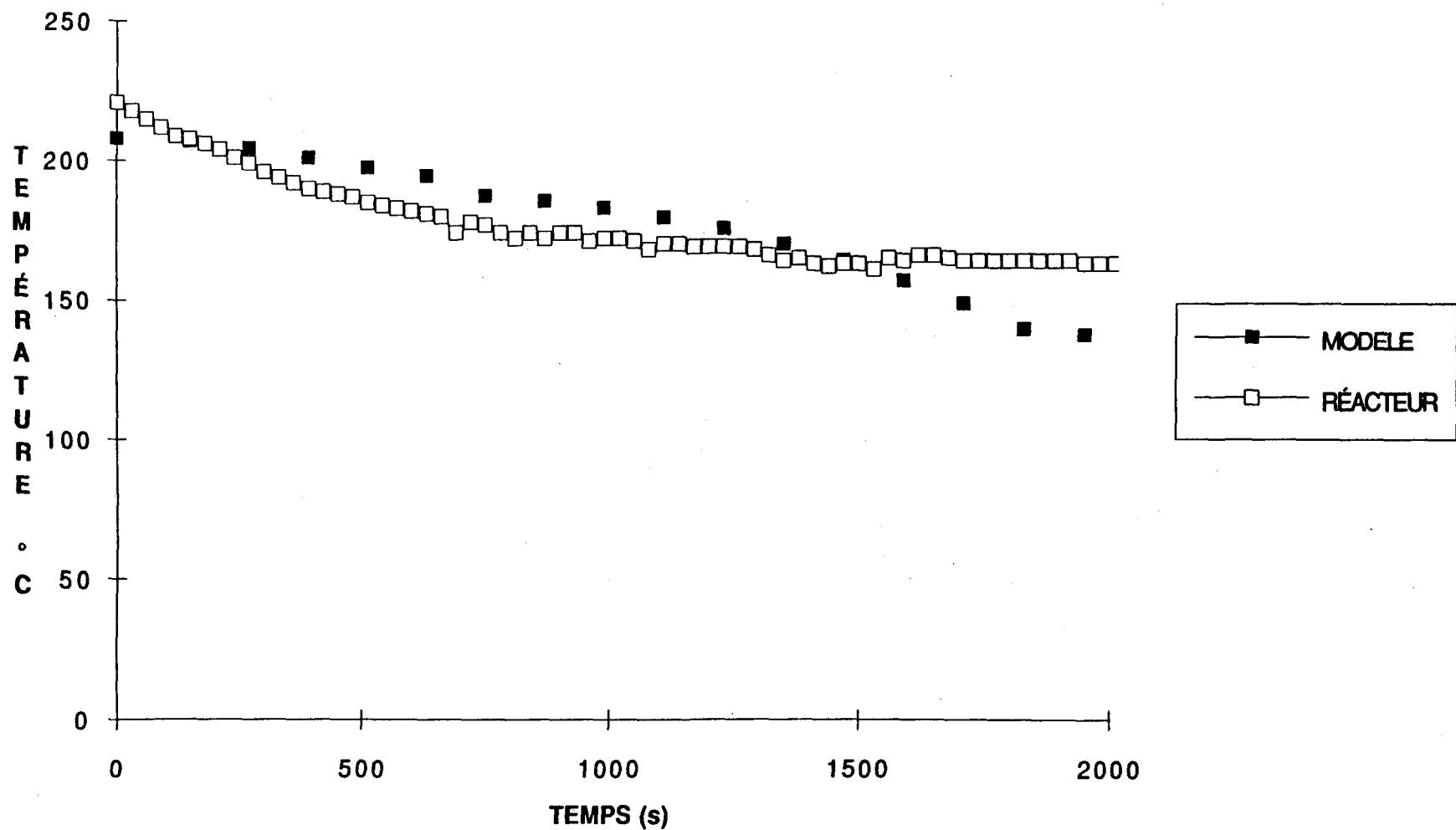
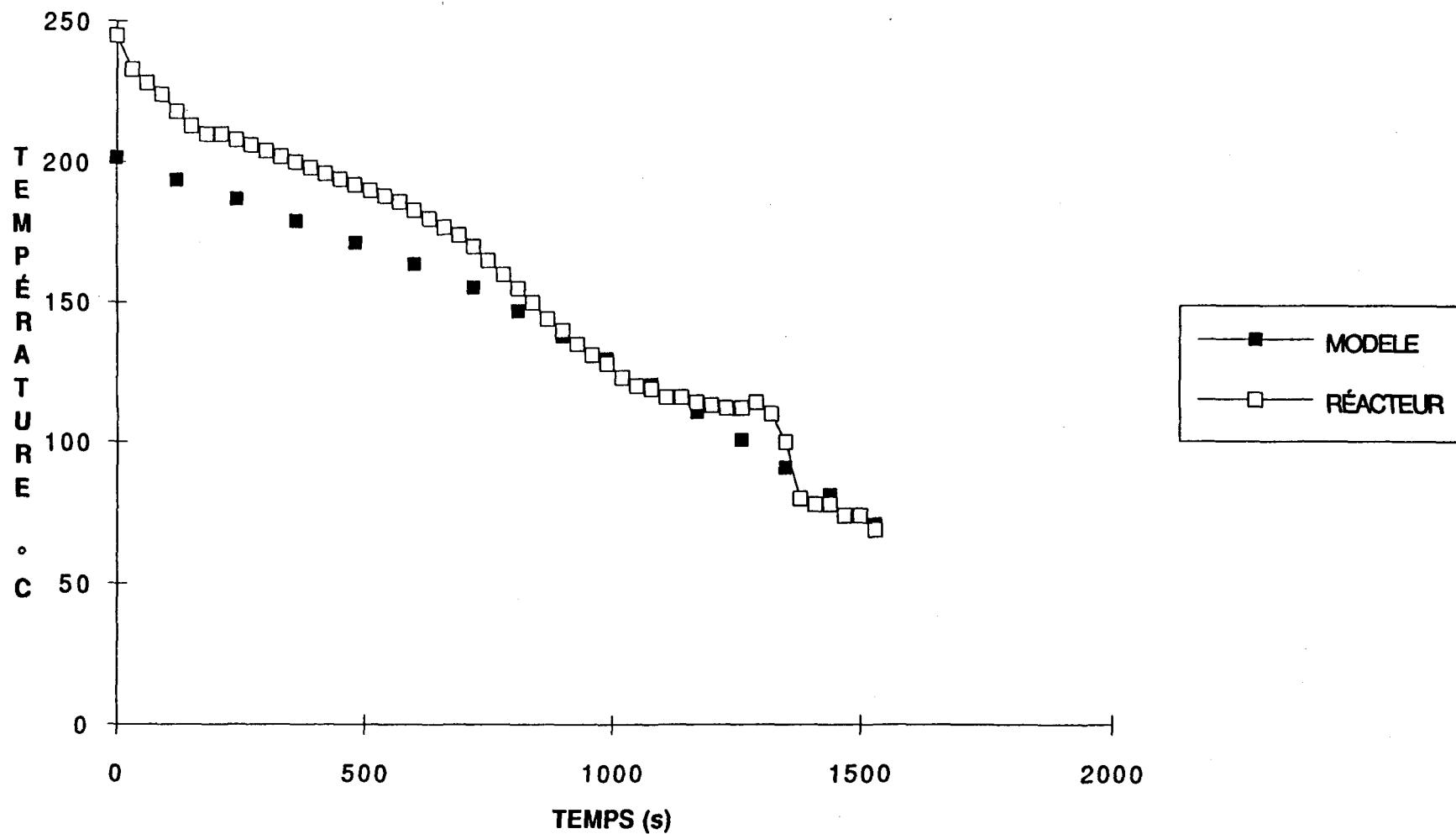


FIGURE 41: TEMPÉRATURE DU FLUIDE REFROIDISSANT A LA SORTIE, DÉBIT D'EAU :
0,6 kg/min (RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)

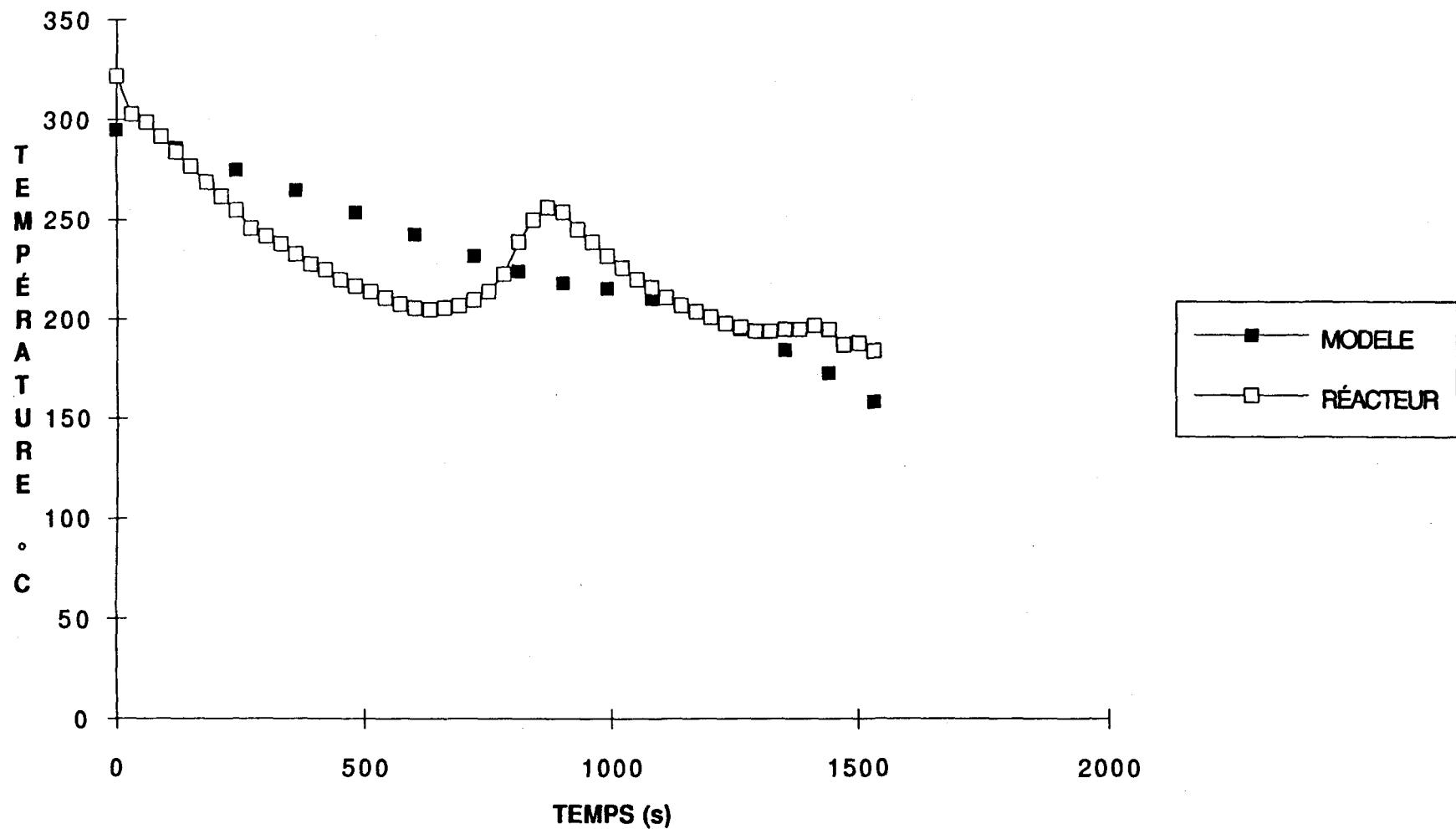


Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

rapide et l'essai a dû être arrêté au temps $t=1500$ secondes. En tenant compte de l'erreur expérimentale, ceci représente un écart tout à fait raisonnable. A un débit d'eau élevé, il y a une augmentation de la fraction de l'eau dans le fluide refroidissant. Cette augmentation amène plus de stabilité aux parois interne et externe dans la chambre de refroidissement (figure 34). S'il y a plus d'eau dans la chambre, on diminue les possibilités d'avoir un régime d'évaporation intensif sur la paroi externe (courbe A, figure 35). Les pertes de chaleur à l'environnement sont constantes, ce qui peut expliquer les pentes similaires entre les courbes des valeurs expérimentales et celles du modèle.

Pour ce qui est de la température de la paroi à l'intérieur de la chambre de refroidissement au centre du réacteur la figure 42 trace l'évolution de cette température en fonction du temps pour l'essai avec un débit d'eau de 0,6 kg/min. Ici, les valeurs prédictes par le modèle mathématique sont très près des valeurs mesurées lors de l'expérimentation. Les diverses variations de température mesurées durant l'expérimentation peuvent s'expliquer par des variations du débit d'eau ou du débit d'air. Un système de régulation plus efficace des débits du fluide refroidissant qui alimentent le réacteur aurait limité ces variations durant l'expérimentation.

FIGURE 42: TEMPÉRATURE DE LA PAROI AU CENTRE, DÉBIT D'EAU = 0,6 kg/mi
(RÉSULTATS DU MODELE vs RÉACTEUR)



5.3 Validation du modèle: Concentration des impuretés dans le solide cristallisé

Les résultats expérimentaux de la concentration des impuretés majeures (fer, silicium, titane et vanadium) sont détaillés au chapitre 4 en fonction des variations des divers paramètres expérimentaux tels que la vitesse d'agitation, le débit d'air et le débit d'eau. A partir d'une connaissance des coefficients de distribution à l'équilibre de chacun de ces éléments ainsi que des vitesses de solidification telles que déduites du calcul du transfert thermique, le modèle mathématique permet d'estimer les coefficients de distribution effectifs pour les impuretés étudiées et donc de déduire les concentrations de chacun de ces éléments dans le solide purifié.

Contrairement à la section précédente où une comparaison des résultats du modèle avec des mesures en continu des températures était possible, les résultats reliés aux concentrations des impuretés ne se prêtent pas à une telle analyse puisque les mesures expérimentales des concentrations ne sont pas disponibles en fonction du temps. Les concentrations des impuretés ont été obtenues par analyse spectrographique sur des échantillons pris à différents endroits dans le solide cristallisé. Pour la validation du modèle, il est difficile d'associer ces résultats aux données générées par le modèle pour différentes cellules de calcul. On utilisera donc les concentrations moyennes pour chaque impureté à travers le solide purifié que l'on comparera aux concentrations moyennes prédites par le modèle.

Pour la prédiction des concentrations des impuretés dans le solide cristallisé, le modèle mathématique utilise les relations de transfert de masse telles que détaillées aux chapitres 1 et 3. Essentiellement l'équation (14) permet de déterminer le coefficient de distribution effectif K_e de l'impureté et génère par la suite les concentrations dans le solide. La détermination du coefficient K_e tient compte du coefficient de distribution à l'équilibre K_0 , des propriétés physiques des impuretés et du liquide, et des conditions de solidification (agitation, vitesse de solidification). Les valeurs des concentrations des impuretés dans le solide sont ensuite calculées à partir de K_e et

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

de la concentration de l'impureté dans le liquide. Une bonne validation du modèle doit donc passer par une prédiction adéquate du coefficient de distribution effectif K_e .

Les éléments fer et silicium, ayant les concentrations les plus élevées, sont choisis pour la validation du modèle. Comme expliqué précédemment dans le cas des impuretés eutectiques, la valeur de K_e peut être comprise entre K_0 et l'unité:

$$K_0 < K_e < 1$$

Dans le cas du fer et du silicium, les valeurs de K_0 sont les suivantes:

$$\begin{aligned} K_0(\text{fer}) &= 0,024 \\ K_0(\text{silicium}) &= 0,13 \end{aligned}$$

5.3-1 Effet de la vitesse d'agitation sur la concentration des impuretés

La vitesse d'agitation a été variée en gardant constants les paramètres suivants:

Débit de l'air:	4250 L/min
Débit de l'eau:	0,4 kg/min
Température du métal liquide:	660 °C

Le tableau 4 donne les résultats des coefficients de distribution effectifs expérimentaux et prédits pour les impuretés fer et silicium en fonction de trois vitesses d'agitation utilisées durant les essais. Les détails concernant les concentrations des impuretés dans le liquide et dans le solide cristallisé sont présentés au chapitre 4.

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

VITESSE AGITATEUR	COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE FER		COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE SILICIUM		
	RPM	EXPÉRIMENTAL	MODELE	EXPÉRIMENTAL	MODELE
150	0,28	0,067	0,35	0,31	
175	0,35	0,049	0,41	0,24	
225	0,24	0,041	0,34	0,21	

Tableau 4: Coefficients de distribution effectifs pour le fer et le silicium en fonction de la variation de la vitesse d'agitation

L'examen du tableau 4 montre que les prédictions du modèle dans le cas du silicium se rapprochent des valeurs obtenues lors de l'expérimentation. Les K_e prédits par le modèle se situent systématiquement entre le coefficient K_0 et les valeurs expérimentales. De plus, conformément à la théorie, les valeurs K_e du modèle se rapprochent de la valeur K_0 lorsqu'il y a augmentation de la vitesse d'agitation. Une meilleure dispersion des impuretés accumulées à l'interface se produit lorsqu'il y a une forte agitation, ce qui amène moins de piégeage d'impuretés dans le solide et des valeurs de K_e se rapprochant de la valeur à l'équilibre. Les valeurs expérimentales montrent cette tendance pour les vitesses d'agitation à 150 et 225 RPM. Cependant les valeurs obtenues à une vitesse d'agitation de 175 RPM vont à l'encontre de la théorie. L'agitation du métal liquide dans le réacteur provoquait une forte turbulence à l'interface liquide-solide. Les résultats présentés au tableau 4 semblent indiquer un piégeage des impuretés de fer et de silicium entre les dentrites à une vitesse d'agitation de 175 RPM.

Dans le cas des coefficients de distribution pour le fer, il y a un écart important entre les valeurs mesurées expérimentalement et celles prédites par le modèle. Les valeurs du modèle sont beaucoup plus proches des valeurs à l'équilibre K_0 que des valeurs expérimentales. L'écart peut être expliqué. Selon le diagramme de phases fer-aluminium, le coefficient de distribution à l'équilibre K_0 est très bas. Considérant que la concentration de fer dans le métal liquide de départ est élevée, on assiste à un rejet important et rapide

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

d'impuretés de fer à l'interface solide-liquide à la frontière de solidification. Afin d'empêcher le piégeage de ces impuretés dans le solide cristallisé, on doit être en présence de conditions de cristallisation bien contrôlées telles qu'une agitation efficace et un avancement uniforme de la frontière de solidification (voir chapitre 1). Lors de l'expérimentation, l'agitation générait des instabilités dans le réacteur qui se sont traduites par un avancement non-uniforme de la frontière de solidification et par conséquent un piégeage d'impuretés dans le solide cristallisé. De plus, c'est dans le cas du fer que les risques de contamination de l'aluminium sont les plus probables lors de l'expérimentation par utilisation d'outils d'acier pour l'échantillonnage et l'écumage du métal.

5.3-2 Effet du débit d'air sur la concentration des impuretés dans le solide cristallisé

Pour étudier l'influence du débit d'air sur la solidification dans le réacteur, un débit d'eau constant de 0,3 kg/min a été injecté en variant les débits d'air. Les paramètres de l'essai étaient les suivants:

Vitesse de l'agitateur:	150 RPM
Débit de l'eau:	0,3 kg/min
Température du métal liquide:	660 °C

Le tableau 5 donne les résultats des coefficients de distribution effectifs expérimentaux et prédictifs pour les impuretés fer et silicium en fonction des trois débits d'air étudiés. Les détails concernant les concentrations des impuretés dans le liquide et dans le solide cristallisé sont présentés au chapitre 4.

DÉBIT D'AIR Litres/minute	COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE FER		COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE SILICIUM	
	EXPÉRIMENTAL	MODELE	EXPÉRIMENTAL	MODELE
2800	0,36	0,042	0,42	0,19
4250	0,39	0,054	0,49	0,25
5650	0,28	0,067	0,35	0,31

Tableau 5: Coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium en fonction de la variation du débit d'air

Comme dans le cas de l'étude de la variation de la vitesse d'agitation, le modèle prédit des valeurs du coefficient de distribution effectif beaucoup plus basses que les valeurs mesurées expérimentalement. La formulation des équations de transfert de masse suppose un état proche de l'équilibre à la frontière solide-liquide. Cependant, il semble que les conditions d'opération appliquées durant les essais aient perturbé cet équilibre à la frontière de solidification. Dans ce cas aussi, les valeurs calculées par le modèle sont plus représentatives dans le cas du silicium que pour le fer.

Théoriquement, une augmentation de débit d'air amène un taux de solidification plus élevé ce qui devrait générer un piégeage plus important des impuretés dans le solide. Les valeurs prédites par le modèle indiquent un degré de purification meilleur pour le débit d'air le plus faible. Par ailleurs, les valeurs expérimentales montrent que le degré de purification ne s'améliore pas significativement avec une diminution du débit d'air. L'avancement non-uniforme de la frontière de solidification et les turbulences lors du brassage du métal liquide dans le réacteur ont provoqué une contamination non désirée du solide cristallisé.

5.3-3 Effet du débit d'eau sur la concentration des impuretés dans le solide cristallisé

Pour étudier l'influence du débit d'air sur la solidification dans le réacteur, un débit d'air constant de 4250 L/min a été injecté en

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle variant les débits d'eau. Les paramètres de l'essai étaient les suivants:

Vitesse de l'agitateur: 150 RPM
 Débit de l'air: 4250 L/min
 Température du métal liquide: 660 °C

Le tableau 6 donne les résultats des coefficients de distribution effectifs expérimentaux et prédis pour les impuretés fer et silicium. Les détails concernants les concentrations des impuretés dans le liquide et dans le solide cristallisé sont donnés au chapitre 4.

DÉBIT D'EAU kg/minute	COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE FER		COEFF. DE DISTRIBUTION EFFECTIF POUR LE SILICIUM	
	EXPÉRIMENTAL	MODELE	EXPÉRIMENTAL	MODELE
0,2	0,26	0,03	0,34	0,14
0,3	0,39	0,048	0,49	0,22
0,4	0,28	0,067	0,35	0,31
0,6	0,44	0,097	0,48	0,45

Tableau 6: Coefficients de distribution effectif pour le fer et le silicium en fonction de la variation du débit d'eau

L'examen des données du tableau 6 montre les mêmes écarts entre les valeurs expérimentales et prédictives que ceux observés précédemment pour les variations de la vitesse d'agitation et du débit d'air. Comme discuté dans la section portant sur le transfert de chaleur, une variation du débit d'eau amène un changement sensible de la vitesse de solidification dans le réacteur. Plus le débit est élevé, plus la vitesse de solidification est rapide et plus le piégeage des impuretés est favorisé. Les valeurs prédictives par le modèle concordent bien avec la théorie et montrent un degré de purification supérieur à de petits débits d'eau. Les valeurs expérimentales montrent aussi cette tendance sauf pour l'essai fait à un débit d'eau de 0,3 kg/min. Ici aussi, les valeurs prédictives sont près des valeurs expérimentales pour le silicium.

Chapitre 5: Comparaison des résultats expérimentaux à ceux du modèle

D'une manière générale, le modèle mathématique prédit avec peu de précision le transfert de masse. Dans le cas du fer, il y a un écart encore plus important entre les valeurs mesurées expérimentalement et celles prédites par le modèle. Les valeurs du modèle sont beaucoup plus proches des valeurs à l'équilibre K_0 que des valeurs expérimentales. Le transfert de masse dans le cas de la solidification est un phénomène très complexe et difficile à modéliser. De toute évidence, l'approche utilisée ne permet pas de simuler adéquatement le transfert de masse pour le réacteur expérimental.

Le modèle pour le transfert de masse est calculé en assumant que la viscosité du liquide varie seulement avec la température (Appendice A). Cependant, il est fort probable que le rejet des impuretés à l'interface solide-liquide est un effet important sur la viscosité du liquide dans cette zone. Une erreur importante de la viscosité du liquide pourrait amené un écart pouvant varier de 10 à 50% lors du calcul du coefficient de distribution effectif K_e . Une étude plus approfondie des propriétés du liquide à l'interface solide-liquide devrait améliorer la modélisation du transfert de masse.

Également, dans le modèle mathématique, on suppose un avancement uniforme de la frontière de solidification dans le réacteur et aussi une agitation uniforme le long de cette même frontière. Lors de l'expérimentation, on a observé que la frontière de solidification n'était pas uniforme autour des murs du réacteur et qu'une forte turbulence était créée lors de l'agitation. Ceci amène une déstabilisation de l'interface solide-liquide et un piégeage important des impuretés entre les dendrites lors de la solidification du cristal. Ce piégeage des impuretés donne des concentrations de fer beaucoup plus importantes dans le solide que celle prédite par la théorie et le modèle mathématique.

Conclusion

Un réacteur expérimental a été construit et permet, par cristallisation fractionnée, de purifier de l'aluminium à partir d'un mélange de départ de pureté commerciale. Un modèle mathématique a été développé et simule les transferts de chaleur et de masse pour le réacteur expérimental.

Une série d'essais a été faite où la vitesse d'agitation et les débits du fluide refroidissant (air et eau) ont été variés. La validation du modèle mathématique a été faite suivant la variation de ces mêmes paramètres.

Les résultats expérimentaux montrent que la pureté du métal passe de 99,7% à 99,92% où les impuretés eutectiques telles que le fer (de 0,14% à 0,035%) et le silicium (0,05% à 0,016%) sont rejetées du solide cristallisé tandis que les impuretés péritectiques telles que le titane (0,004% à 0,01%) et le vanadium (de 0,009% à 0,02%) sont concentrées. Les meilleures efficacités de purification ont été obtenues à une vitesse d'agitation élevée (225 RPM) à un débit d'air de 5650 L/min et un débit d'eau de 0,4 kg/min.

Pour la simulation du transfert de chaleur, le modèle valide les résultats pour les températures de la paroi interne du réacteur et pour les températures du fluide refroidissant à la sortie du réacteur. Des modifications au modèle ont été nécessaires pour mieux valider le modèle en surestimant les pertes à l'extérieur de 15%.

Pour le transfert de masse, l'approche utilisée ne permet pas de valider le modèle mathématique principalement pour les concentrations du fer. La force de l'agitation ne semble pas suffisante pour disperser plus efficacement le rejet important et rapide des impuretés de fer à la frontière de solidification. Une étude plus approfondie des propriétés de l'aluminium liquide à l'interface solide-liquide devrait améliorer la validation du transfert de masse.

Les résultats de cette étude montrent des efficacités de purification intéressantes. Il est recommandé pour une étape future d'avoir un prototype pouvant opérer à des vitesses d'agitation supérieures tout en réduisant les turbulences à la surface du métal qui ont limité, dans la majorité des essais, le temps de solidification. A une vitesse d'agitation plus élevée, l'efficacité de séparation des impuretés de fer devrait être supérieure.

APPENDICE A

PROPRIÉTÉS THERMIQUES DE L'ALUMINIUM

La diffusivité thermique: *Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$\alpha(T) = -3.69 \times 10^{-7} T^2 - 4.26 \times 10^{-4} T + 1.11 \quad (\text{cm}^2/\text{sec})$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K:

$$\alpha(T) = -4.66 \times 10^{-7} T^2 + 2.62 \times 10^{-4} T + 0.148 \quad (\text{cm}^2/\text{sec})$$

* Y.S. Touloukian, Thermal Diffusivity, (1973), page 2.

La masse volumique:Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$\rho(T) = -2.19 \times 10^{-7} T^2 + 0.104 T + 2666 \quad (\text{kg/m}^3)$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K: *

$$\rho(T) = -0.3935 T + 2756.8 \quad (\text{kg/m}^3)$$

* Coy, W.J. et Mateer, R.S., Trans. A.S.M., 58, (1965), 99-102

La chaleur massique: *Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$C(T) = 0.459 T + 767 \quad (\text{J/kg K})$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K:

$$C(T) = 1.09 \times 10^3 \quad (\text{J/kg K})$$

* A.J. Moses, The Practicing Scientist's Handbook, (1978), 204-205.

La conductibilité thermique: *Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$k(T) = -8.65 \times 10^{-7} T^2 + 6.26 \times 10^{-4} T + 2.26 \quad (\text{W/cm K})$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K:

$$k(T) = -1.23 \times 10^{-7} T^2 + 5.89 \times 10^{-4} T + 0.465 \quad (\text{W/cm K})$$

La chaleur latente de fusion:

$$L = 2.57 \text{ kcal/mole} = 3.99 \times 10^6 \text{ J/kg}$$

L'enthalpie volumique:Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$H(T) = -0.04 T^3 + 652 T^2 + 2.04 \times 10^6 T - 2.44 \times 10^9 \quad (\text{J/m}^3)$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K:

$$H(T) = -214 T^2 + 3.00 \times 10^6 T - 2.61 \times 10^9 + \rho L \quad (\text{J/m}^3)$$

Pour $H < 0$ J/m³:

$$T(H) = 2.77 \times 10^{-27} H^3 - 2.01 \times 10^{-17} H^2 + 3.13 \times 10^{-7} H + 933 \quad (\text{K})$$

Pour $H < \rho L = 9.535 \times 10^6$ J/m³:

$$T(H) = 2.345 \times 10^{-27} H^3 + 2.563 \times 10^{-18} H^2 + 3.744 \times 10^{-7} H + 571.7 \quad (\text{K})$$

Pour $0 < H < 9.535 \times 10^6$ J/m³:

$$T(H) = 933.2 \quad (\text{K})$$

$$H(T) = \int_{933.2}^T \rho C dT \quad T < 933.2 \text{ K}$$

$$H(T) = \int_{933.2}^T \rho C dT + \rho L \quad T < 933.2 \text{ K}$$

* U.S. Touloukian, Thermal conductivity: Metallic Elements and Alloys, (1970) page 9.

La transformée de Kirchoff:

Pour $250 < T < 933.2$ K:

$$\theta(T) = -2.88 \times 10^{-5} T^3 + 3.13 \times 10^{-2} T^2 + 226 T - 2.15 \times 10^6 \quad (\text{W/m})$$

Pour $933.2 < T < 1500$ K:

$$\theta(T) = -4.10 \times 10^{-6} T^3 + 2.95 \times 10^{-2} T^2 + 46.5 T - 6.57 \times 10^6 \quad (\text{W/m})$$

T

$$\theta(T) = \int_{933.2}^T k \, dT$$

La viscosité absolue:

La viscosité de l'aluminium est de 2.9 centipoises à 700°C et de 1.4 centipoises à 800°C .

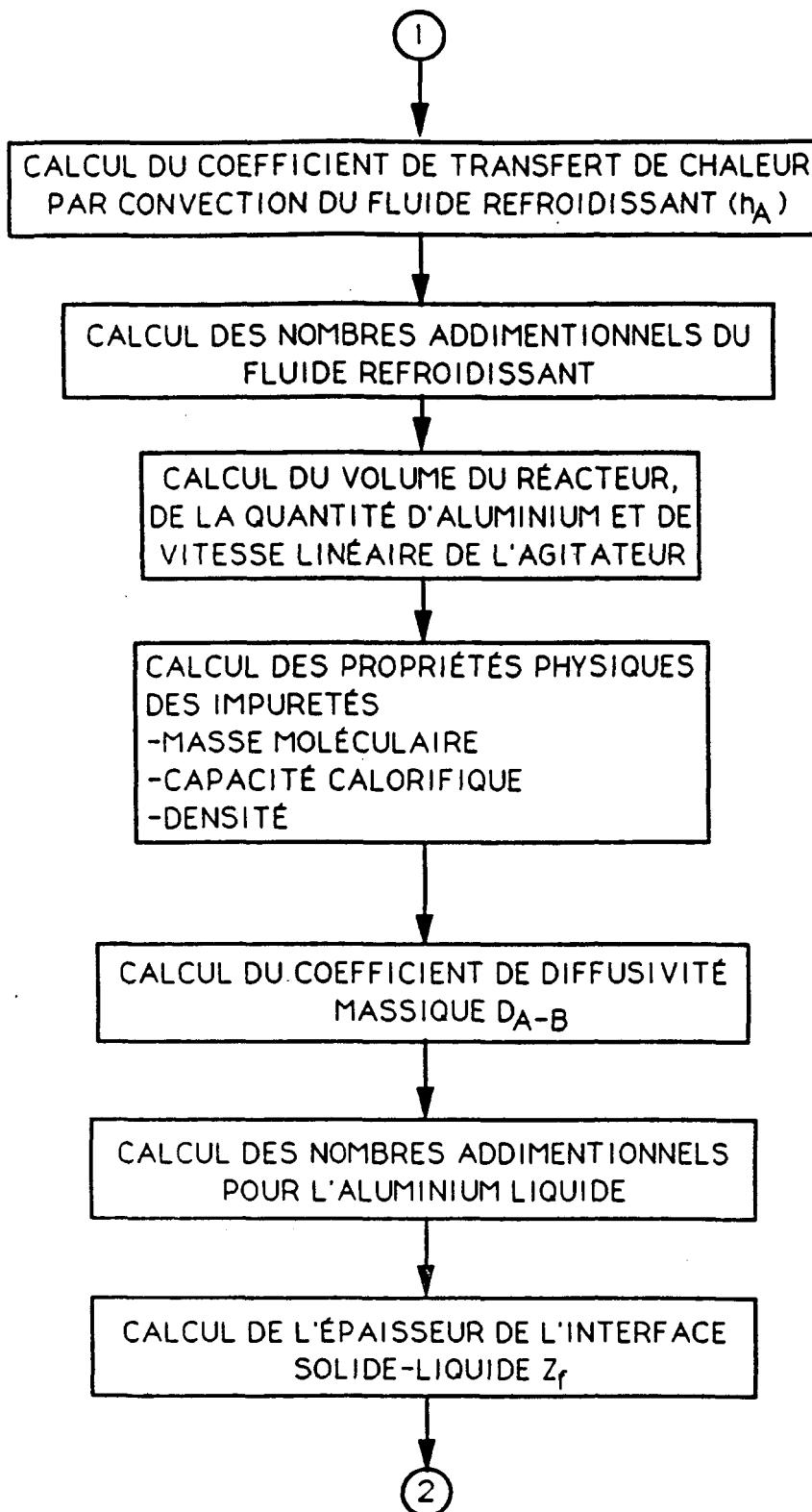
$$\mu(T) = -9.43 \times 10^{-11} (T-900)^3 + 9.53 \times 10^{-4} (T-900)^2 + -3.47 \times 10^{-2} (T-900) + 5.06 \times 10^{-3} \quad (\text{Pa-sec})$$

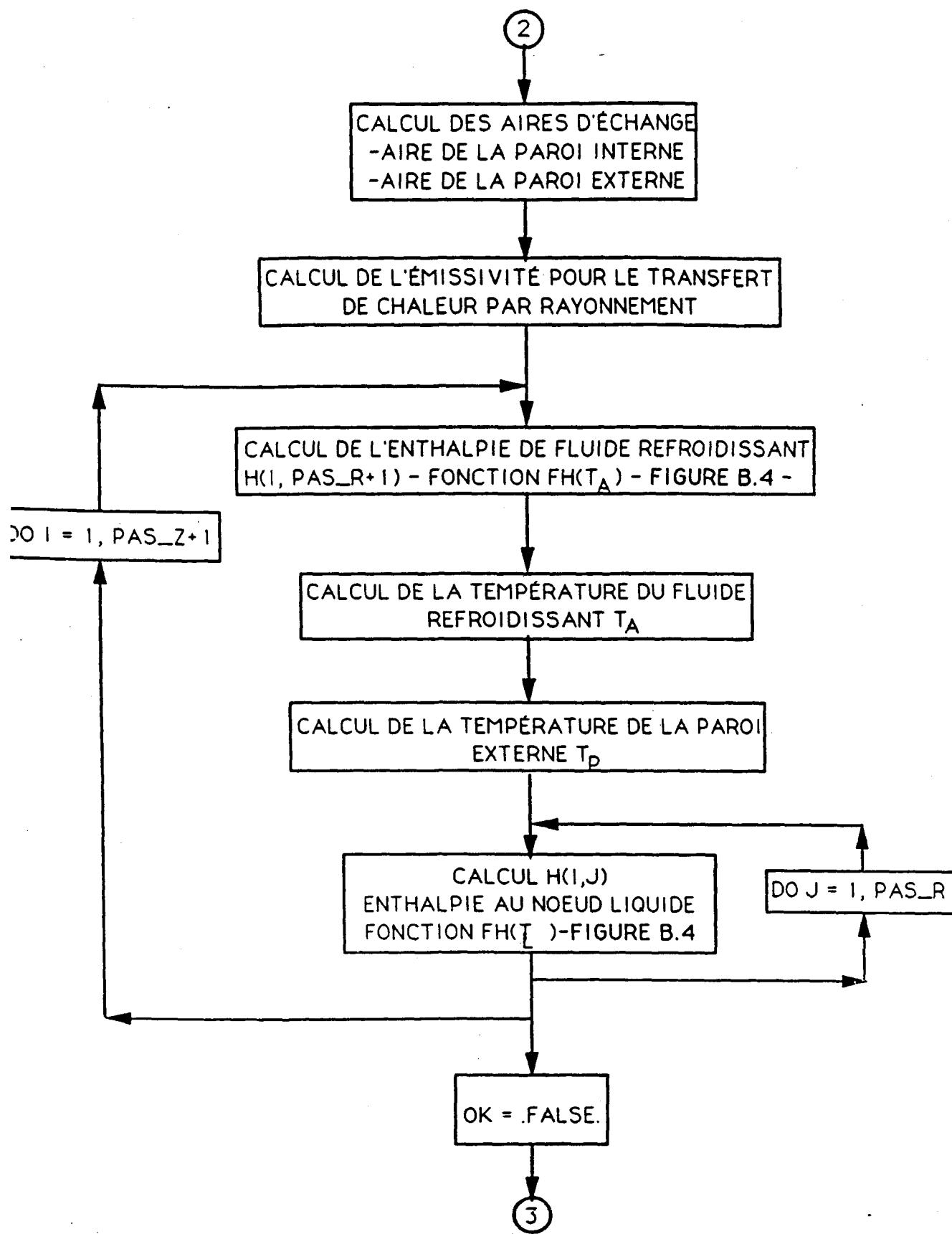
Pour $933.2 < T < 1275$ K.

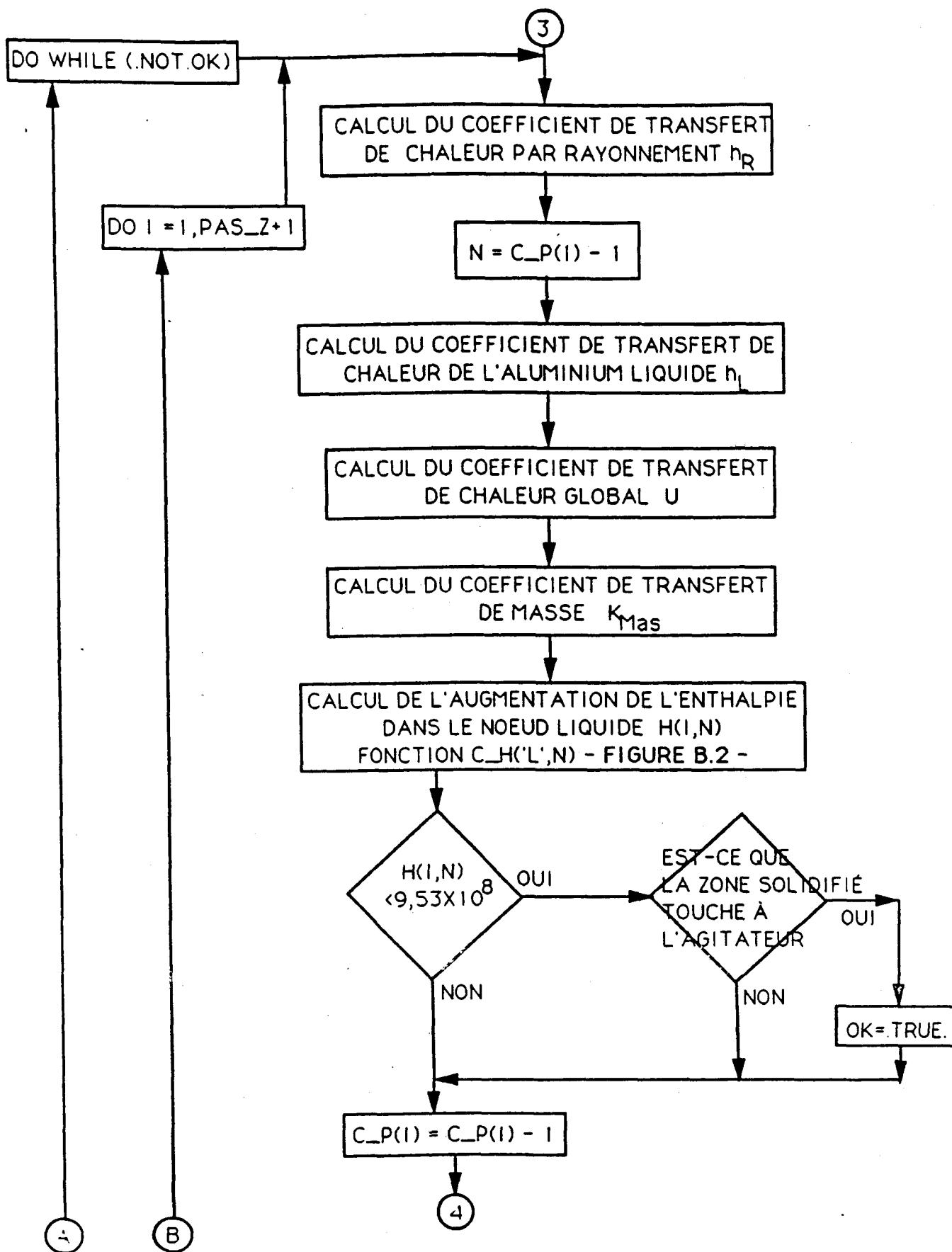
* Lyon, R., Liquid Metals Handbook, 2nd Edition, Washington, D. C., Atomic Energy Commission and Department of the Navy, (1952), page 41.

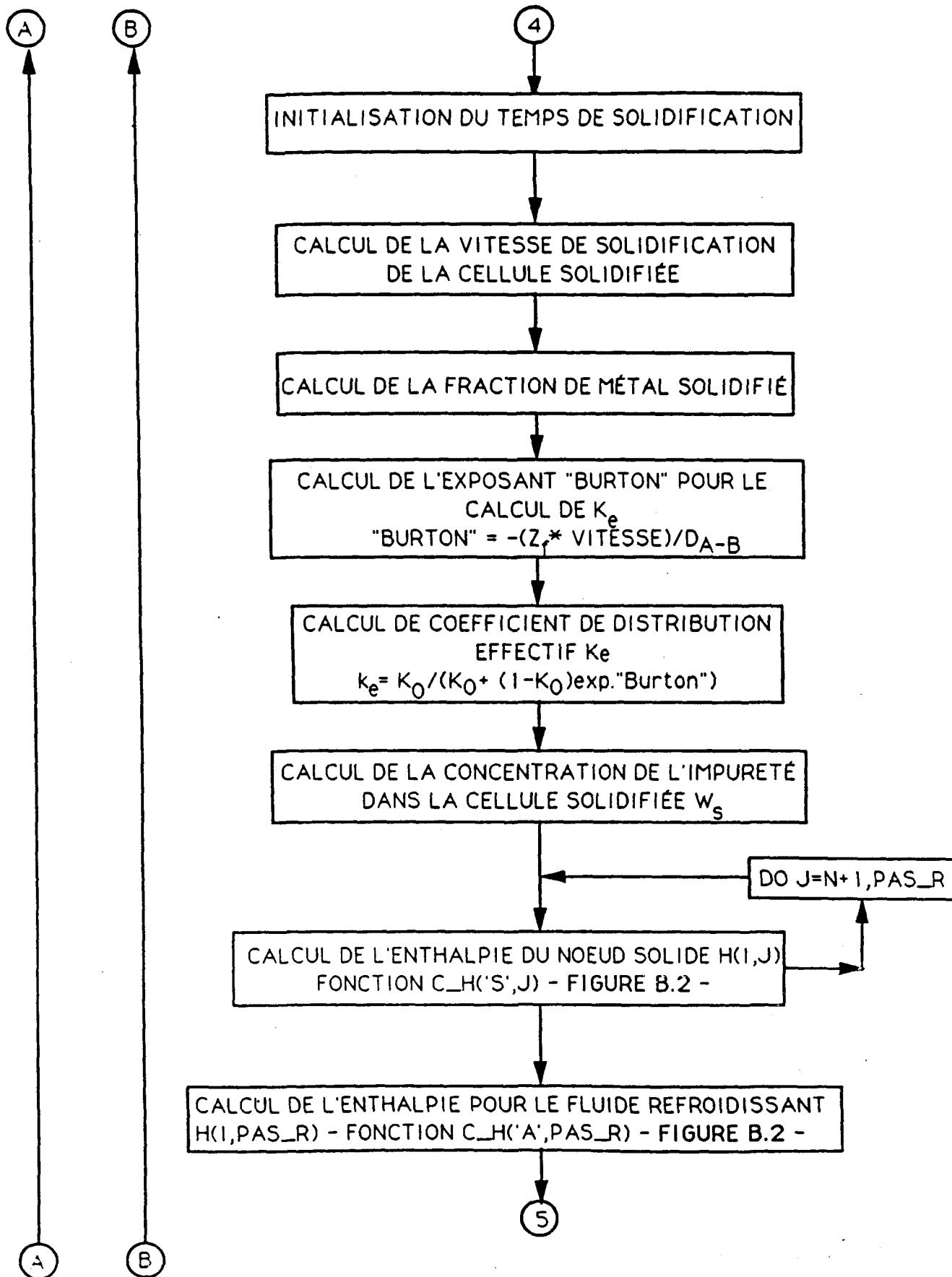
APPENDICE B

ALGORITHME DE RÉSOLUTION DU MODELE









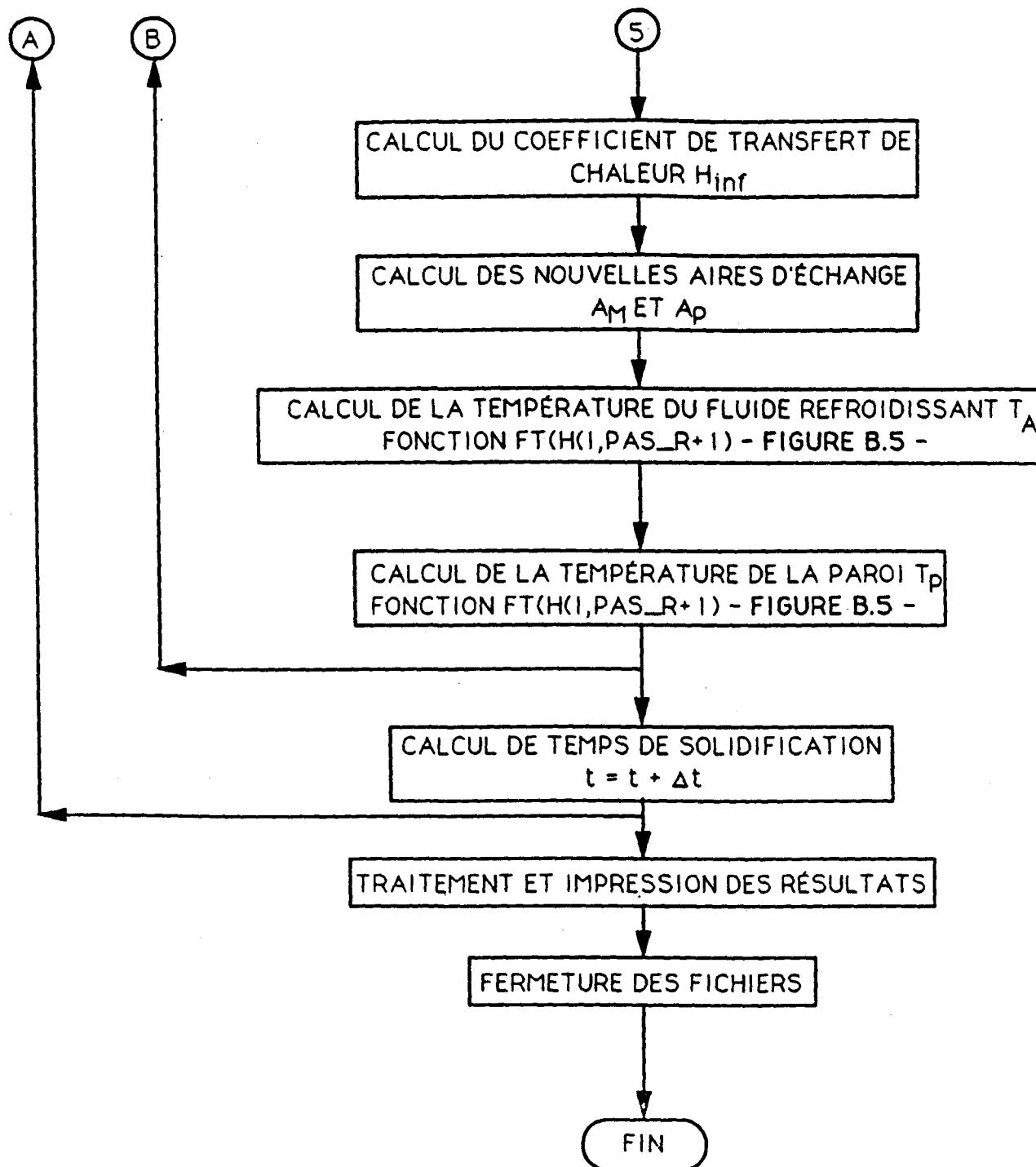


FIGURE B.1 ALGORITHME PRINCIPAL DE RÉSOLUTION DU MODELE

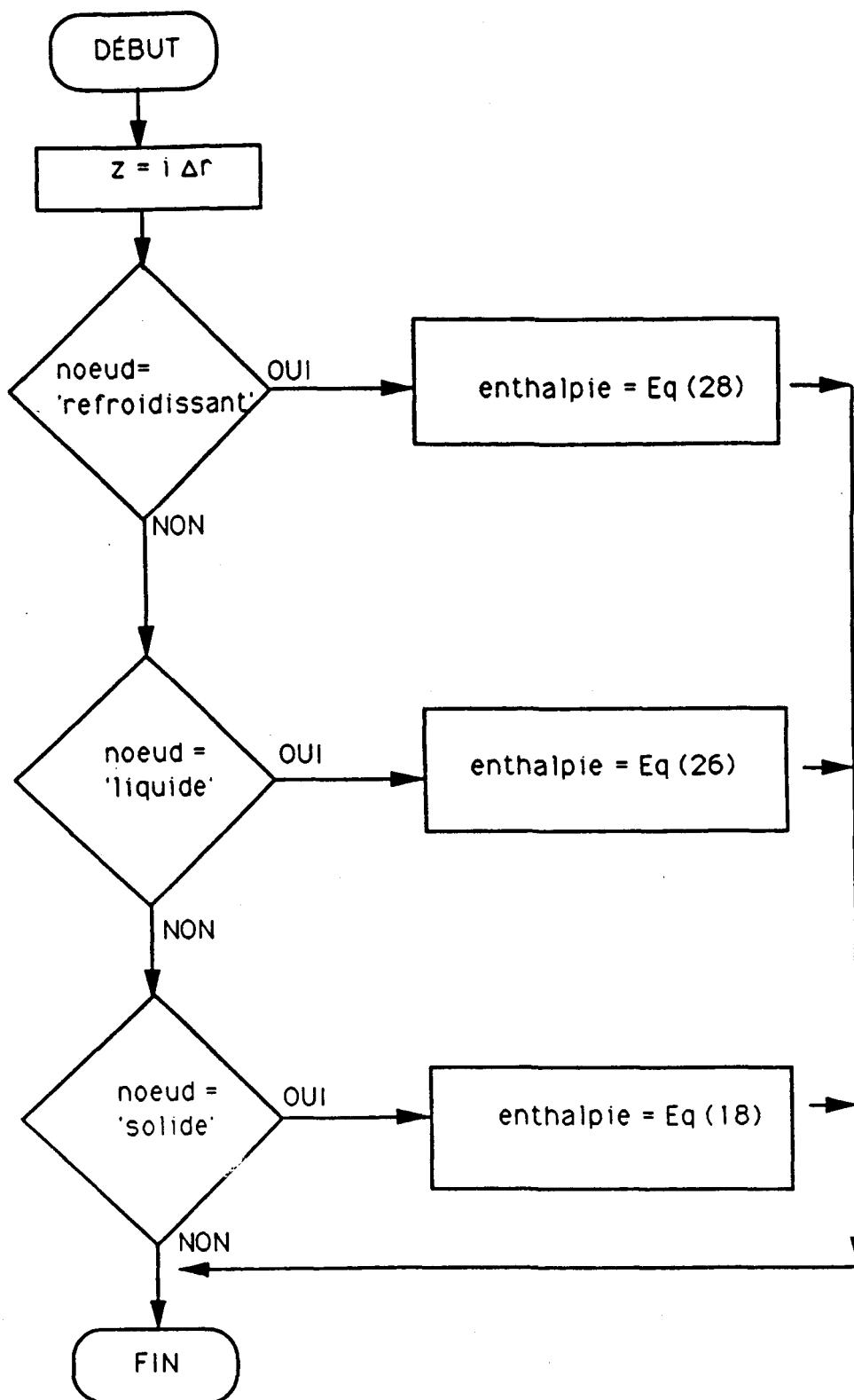


FIGURE B.2: Algorithme pour évaluer l'enthalpie selon la nature du noeud (solide, liquide ou refroidissant) - FONCTION C_H (C,NUM) -

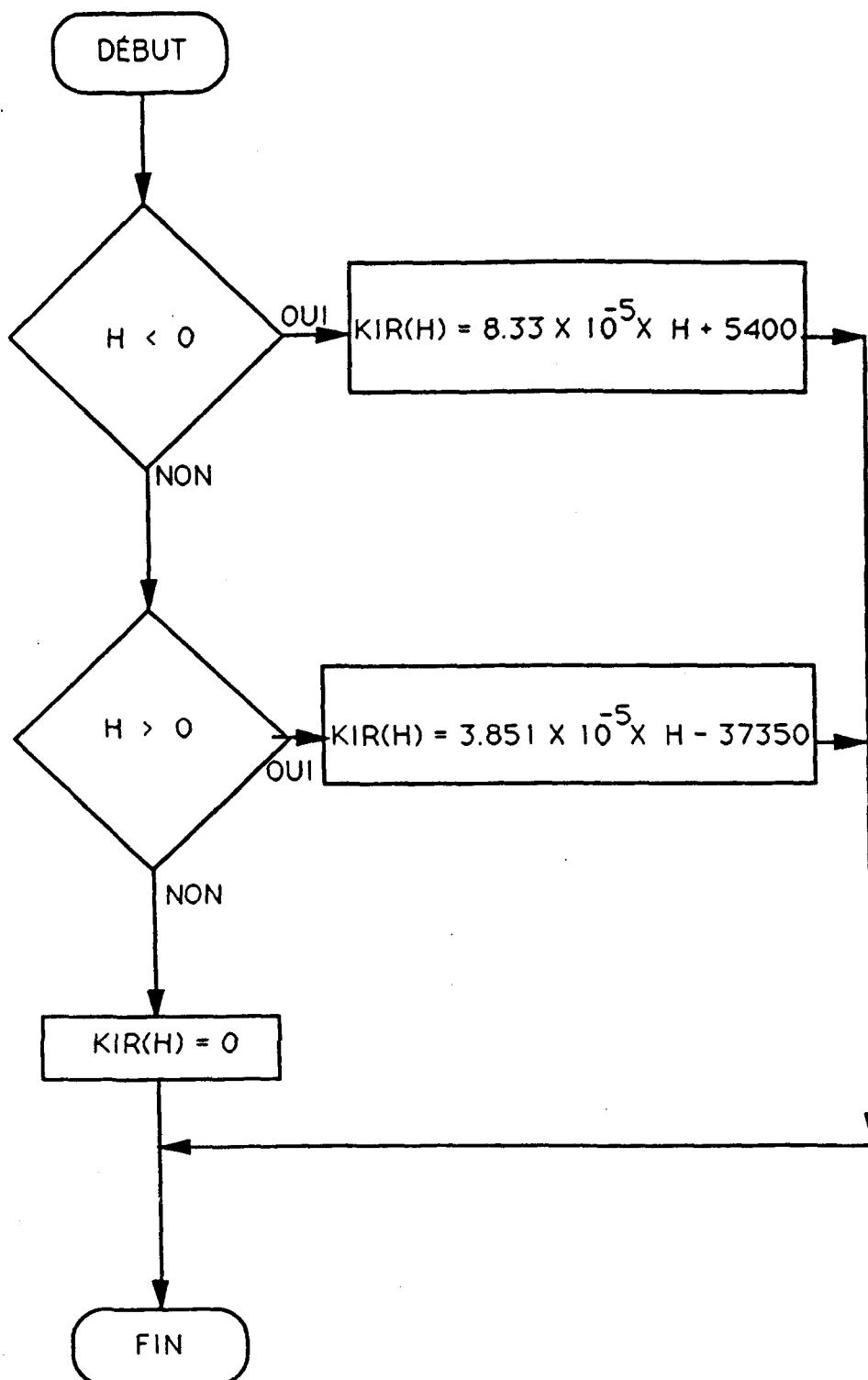


FIGURE B.3: Algorithme pour évaluer la transformée de Kirchoff
- FONCTION KIR (H) -

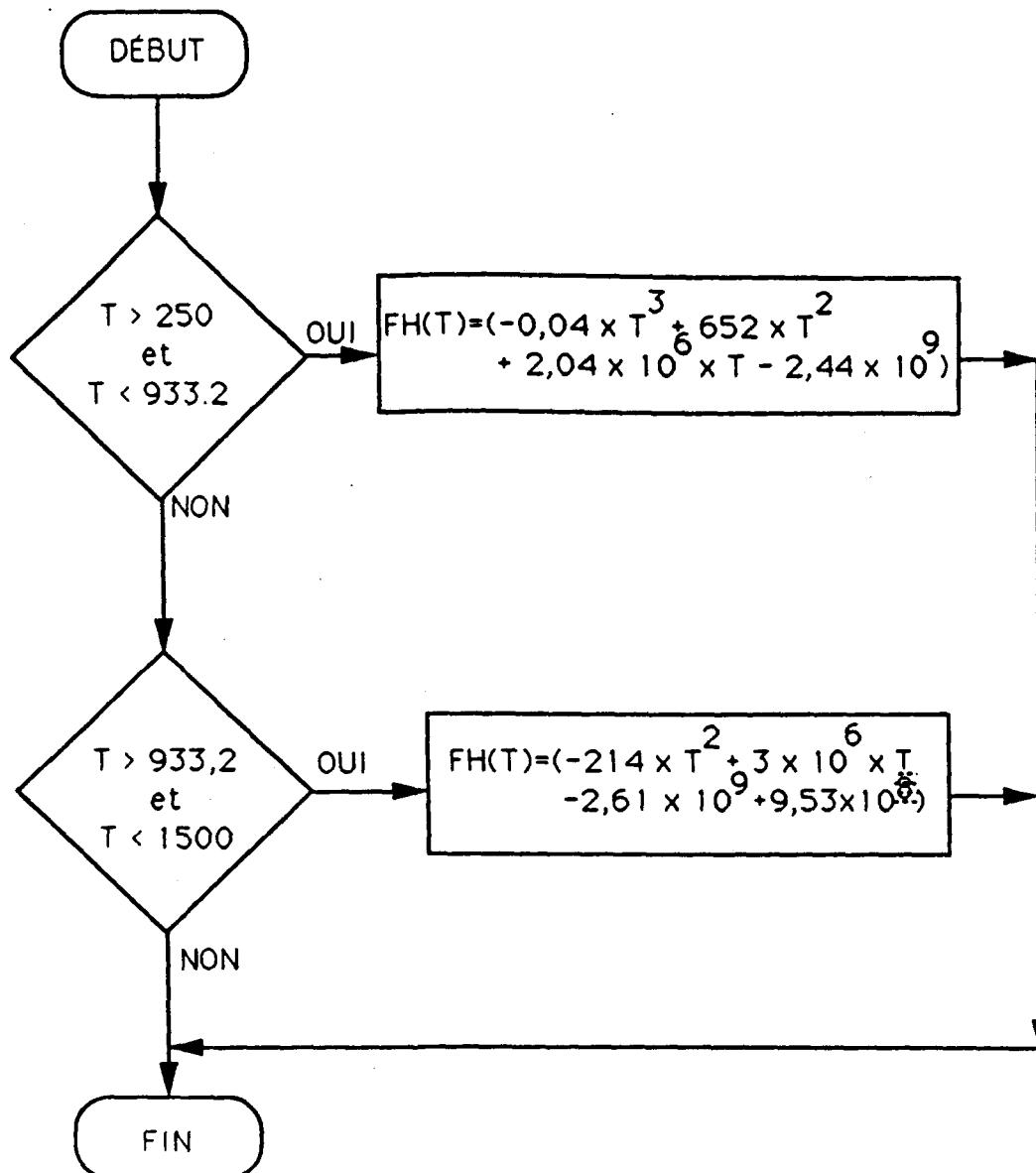


FIGURE B.4: Algorithme pour évaluer l'enthalpie à partir de la température
- FONCTION FH (T) -

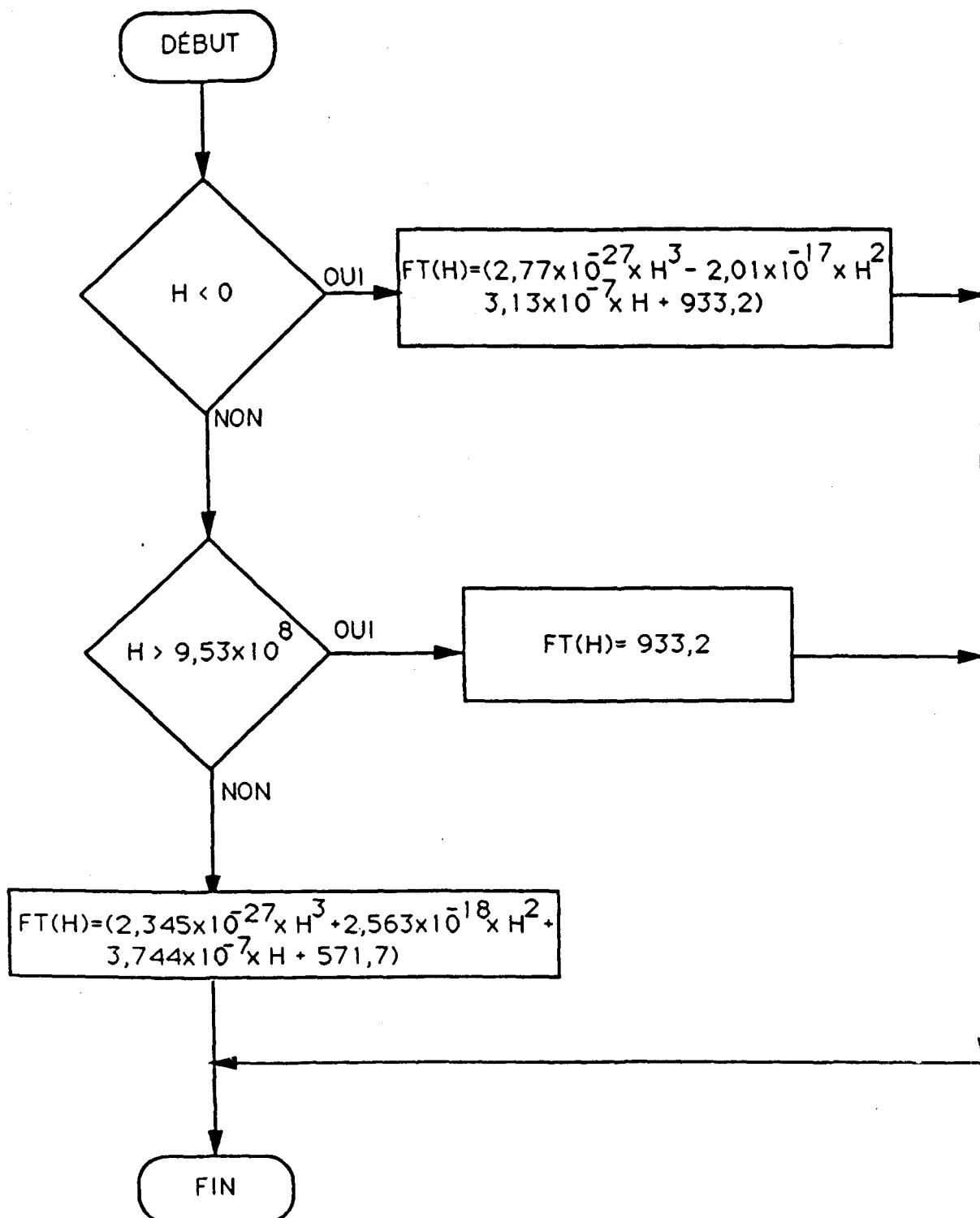


FIGURE B.5: Algorithme pour évaluer la température à partir de l'enthalpie
- FONCTION FT (H) -

APPENDICE C

DIAGRAMMES DE PHASES POUR FER, SILICIUM, TITANIUM ET VANADIUM AVEC L'ALUMINIUM

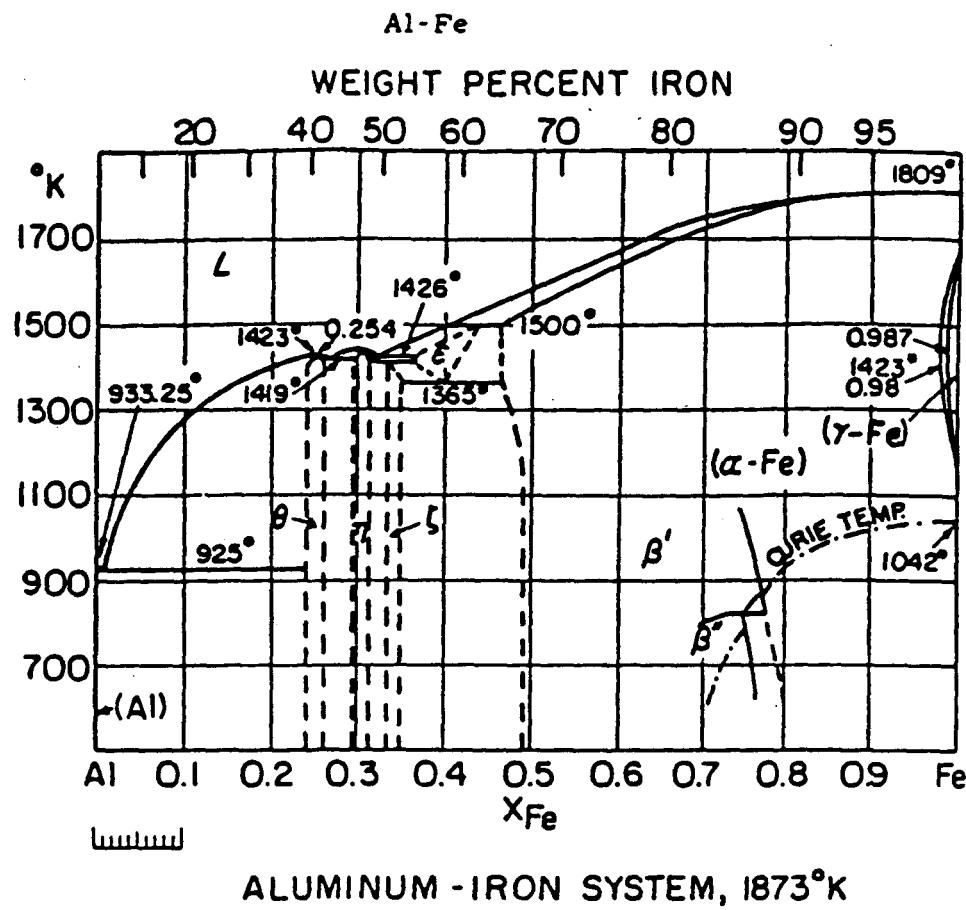


Figure C.1: Diagramme de phases aluminium-fer

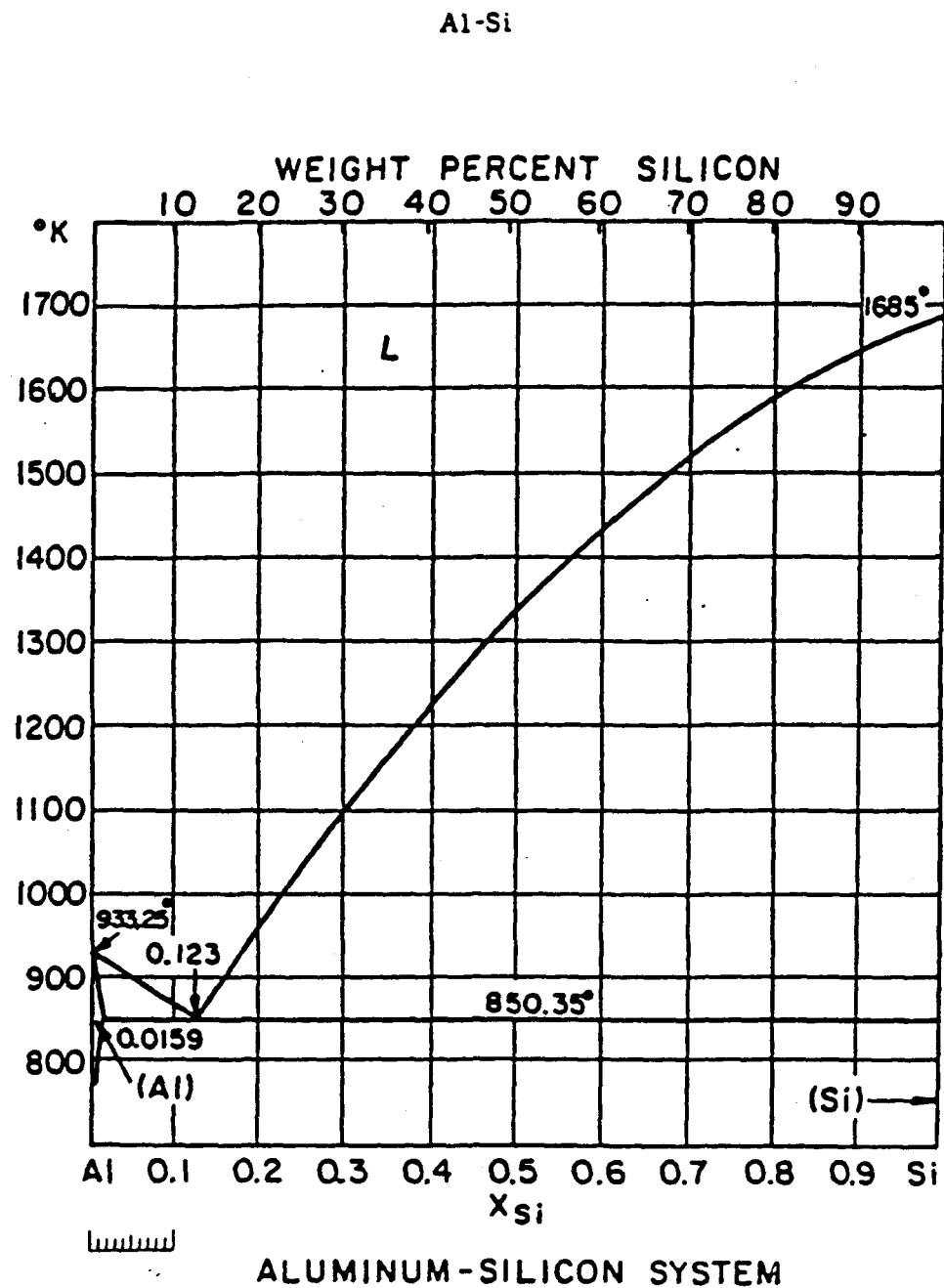


Figure C.2: Diagramme de phases aluminium-silicium

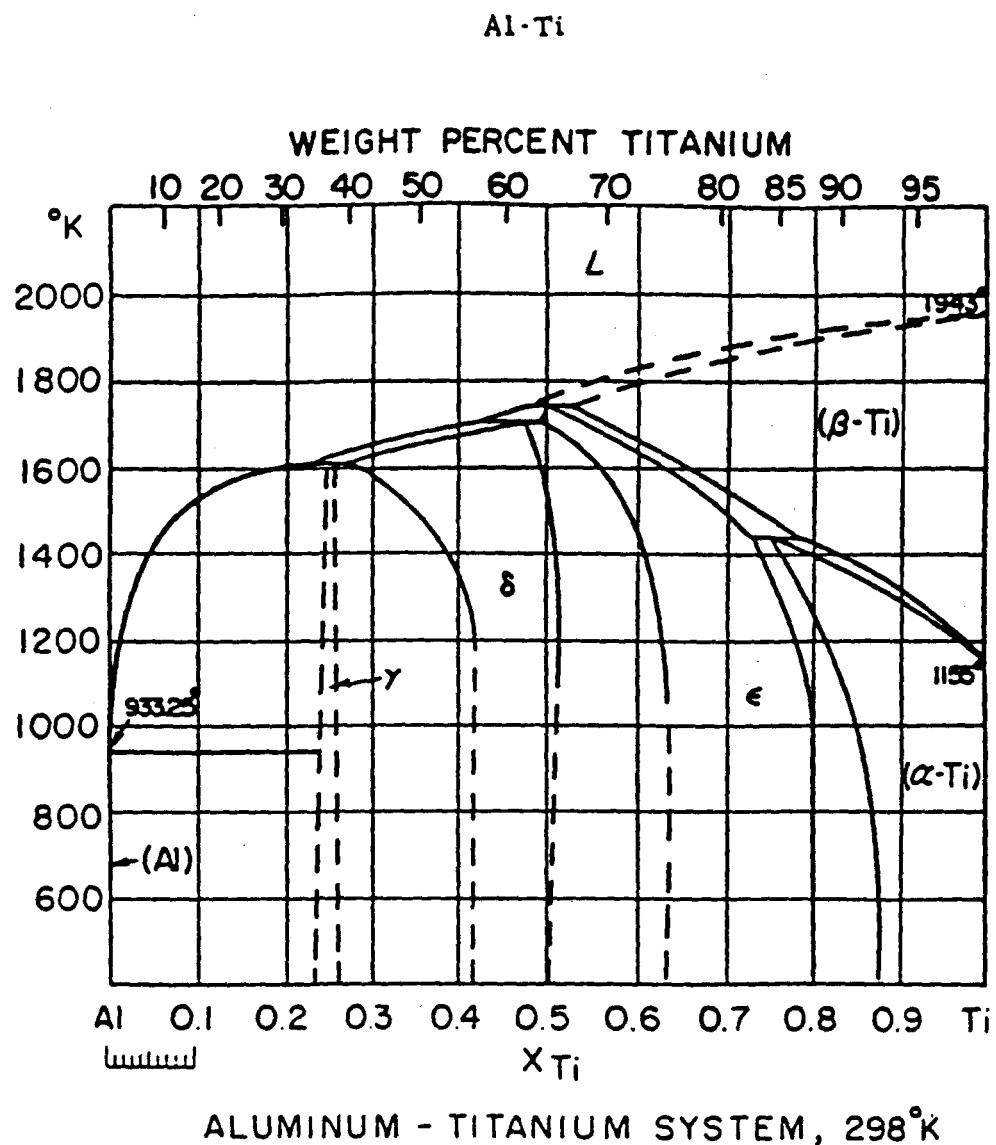


Figure C.3: Diagramme de phases aluminium-titane

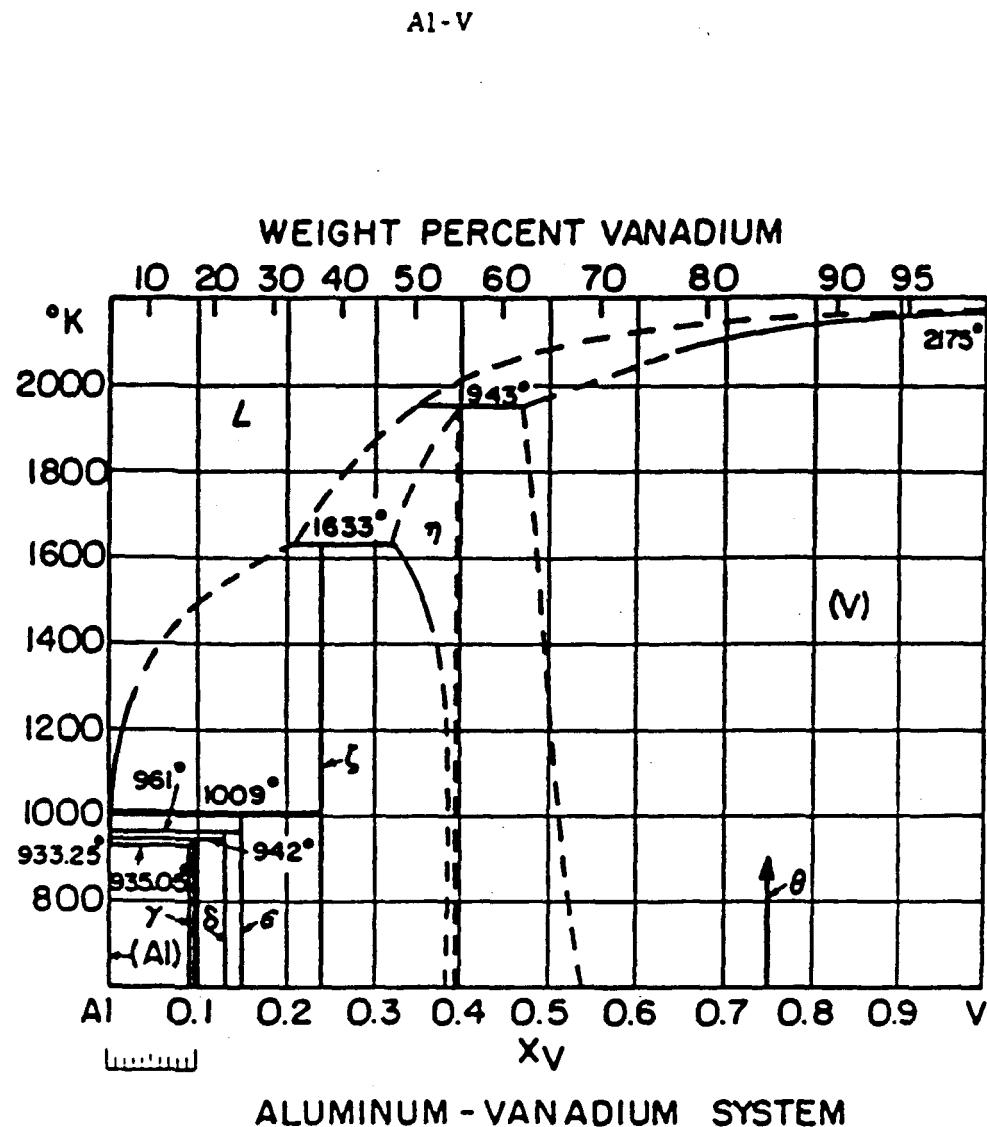


Figure C.4: Diagramme de phases aluminium-vanadium

BIBLIOGRAPHIE

- (1) Watanabe S., Kinzoku Metals, pp 8-13, Jan 88, 58
- (2) Pfann W.G., Zone Melting, John Wiley and Sons Inc., New York, 1966
- (3) Zief M., Wilcox W.R., Fractional Solidification, Marcel Dekker Inc., New York, 1967
- (4) Wilcox W.R., Wilke C.R., A.I.Ch.E. Journal, 1964, vol. 10, no.2, p.160
- (5) Hills A.W.D., Malhotra S.L., Moore M.R., Metallurgical Transactions B, 1975, vol. 6B, p.131
- (6) Wilcox W.R., Fullmer L.D., Journal of Applied Physics, 1965, vol. 36, no. 7, p.2201
- (7) Laforte J.L., Technologie de l'Environnement Nordique, notes de cours, UQAC, 1986
- (8) Johnson W.C., Tiller W.A., Transactions of the Metallurgical Society of AIME, 1961, vol. 221, p.331
- (9) Schaaber O., Mémoires Scientifiques Revue Métallurgique, 1963, no. 6, p.435
- (10) Forsyth J.S., Wood J.T., Trans. Instn Chem. Engrs, 1955, vol. 33, p.122

-
- (11) Muller-Krumbhaar H., The Journal of Chemical Physics, 1975, vol. 63, no. 12, p. 5131
 - (12) Burden M.H., Hunt J.D., Journal of Crystal Growth, 1974, vol. 22, p. 99
 - (13) Nazar A.M., Prates M., Clyne T.W., Journal of Crystal Growth, 1981, vol. 55, p.317
 - (14) Cole G.S., Winegard W.C., Journal of the Institute of Metals, 1964, vol. 93, p.153
 - (15) Wilcox W.R., Journal of Applied Physics, 1964, vol. 35, no. 3, p.636
 - (16) Sharp R.M., Hellawell A., Journal of Crystal Growth, 1971, vol. 8, p.33
 - (17) Jarrett N. et al., U.S. Patent 3 211 547, 12 octobre 1965
 - (18) Russell A.S., Jacobs S.C., Jarrett N., Starner B.N., Transactions of the Metallurgical Society of AIME, 1967, vol. 239, p. 1631
 - (19) Dawless R.K., Jacobs S.C., Canadian Patent 1 138 374, Juillet 1979
 - (20) Dewey J.L., U.S. Patent 3 163 895, 1965
 - (21) Dewey J.L., Journal of Metals, 1965, p. 940
 - (22) Ferber M.E., Winterberger M.G., U.S. Patent 3 671 229, Juin 1972
 - (23) Ichikawa M., Matsuoka S., Hashimoto T., Kawakawi H., Patent Agency of Japan JP 8 428 538A, Août 1982
 - (24) Ichikawa M., Matsuoka S., Hashimoto T., Kawakawi H., Seki Y., Patent Agency of Japan JP 8 476 837A, Octobre 1982
 - (25) Ichikawa M., Matsuoka S., Hashimoto T., Kawakawi H., Patent Agency of Japan JP 84 205 424A, Mai 1983
 - (26) Inouchi T., Sugita K., Washizaka E., Patent Agency of Japan JP 8 420 431A, Juillet 1982

-
- (27) Shingu H., Arai K., Ohtsuka Y., Patent Agency of Japan JP 842 728, Avril 1980
 - (28) Shingu H., Arai K., Ohtsuka Y., Shinto S., Patent Agency of Japan JP 8 441 499, 1980
 - (29) Pham Q.T., International Journal of Heat and Mass Transfer, 1985, vol. 28, no. 11, pp2079-2084
 - (30) Crowley A.B., Ockendon J.R., International Journal of Heat and Mass Transfer, 1979, vol. 22, pp941-947
 - (31) Voller V.R., Prakash C., International Journal of Heat and Mass Transfer, 1987, vol. 30, no. 8, pp1709-1719
 - (32) Voller V., Cross M., International Journal of Heat and Mass Transfer, 1983, vol. 26, no. 1, pp 147-150
 - (33) Tremblay J., Thèse de maîtrise, Université du Québec à Chicoutimi, Septembre 1986
 - (34) Hatch J.E., Aluminum: Properties and Physical Metallurgy, American Society of Metals, Ohio USA, 1984
 - (35) Treybal E.R., Mass Transfer Operations, McGraw Hill Book Compagny, New York USA, 1973
 - (36) Burton J.A., Prim R.C., Slichter W.P., Journal of Chemical Physics, 1953, vol. 21, no. 11, pp1987-1996
 - (37) Nakayama W., Kuwahara H., Hirasawa S., International Journal of Heat and Mass Transfer, 1988, vol. 31, no. 2, pp 449-460
 - (38) Celik C., Revue bibliographique sur les procédés de purification de l'aluminium, Rapport interne Alcan, 1985
 - (39) Simard G., Étude préliminaire du transfert de chaleur d'un prototype de cristallisation de l'aluminium par cristallisation fractionnée, Communication interne Alcan, 1986