

UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE
Faculté de génie
Département de génie mécanique

MESURE ET MODÉLISATION
DYNAMIQUE DE LA COUCHE DE GELÉE
DANS UN REACTEUR MÉTALLURGIQUE

Thèse de doctorat
Spécialité : génie mécanique

Clément BERTRAND

Jury : Martin DÉSILETS (directeur)
Gervais SOUCY (codirecteur)
Bernard MARCOS
Daniel MARCEAU
Marcel LACROIX
Raymond BREault

À mes parents, Claude et Martine pour leurs conseils et leur affection tout au long de ma vie.

À mon frère et sa petite famille pour leur soutien et leur aide durant toutes ces années.

RÉSUMÉ

La mesure des profils transitoires et de la vitesse de solidification sont deux données importantes pour le contrôle de procédés industriels impliquant un changement de phase. Dans le cas de l'électrolyse de l'aluminium, ce processus de solidification assure la protection du système et influe sur la performance énergétique du procédé de fabrication. Malheureusement, ces données se révèlent, dans la plupart des cas, difficilement accessibles. Ce travail de thèse porte sur le développement de nouveaux outils permettant l'étude et la caractérisation de la solidification de matériaux à changement de phase et à haute température. L'objectif est de développer un système de mesure du front de solidification de matériaux à changement de phase non destructif et ne perturbant pas le milieu de mesure, tout en assurant une précision et une réponse suffisamment rapide pour exploiter de nouvelles stratégies de contrôle dans les cuves d'électrolyse. Ce travail couple une étude expérimentale fondamentale de la solidification de la cryolithe avec une modélisation numérique de phénomène de changement de phase solide-liquide dans des conditions proches du fonctionnement de cuves d'électrolyse.

Mots-clés : Changement de phase, front de solidification, montage expérimental, mesures non-intrusives, simulations numériques directes, méthode inverse, cryolithe, cuve d'électrolyse.

ABSTRACT

Measurement of transient solidification fronts and of solidification rate are two important data for controlling industrial processes involving a solid-liquid phase change. In the case of aluminium electrolysis, this solidification process protects the system and affects the energy performance of the manufacturing process. Unfortunately, these data are not easy to obtain in most cases. This thesis focuses on the development of new tools for the study and on the solidification characterization of phase change materials at high temperature. The goal is to develop a nondestructive solidification front measurement system for phase change materials without disturbing the measurement medium, while ensuring accuracy and a fast enough response time to exploit new control strategies in electrolysis cells. This work couples a fundamental experimental study of the cryolite solidification with numerical modeling of solid-liquid phase change phenomenon under conditions close to those during normal operation of electrolytic cells.

Keywords: Phase change, solidification front, experimental setup, non-intrusive measurements, direct numerical simulations, inverse method, cryolite, electrolysis cell.

REMERCIEMENTS

Voici venu le moment des remerciements. Une tâche ardue mais indispensable pour exprimer mon profond respect et toute ma gratitude aux personnes qui ont contribué à l'achèvement de ce doctorat. J'espère toutefois n'oublier personne.

Ce travail a été réalisé dans le département de génie mécanique de l'Université de Sherbrooke, et plus précisément au sein du Laboratoire LAPSUS (LABoratoire des Procédés industriels et Simulations numériques de l'Université de Sherbrooke). Il a été financé par Rio Tinto Alcan, le Conseil de Recherches en Sciences Naturelles et en Génie du Canada et le Fonds Québécois de la Recherche sur la Nature et les Technologies.

Je souhaite tout d'abord remercier mes directeurs de thèse, le Professeur Martin Désilets et le Professeur Gervais Soucy, du département de génie chimique et de génie biotechnologique pour leur confiance, leur professionnalisme et leur disponibilité. Le Pr Martin Désilets m'a continuellement soutenu, conseillé et guidé dans l'orientation de mes recherches. Quant au Pr Gervais Soucy, son enthousiasme communicatif, son dévouement et sa science de l'expérimentation m'ont été profitables pour le développement du montage expérimental ainsi que pour la planification et la réalisation des expériences. Soyez assurés de mon estime et de mon amitié.

Mes sincères remerciements également aux techniciens et ingénieurs qui m'ont aidé durant ce doctorat. Notamment Serge Gagnon, véritable encyclopédie vivante des capteurs et des instruments de mesure. Sans oublier Benoît Couture et André Bilodeau qui ont contribué à la conception du montage expérimental et à sa fabrication. Enfin, j'aimerais remercier également les stagiaires qui ont participé aux diverses expérimentations, certaines fois difficiles, au cours de ces années. Marc-André Marois et Marc Lebreux, nos discussions stimulantes ont contribué à l'aboutissement de plusieurs articles scientifiques. Votre humeur et votre joie de vivre ont été très appréciées pendant les nombreuses heures passées ensemble au bureau. Mes remerciements vont également à Carl St-Louis, Marc-André Coulombe, Martin Lebeuf et Martin Brassard, avec qui j'ai passé d'excellents moments au laboratoire.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance au Pr Marcel Lacroix, à Alexandre Blais, à Jean-François Bilodeau et Yves Caratini pour leur implication dans la vérification et la validation de mes articles scientifiques. Je remercie aussi Mr Raymond Breault d'avoir accepté de relire cette thèse.

Je voudrais adresser mes remerciements à tous mes camarades étudiants de la faculté de Génie. Je garderai un merveilleux souvenir des fructueux échanges scientifiques et humains ainsi que les discussions passionnantes que j'ai eues notamment lors des « pauses-café » avec mon ami serbe.

Pour conclure, j'exprime ma gratitude à ma famille pour leur encouragement et leur soutien inconditionnels. A tous mes amis, avec qui, j'ai eu l'occasion de vivre les meilleurs moments de ma vie et à celle avec qui j'aimerais en avoir de nouveaux, un grand MERCI à tous.

TABLE DES MATIÈRES

1	INTRODUCTION	1
1.1	Mise en contexte et problématique	1
1.1.1	Besoins énergétiques et pollution	1
1.1.2	Production d'aluminium et consommation électrique	2
1.1.3	L'électrolyse de l'aluminium	5
1.1.4	Point de vue énergétique	7
1.1.5	Rôle de la gelée	10
1.2	Définition du projet de recherche	12
1.3	Objectifs du projet de recherche	13
1.3.1	Objectif principal	13
1.3.2	Objectifs spécifiques	14
1.4	Contributions originales	14
1.5	Plan du document	15
2	REVUE DE LA LITTÉRATURE	17
2.1	Nouvelles technologies dans les cuves d'électrolyse	17
2.2	Étude du changement de phase	22
2.2.1	Modèles statiques pour les cuves d'électrolyse	22
2.2.2	Modèles dynamiques pour les cuves d'électrolyse	28
2.2.3	Modèles numériques hors électrolyse de l'aluminium	29
2.3	Mesure du changement de phase	31
2.3.1	Capteurs de mesure intrusifs	31
2.3.2	Capteurs de mesure non-intrusifs	37
2.4	Méthodes inverses	39
2.5	Conclusion	40
3	PRÉSENTATION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL	41
3.1	Montage expérimental	41
3.2	Mesures directes de l'épaisseur de gelée	47
3.2.1	Système de mesure LVDT + Tige	47
3.2.2	Thermocouples	52
3.3	Mesures indirectes	52
3.3.1	Système de mesure à ultrasons	52
3.3.2	Caméra infrarouge	53
3.4	Mesures des grandeurs thermophysiques caractéristiques	56
3.4.1	Sonde de flux	57
3.4.2	Mesure de diffusivité thermique	58
3.4.3	Mesure de la température de fusion (T_f)	59
3.5	Acquisition et contrôle	61
3.6	Conclusion	63

4	VALIDATION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL	65
4.1	Introduction	67
4.2	Experimental Setup	68
4.2.1	Cylindrical oven	69
4.2.2	Graphite crucible	69
4.2.3	Cooling system	71
4.2.4	Internal measurement systems	71
4.2.5	External measurement systems	72
4.2.6	Acquisition and control systems	73
4.3	Convection heat transfer within the crucible	73
4.4	Experimental Procedure	75
4.4.1	Tested phase change materials	75
4.4.2	Experimental protocol	75
4.4.3	Case of the molten salts	76
4.5	Results	77
4.6	Conclusion	82
5	RÉSOLUTION DIRECTE DU PROBLÈME DE STEFAN	85
5.1	Modèle théorique	85
5.2	Méthode enthalpique	86
5.3	Résolution numérique	89
5.3.1	Présentation du schéma numérique considéré	89
5.3.2	Validation du choix de la méthode enthalpique et des paramètres de discrétisation	93
5.4	Application du modèle	95
5.4.1	Description du problème	95
5.4.2	Procédure expérimentale	98
5.4.3	Procédure numérique	99
5.4.4	Équations caractéristiques et conditions limites	99
5.4.5	Validation expérimentale du modèle	102
5.5	Conclusion	104
6	VALIDATION DU MODÈLE INVERSE	105
6.1	Introduction	107
6.2	Experimental setup	109
6.3	Experimental procedure	111
6.4	Numerical procedure	112
6.4.1	Presentation of the quasi-2D model	112
6.4.2	The inverse procedure	115
6.5	Results and discussion	117
6.6	Conclusions	122
7	CONCLUSION	123
7.1	Problématique étudiée	123
7.2	Travaux réalisés et contributions	124

7.3 Perspectives	125
A DIMENSIONS CARACTÉRISTIQUES DU CREUSET	127
B DIMENSIONS DU PORTE-CREUSET	129
C DIMENSIONS DU BOUCHON THERMIQUE	131
LISTE DES RÉFÉRENCES	133

LISTE DES FIGURES

1.1	Variation de la consommation d'énergie en 2009 [156].	2
1.2	Représentations des variations de la production d'aluminium primaire mondiale, de la consommation d'énergie et des coûts électriques par tonne d'aluminium. L'évolution du prix LME de l'aluminium est également présentée. Sources : <i>London Metal Exchange</i> [140], <i>Office de l'Efficacité Énergétique</i> [156], <i>USGS</i> [209], <i>I.E.A - Energy Prices and Taxes</i> [3].	4
1.3	Représentation d'une cellule d'électrolyse de l'aluminium.	5
1.4	Répartition des pertes dans une cellule d'électrolyse en régime établi [179].	10
1.5	Représentation de l'influence de la couche de gelée sur la cellule d'électrolyse d'aluminium.	11
3.1	Représentations du four complet (A) et d'une coupe du four (B).	42
3.2	Représentation du montage expérimental complet. Les câbles d'alimentation et la tuyauterie n'ont pas été représentés.	43
3.3	Représentations du porte-creuset contenant un creuset en carbone.	45
3.4	Représentations du bouchon thermique servant à la protection du creuset en phase de chauffe.	45
3.5	Vue trimétrique du dessous du four. Les câbles d'alimentation et la tuyauterie n'ont pas été représentés.	46
3.6	Schématisme du fonctionnement interne du LVDT.	48
3.7	Vue trimétrique du LVDT et de son système de déplacement.	49
3.8	Signal de sortie du LVDT.	51
3.9	Image infrarouge de la partie inférieure du creuset mesurée par la caméra thermique SC 620.	56
3.10	Schématisme du système d'acquisition du banc d'essai.	62
4.1	Control strategy for the solidification front.	68
4.2	Experimental setup.	70
4.3	LVDT measurement errors.	72
4.4	Isopleth diagram of Na_3AlF_6 - Al_2O_3 - 11,5 wt.% AlF_3 - 5,45 wt.% CaF_2 . Dashed line shows the solidification of the studied bath at 80,5 wt.% Na_3AlF_6 and 2,5 wt.% Al_2O_3	76
4.5	The solidification of the molten bath leads to the precipitation of different compounds.	77
4.6	Temperatures inside the crucible and zinc mean solidification front.	78
4.7	2D solidification profiles of zinc. Only a few error bars (time of cooling ≥ 2 hr) are shown for visual clarity.	79
4.8	Measurement of the temperature field using an infrared camera.	80
4.9	2D temperature fields under the graphite crucible obtained by an infrared camera.	80

4.10	2D solidification profiles of molten salts. Measurements with the LVDT systems were taken at $Pi = \{-10, 2; -5, 1; 0; 5, 1; 10, 2\}$ cm from the center of the crucible.	81
4.11	Temperatures inside the crucible and mean solidification front of molten salts. The error bars for the temperature curves T/C 2 and T/C 4 are not shown.	82
5.1	Schématisation du transfert de chaleur dans un volume solide V	86
5.2	Schématisation des volumes de contrôle. La maille P correspond au volume de contrôle considéré. Les mailles N, S, E, W sont les volumes de contrôle au nord, sud, est, ouest respectivement.	90
5.3	Représentation simplifiée du montage expérimental.	96
5.4	Schématisation du montage et des phénomènes thermiques.	97
5.5	Système étudié pour la validation de la méthode directe.	97
5.6	Historique de température [22].	101
5.7	Fronts de solidification moyennés [22].	102
5.8	Historique des profils de solidification mesurés et simulés avec un coefficient de convection moyenné [22]. Les données expérimentales sont représentées par des lignes avec marqueurs.	103
5.9	Historique des profils de solidification mesurés et simulés avec un coefficient de convection linéaire. Les données expérimentales sont représentées par des lignes avec marqueurs.	103
6.1	Schematic representations of the experimental setup (dimensions are omitted due to confidentiality agreement).	110
6.2	Schematic representation of the phase change process.	113
6.3	Extrapolated time-varying heat transfer coefficient.	119
6.4	Temperature history at the outer surface of the crucible.	119
6.5	Prediction of the time-varying thickness of molten salt bank.	120
6.6	Solidification front profile history.	121
A.1	Représentations du creuset en graphite et de son couvercle.	127
B.1	Représentations du porte-creuset (A) et du couvercle en Inconel (B).	129
C.1	Schématisations du bouchon thermique servant lors de la chauffe du four industriel.	131

LISTE DES TABLEAUX

2.1	Revue des nouvelles technologies employées pour l'optimisation des cuves d'électrolyse.	18
2.2	Revue des principaux travaux portant sur l'étude du changement de phase.	23
2.3	Revue des méthodes de mesure du front de solidification.	32
4.1	Transition temperatures during the solidification of the studied bath. . . .	76
5.1	Dimensions du four métallurgique.	100
5.2	Liste des propriétés thermophysiques [112] et des conditions frontières et aux limites pour la géométrie étudiée.	100
6.1	Geometric parameters.	111
6.2	Physical properties, boundary conditions and initial conditions for the test case [136].	115
6.3	Local temperature measurements made at the beginning of the experiment.	117
6.4	Solidification front measurements. The LVDT measurements were done for three different radial positions from the center of the crucible, <i>i.e.</i> at $r_i = \{r_{P_1} = 9, 5; r_{P_2} = 4, 75; r_{P_3} = 0\}$ cm.	118

LEXIQUE

Termes techniques	Définitions
Algorithme	Suite finie et non-ambiguë d'opérations ou d'instructions permettant de résoudre un problème ¹ .
Anode inerte	Électrode d'une cellule d'électrolyse d'aluminium où a lieu une réaction électrochimique d'oxydation sans dissolution de celle-ci.
Anthracite	Roche sédimentaire, type de charbon.
Approximation linéaire	Approximation d'une fonction au voisinage d'un point à l'aide d'une fonction affine ¹ .
Bloc cathodique	Électrode d'une cellule d'électrolyse d'aluminium où a lieu une réaction électrochimique de réduction.
Capteur	Dispositif transformant l'état d'une grandeur physique en grandeur utilisable ¹ .
Choc thermique	Phénomène qui affecte les matériaux lorsqu'ils reçoivent une grande quantité d'énergie thermique en un temps très court ² .
Coefficient de sensibilité	Variation d'une grandeur thermique suite à une perturbation du paramètre à estimer.
Coke de pétrole	Coproduit des raffineries de pétrole issue de la cokéfaction.
Condition initiale	Condition imposée à $t = 0$.
Condition limite	Condition imposée sur une frontière d'un système.
Corrosion	Dégradation d'un matériau sous l'action du milieu ambiant et par un processus autre que mécanique ² .
Coût horaire	Rémunération supportée par l'employeur pour l'accomplissement de certaines tâches en une heure.
Coût de production	Dépenses réalisées pour la production de biens ou services ¹ .
Croûte	Cryolithe solidifiée se formant au-dessus d'une cellule d'électrolyse.
Cryolithe	Constituant essentiel de l'électrolyse de l'aluminium de formule chimique : Na_3AlF_6 .
Dilatation thermique	Augmentation du volume d'un corps sous l'influence d'une variation de température ² .
Distance inter-polaire	Distance entre l'anode et la couche d'aluminium dans une cellule d'électrolyse.

¹Définition provenant de la référence [232]

²Définition provenant de la référence [187]

Termes techniques	Définitions
Effet d'anode	Teneur en alumine du bain électrolytique trop faible impliquant la diminution de la conductivité électrique de l'électrolyte et la production d'une grande quantité de chaleur.
Effet Joule	Manifestation thermique de la résistance électrique ¹ .
Effet Marangoni	Phénomènes de transport de matière le long d'une interface sous l'effet d'un gradient de tension superficielle ¹ .
Électrodynamisme	Discipline physique qui étudie et traite des actions dynamiques entre les courants électriques ¹ .
Électrolyse	Processus permettant de réaliser des réactions chimiques grâce à une activation électrique ¹ .
Électrolyte	Corps qui, dissout ou fondu, peut se décomposer sous l'action d'un courant électrique ¹ .
Fonction coût	Fonction à minimiser pour des problèmes d'optimisation.
Gelée	Cryolithe solidifiée sur les parois latérales d'une cellule d'électrolyse d'aluminium.
Gradient	Taux de variation d'une grandeur physique.
Graphite	Variété de carbone, cristallisé en lamelles hexagonales ² .
Incertitude	Erreur qui se produit lors de mesures.
Interpolation	Recherche d'une fonction passant par des points donnés.
Isoplèthe	Ligne d'égale valeur sur un graphique ¹ .
Magnétohydrodynamique	Discipline scientifique qui décrit le comportement d'un fluide conducteur du courant électrique en présence de champs électromagnétiques ¹ .
Mesure directe	Type de mesure impliquant la perturbation du milieu de mesure.
Mesure indirecte	Type de mesure sans impact sur l'état d'équilibre d'un système.
Méthode des gradients conjugués	Algorithme pour résoudre des systèmes d'équations linéaires dont la matrice est symétrique définie positive ¹ .
Méthode directe	Détermination de l'évolution d'un paramètre connaissant tous les paramètres caractérisant un système.
Méthode inverse	Détermination de paramètres d'un système connaissant son évolution.
Multiplicateur de Lagrange	Méthode permettant de trouver des points stationnaires d'une fonction dérivable ¹ .

Termes techniques	Définitions
Oxydation	Réaction chimique, souvent provoquée par l'oxygène, par laquelle on retire des électrons à un atome ou à une molécule ² .
Passivation	Formation d'une couche superficielle protégeant un matériau ou une pièce ² .
Transducteur piézoélectrique	Dispositif convertissant un potentiel électrique en un effort mécanique ou vice-versa.
Porosité	Structure lacunaire des corps solides qui comportent de nombreux pores dont les dimensions sont grandes par rapport aux atomes, mais petites à l'échelle de nos observations ordinaires ² .
Problème adjoint	Calcul des gradients, détermination de la direction de descente.
Problème de sensibilité	Détermination de la profondeur de descente.
Procédé Bayer	Procédé permettant la dissolution de l'alumine provenant de la bauxite par de la soude caustique.
Réduction carbothermique	Phénomène consistant à porter à des températures très élevées un mélange d'alumine et d'espèces carbonées qui vont se combiner avec l'oxygène de l'alumine pour former du monoxyde de carbone et de l'aluminium métallique.
Réduction de la kaolinite	Processus permettant la production d'aluminium à partir de la kaolinite de formule chimique : $Al_2Si_2O_5$.
Réfractaire	Qui résiste à certaines influences physiques ou chimiques ² .
Rendement Faraday	Rapport de la masse d'aluminium produite à la masse d'aluminium théoriquement produite ¹ .
Rotamètre	Type de débitmètre.
Sonde de flux	Instrument permettant la mesure d'un flux thermique sortant ou entrant dans un système.
Surtension	Tension dont la valeur dépasse la plus grande valeur assignée ² .
Tension superficielle	Force qu'il faut supposer appliquer à l'unité de longueur du bord de la surface libre d'un liquide pour provoquer l'extension de cette surface ² .
Transfert de masse	Transport de molécules et d'atomes dans un système ¹ .
Transmetteur	Instrument transmettant des signaux.
Zone pâteuse/Mushy zone	Zone où un matériau se retrouve à la fois sous forme liquide et solide.

LISTE DES SYMBOLES

Symboles	Définitions
<i>Lettres romaines</i>	
<i>A</i>	Surface (m^2)
<i>b</i>	Constante
<i>c</i>	Chaleur massique moyennée ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
<i>d</i>	Direction de descente
<i>E</i>	Est
<i>EM</i>	Étendue de mesure
<i>f</i>	Fraction liquide
<i>F</i>	Constante de faraday ($C.mol^{-1}$)
<i>g</i>	Fraction liquide
<i>h</i>	Coefficient de transfert de chaleur convectif ($W.m^{-2}.K^{-1}$)
<i>H</i>	Enthalpie ($J.mol^{-1}$), hauteur (m)
<i>I</i>	Courant (A)
<i>k</i>	Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
<i>L</i>	Chaleur latente de fusion ($J.kg^{-1}$), épaisseur de l'échantillon m
<i>m</i>	Masse (kg)
<i>M</i>	Masse molaire ($kg.mol^{-1}$), nombre de capteur
<i>n</i>	Normal
<i>N</i>	Nord
<i>P</i>	Puissance (W), point considéré, point de mesure
<i>q</i>	Flux de chaleur (W)
<i>Q</i>	Pertes de chaleur (J)
<i>r, y</i>	Coordonnées cylindriques
<i>s</i>	Front de solidification (m)
<i>S</i>	Sud, surface (m^2)
<i>t</i>	Temps (s)
<i>T</i>	Température (K)
<i>U</i>	Tension (V)
<i>V</i>	Volume (m^3)
<i>VC</i>	Volume de contrôle
<i>x, y</i>	Coordonnées cartésiennes
<i>Y</i>	Température mesurée (K)
<i>W</i>	Largeur (m)
<i>z</i>	Valence
<i>Symboles</i>	
<i>An</i>	Analytique
<i>CE</i>	Efficacité de courant (%)

Symboles	Définitions
c_p	Chaleur spécifique à pression constante ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
E_o	Potentiel à l'équilibre (V)
E_{bmf}	Force électromotrice (V)
ER_s	Écart relatif (%)
Exp	Expérimental
Fo	Nombre de Fourier
H_T	Fonction enthalpique
I	Intrusif
I_M	Nombre total de mesure LVDT
NI	Non-intrusif
PCM_l	Matériau à changement de phase liquide
PCM_s	Matériau à changement de phase solide
S	Terme source, fonction des moindres carrés
T/C	Thermocouple
W_{el}	Énergie électrique (J)
$wt.\%$	Pourcentage massique (%)
ΔER	Erreur absolue (m)
ΔH	Énergie totale de réaction (J)
ΔH_{r_i}	Variation d'enthalpie de réactif ($J.mol^{-1}$)
Δt	Pas de temps (s)
Δt_m	Pas de temps associé à la mesure (s)
$\Delta r, \Delta y$	Taille de maillage (m)
$\Delta x, \Delta y$	Pas d'espace (m)
$\Delta X, \Delta Y$	Dimension (m)
η_{aa}	Surtension à l'anode (V)
η_{ca}	Surtension de concentration à l'anode (V)
η_{cc}	Surtension à la cathode (V)
σ_e	Erreur de mesure
∞	Ambiant
<i>Lettres grecques</i>	
α	Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)
ϵ	Émissivité
φ	Flux de chaleur surfacique ($W.m^{-2}$)
λ	Multiplicateur de Lagrange
ρ	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)
ξ	Région
τ	Temps de diffusion thermique (s)
Ω	Condition frontière
σ	Constante de Stefan-Boltzmann ($W.m^{-2}.K^{-4}$)
<i>Indices</i>	
Al	Aluminium

Symboles	Définitions
<i>amb</i>	Ambiant
<i>bain</i>	Bain électrolytique
<i>c</i>	Creuset
<i>comb</i>	Combiné
<i>cell</i>	Cellule d'électrolyse d'aluminium
<i>diff</i>	Diffusion
<i>diss</i>	Dissolution
<i>f</i>	Fusion, final
<i>g</i>	Phase gazeuse
<i>gel</i>	Gelée
<i>i</i>	Initial
<i>I</i>	Nombre total d'échantillon
<i>in</i>	Entrant
<i>l</i>	Phase liquide
<i>liq</i>	Liquidus
<i>m</i>	Pâteux
<i>M</i>	Mesuré
<i>max</i>	Maximum
<i>min</i>	Minimum
<i>o</i>	Valeur initiale
<i>out</i>	Sortant
<i>rad</i>	Radiatif
<i>Ref</i>	Référence
<i>s</i>	Phase solide
<i>sl</i>	Interface solide-liquide
<i>util</i>	Utilisation
<i>w</i>	Mur, ouest
<i>Exposants</i>	
–	Paramètre estimé
·	Volumique
*	Adimensionné
<i>k</i>	Itération en cours
◦	Itération précédente
→	Vecteur
<i>Operations</i>	
<i>d</i>	Dérivée
<i>div</i>	Divergence
δ	Variation infinitésimale
Δ	Variation
∂	Dérivée partielle
\int	Intégration
∇	Nabla

LISTE DES ACRONYMES

Acronymes	Définitions
ACD	Anode-Cathode Distance
ASTM	American Society for Testing and Material
BEM	Méthode des Éléments Finis de Frontière / Boundary Element Method
CPU	Central Processing Unit
DE/OD	Diamètre Extérieur / Outlet Diameter
DI/ID	Diamètre Interne / Inlet Diameter
DSC	Calorimétrie Différentielle à Balayage / Differential Scanning Calorimetry
EM/FS	Étendue de Mesure / Full Scale
GES	Gaz à Effet de Serre
IEA	International Energy Agency
IHTP	Inverse Heat Transfer Problem
LME	London Metal Exchange
LVDT	Linear Variable Differential Transformer
MCP/PCM	Matériau à Changement de Phase / Phase Change Material
MEF/FEM	Méthode des Éléments Finis / Finite Element Method
NR	Non Renseigné
PZT	Piezoelectric Transducer
USGS	United States Geological Survey
USB	Universal Serial Bus
USD	United States Dollar

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 Mise en contexte et problématique

1.1.1 Besoins énergétiques et pollution

Le développement économique d'un pays est étroitement lié à l'accroissement de sa consommation énergétique afin de répondre aux besoins de l'ensemble des secteurs qu'ils soient : résidentiel, commercial, industriel, agricole ou du transport. Au Canada, la consommation d'énergie secondaire (*i.e.* électrique) est passée de 6 936,13 PJ¹ en 1990 à 8 720,2 PJ en 2008, soit une augmentation de 25,7 % [155] à cause notamment d'une économie essentiellement axée sur l'exploitation des abondantes ressources naturelles dont le pays dispose. Malheureusement, ce phénomène a engendré une augmentation des émissions des gaz à effet de serre (GES) qui a été évaluée à 22,8 % pour atteindre les 487,8 Mt éq CO₂ en 2008 [154, 155].

Le gouvernement du Canada a donc adopté des mesures drastiques pour réduire la production des gaz à effet de serre [68, 78] en favorisant le développement d'énergies renouvelables et l'innovation technologique. Des réglementations établissant des normes de rendement et des subventions à l'amélioration de l'efficacité énergétique ont également été mises en place [153]. D'après les données recueillies par l'Office de l'Efficacité Énergétique de Ressources Naturelles Canada en 2009 [156], ces mesures ont permis l'économie de près de 1 560,36 PJ aux contribuables (voir figure 1.1).

Dans le cas du Québec, près de 1 630 PJ d'énergie ont été consommées en 2009 dont 657,4 PJ d'électricité, avec une part du secteur industriel s'élevant à 44,8 % [142]. Les principales entreprises consommatrices d'énergie sont celles travaillant dans le domaine de la production ou de la transformation des métaux (fonte et affinage des métaux, sidérurgie, production d'aluminium). Leur consommation représentait 197 PJ soit 37 % de la consommation énergétique québécoise [142].

¹Pétajoules

Au-delà des impacts environnementaux et énergétiques, le secteur de la production de l'aluminium prend grandement part au développement économique du Québec (emplois [69] : près de 25 000 personnes en 2005 [143] et 10 à 20 % de la performance des indicateurs économiques [11]). Sa croissance est nécessaire mais doit passer par une amélioration du contrôle des procédés de fabrication.

Dans un contexte où le prix de l'énergie est en constante augmentation, des enjeux économiques et stratégiques sont également apparus. L'augmentation de la demande, la diminution des coûts de production et l'innovation technologique ont conduit les industriels à introduire des facteurs pour caractériser la performance et le rendement de leurs installations. C'est le cas notamment des producteurs d'aluminium, qui, en plus de rendement Faraday, tiennent compte du rendement énergétique afin d'améliorer leurs procédés de production d'aluminium [179].

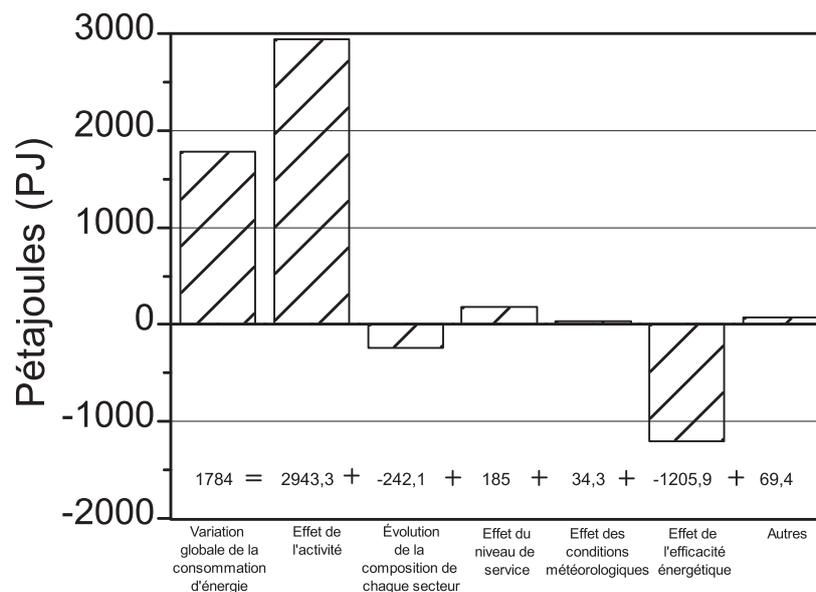


Figure 1.1 Variation de la consommation d'énergie en 2009 [156].

1.1.2 Production d'aluminium et consommation électrique

La production industrielle d'aluminium est en forte augmentation atteignant en 2011 les 44,1 Mt [31, 210]. Troisième producteur mondial, le Canada produit près de 3 Mt d'aluminium primaire [6, 210] soit 6,7 % du marché mondial, avec une utilisation de 95 % de sa capacité de production grâce à la modernisation de ses alumineries [55]. La demande en hausse significative, notamment dans les pays en fort taux de croissance comme la Chine

(voir figure 1.2), s'explique par les propriétés intrinsèques de l'aluminium qui en font un matériau idéal pour remplacer l'acier :

- 2,9 fois plus léger que l'acier ($\rho_{Al} = 2\,700 \text{ kg.m}^{-3}$ [213]²);
- conducteur d'électricité ($36,91 \text{ S.m}^{-1}$ pour de l'aluminium à 99,9 % [213]¹);
- bonne conductivité thermique ($237 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ [213]¹);
- résistant à la corrosion de l'air ($0,5 \mu.\text{an}^{-1}$ [174]¹) et de l'eau grâce à la présence d'une couche de passivation (mince couche d'alumine à la surface);
- traitement de surface facilité (décapage, polissage, anodisation...);
- facile à usiner (fraisage, perçage, lamage, cisaillement, forgeage, cintrage et repoussage [56]);
- absence de propriétés magnétiques [56];
- pouvoir réfléchissant qui dépasse les 90 % une fois poli [213];
- 100 % recyclable;
- inertie chimique et stabilité métallurgique en font un métal adapté à la protection et à la conservation des produits.

La figure 1.2 illustre les efforts du Canada, tant au niveau de l'efficacité énergétique que sur les coûts de production. Chaque tonne d'aluminium produite au Canada en 2009 à coûté 780 USD en considérant une performance moyenne de $16 \text{ MWh t}_{Al}^{-1}$, ce qui représente généralement entre 20 % et 35 % des coûts de production finaux [10, 69, 100]. De plus, en considérant le coût horaire et la productivité du travail, le Canada se retrouve particulièrement bien placé malgré le développement de la production de pays tels que la Chine et l'Inde dans lesquels la main d'œuvre est moins coûteuse [69].

Les alumineries sont cependant confrontées à certains facteurs majeurs limitant leur développement :

- le prix de l'énergie offert aux alumineries est très important;
- le coût de production est encore trop élevé par rapport au prix du marché;
- l'émergence des pays du Moyen-Orient qui n'hésitent pas à réduire le prix du kWh pour attirer les industriels;

²propriétés déterminées à 25 °C

- les investissements lourds visant la modernisation des cuves pour répondre aux réglementations gouvernementales.

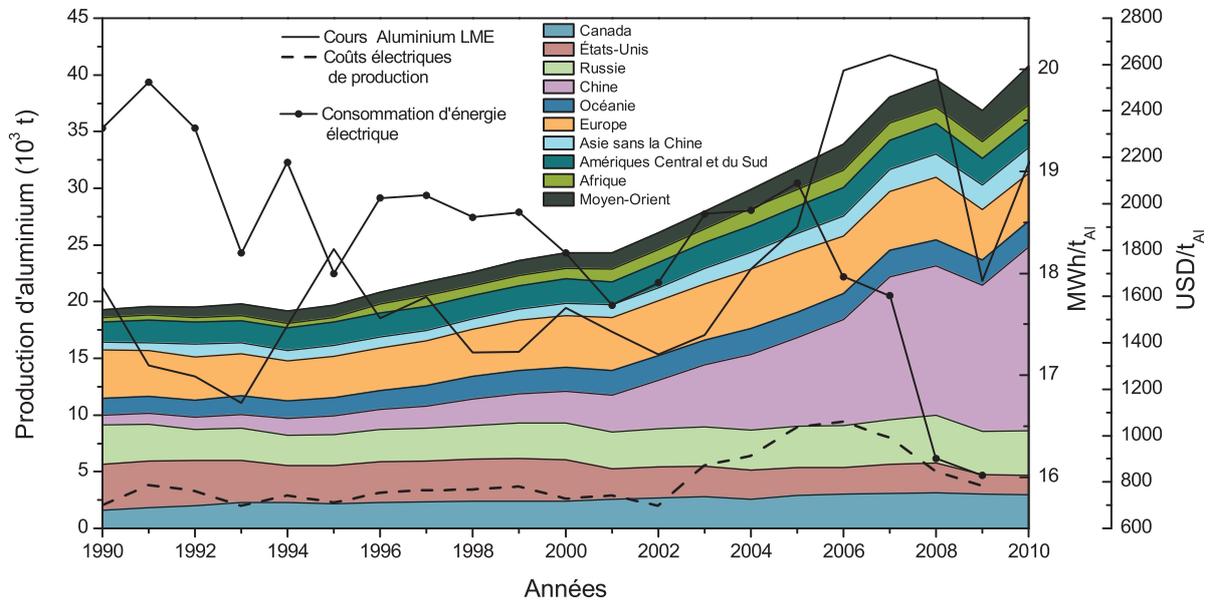


Figure 1.2 Représentations des variations de la production d'aluminium primaire mondiale, de la consommation d'énergie et des coûts électriques par tonne d'aluminium. L'évolution du prix LME de l'aluminium est également présentée. Sources : London Metal Exchange [140], Office de l'Efficacité Énergétique [156], USGS [209], I.E.A - Energy Prices and Taxes [3].

Les alumineries canadiennes, afin de maintenir leur compétitivité, s'appuient aujourd'hui sur une amélioration constante du contrôle et du rendement énergétique de leurs procédés de fabrication. La pollution, la consommation d'énergie (96 % de l'énergie électrique consommée dans une aluminerie sert à l'électrolyse de l'aluminium [20]) sont autant de facteurs que les industriels tentent de réduire. Pour se faire, plusieurs axes de recherche sont envisagés [229] :

- la réduction des émissions de CO₂ dans l'atmosphère ;
- le développement de nouvelles technologies améliorant la production d'aluminium (cathode drainée, anode inerte pour les cuves d'électrolyse, etc.) ;
- la réutilisation des déchets et des produits provenant des procédés de fabrication ;
- l'optimisation de l'efficacité énergétique des cuves Hall-Héroult.

C'est dans ce dernier axe que le cadre du projet s'inscrit. En effet, au sein de la cuve d'électrolyse, de nombreux phénomènes physico-chimiques ont lieu, tels que le transfert de chaleur, transfert de masse, l'électrodynamique, la magnétohydrodynamique, l'électrolyse,

etc. Il est donc nécessaire de comprendre ces phénomènes afin d'optimiser le procédé et sa conception pour diminuer sa consommation énergétique.

1.1.3 L'électrolyse de l'aluminium

L'aluminium, qui constitue presque 8 % de la croûte terrestre [50], est le troisième élément le plus abondant. La principale source d'aluminium est la bauxite essentiellement composée d'hydroxyde d'aluminium (la gibbsite $\gamma\text{Al}(\text{OH})_3$) et/ou de deux polymorphes d'oxyhydroxydes d'aluminium selon la provenance (la boémite $\gamma\text{AlO}(\text{OH})$ et le diaspore $\alpha\text{AlO}(\text{OH})$) ainsi que de quelques impuretés telles que la silice, l'oxyde de fer, le titane et le phosphore. L'extraction d'alumine de la bauxite est réalisée suivant le procédé Bayer [216]. Le procédé électrochimique permettant la fabrication de l'aluminium a été découvert grâce aux travaux de Paul Louis Héroult en France et Charles Martin Hall aux États-Unis, en 1886 [80].

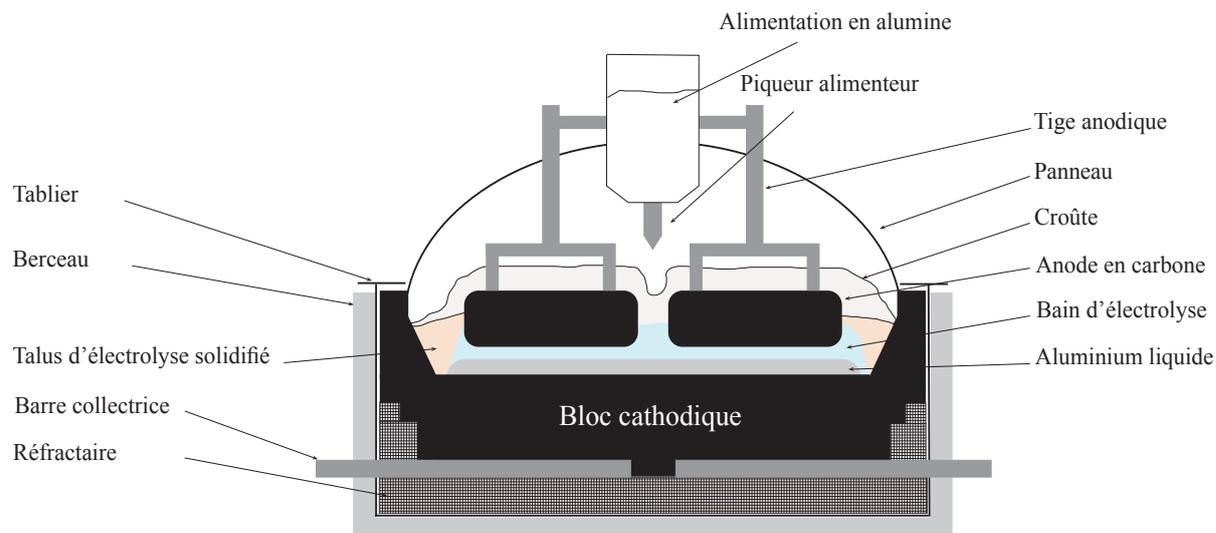


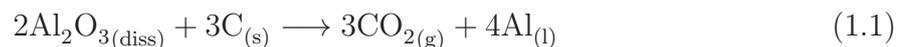
Figure 1.3 Représentation d'une cellule d'électrolyse de l'aluminium.

Dans les cuves modernes à anodes précuites, l'aluminium est obtenu à l'aide du procédé Hall-Héroult *via* l'électrolyse d'oxyde d'aluminium ou alumine (Al_2O_3), dans un bain de sels fondus (électrolyte), au sein d'une cellule de réduction illustrée à la figure 1.3 [80]. L'électrolyte est composé essentiellement de cryolithe (minimum de 70 wt% de Na_3AlF_6 [216]) dans lequel de l'alumine est dissoute. Le point de fusion de la cryolithe est d'environ 1 050 °C mais celui-ci est diminué par l'addition d'alumine. D'autres additifs comme le fluorure d'aluminium (environ 7 wt% AlF_3), le fluorure de calcium (de 4 à 8 wt% de CaF_2 [216]), le fluorure de lithium (environ 7 wt% de LiF [216]) et le fluorure

de magnésium (MgF_2) [216] sont souvent ajoutés pour diminuer le point de fusion et pour améliorer les propriétés électrochimiques du bain [207].

L'aluminium est alors obtenu par réduction de l'alumine dissoute grâce à l'application d'une tension électrique de 4 à 5 volts par cuve générant un courant électrique de plusieurs milliers d'ampères pouvant aller de 60 kA jusqu'à 500 kA [19, 197] (moyenne de 255 kA au Canada [69]). L'énergie ainsi fournie permet le déclenchement des réactions électrochimiques et maintient l'électrolyte fondu par effet Joule à une température entre 955 °C et 965 °C [207, 230]. Le courant continu alimentant la cellule d'électrolyse circule du bloc anodique, à l'aide de barres d'alimentations insérées directement à l'intérieur des anodes, traverse 3 à 6 cm d'électrolyte liquide et se dirige vers les barres collectrices contenues dans le bloc cathodique. Ces dernières acheminent le courant continu aux cuves d'électrolyse suivantes, branchées en série, dans une ligne qui contient typiquement entre 150 à 280 cuves [207, 216]. Les anodes sont généralement fabriquées à base de coke de pétrole et d'un liant calcinés tandis que le bloc cathodique est généralement composé d'antracite ou de graphite [216]. Un caisson et une couche isolante sont installés pour réduire les pertes de chaleur vers l'environnement sur les côtés et le dessous ainsi que pour tenir mécaniquement la structure. Une croûte d'électrolyte et d'alumine solidifiée recouvre le bain en fusion. Elle limite les pertes thermiques et la combustion des anodes à l'air. Un capot est placé au-dessus de la cuve pour limiter les pertes thermiques et capter les gaz fluorés s'échappant à des températures pouvant atteindre 180 °C.

Les anodes précurtes se consomment lors de la réaction globale d'électrolyse présentée ci-dessous et doivent être périodiquement changées [80] :



La réduction d'alumine étant en continu, le bain électrolytique doit être alimenté en alumine à un taux régulier pour limiter les perturbations. Pour cela, des piqueurs alimenteurs cassent la couche de croûte et déposent l'alumine dans le bain liquide où elle peut être dissoute. L'aluminium liquide, ayant une masse volumique plus grande que celle de l'électrolyte ($\rho_{\text{Al}, 960\text{ °C}} \approx 2\,300\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ [213], $\rho_{\text{bain}, 960\text{ °C}} \approx 2\,100\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ [188]), se dépose sur la cathode où il est protégé de l'oxydation par la couche d'électrolyte. Il peut ensuite être extrait périodiquement toutes les 24 h à 48 h par siphonnage.

1.1.4 Point de vue énergétique

Innovation technologique

Les sections 1.1.1 et 1.1.2 ont démontré les divers problèmes que doivent affronter les fabricants d'aluminium. Force est de constater que les coûts d'électricité prennent une part importante des coûts de production, les industries de l'aluminium se concentrent essentiellement sur l'amélioration de l'efficacité énergétique. Des solutions technologiques ont été développées ou sont en cours de développement pour tenter de réduire la consommation énergétique, les émissions de polluants atmosphériques et augmenter la productivité des cuves. Ces innovations technologiques peuvent être classées en deux groupes :

- Le développement de procédés alternatifs n'impliquant pas l'électrolyse de l'alumine. On peut citer par exemple : la réduction carbothermique de l'alumine [79, 231], la réduction de la kaolinite [79, 101], la réduction du chlorure d'aluminium par sodium, magnésium ou manganèse [111], l'électrolyse du chloroaluminate de sodium et du lithium (Procédé ASP) [231]. Ces procédés de fabrication n'ont pas débouché jusqu'à présent sur des réalisations industrielles en raison de leur faible rentabilité, d'une pureté de métal amoindrie ou simplement des raisons technologiques.
- L'amélioration de la cuve Hall-Héroult en effectuant une modification du « design » de la cuve durant la phase de conception (augmentation de l'ampérage, du nombre d'anodes, changement des types de matériaux utilisés et de leur géométrie, cathode drainée, anodes inertes etc.) ou directement sur une cuve existante en installant de nouveaux équipements (développement de capteurs de mesure visant l'amélioration des stratégies de contrôle, modification des systèmes d'alimentation en anode ou en alumine, etc.).

Ce dernier groupe fait l'objet de nombreux travaux de recherche dont le but est de diminuer l'impact de certains phénomènes physiques ayant lieu dans une cellule d'électrolyse en introduisant de nouvelles technologies à faible consommation d'énergie. Une vue d'ensemble de ces facteurs et diverses mesures sont présentées à la section 2 de ce document.

Énergie théorique requise pour une cellule d'électrolyse à anodes précurtes

La consommation théorique d'électricité pour produire un kilogramme d'aluminium dans une cuve d'électrolyse à anodes précurtes en carbone suit la relation suivante [118] :

$$kWh/kg_{Al} = \frac{U_{cell} I_{cell} \Delta t}{m_{Al}} = \frac{z F U_{cell} I_{cell}}{M.I} = \frac{298 U_{cell}}{CE} \quad (1.2)$$

U_{cell} , I_{cell} représentent la tension (V) et le courant (A) aux bornes de la cellule d'électrolyse. m_{Al} , la quantité d'aluminium produite lors de la réaction d'électrolyse. z la valence, le nombre d'électrons échangés par mole de réactifs lors des réactions d'oxydoréduction. Dans le cas de l'aluminium, la valence est égale à 3. La constante de Faraday $F = 96\,485,4$ C.mol⁻¹; M : la masse molaire de l'aluminium; CE indique l'efficacité de courant de la cellule d'électrolyse (%) correspondant au ratio entre le courant réellement consommé et celui théoriquement requis pour produire un kilogramme d'aluminium. Actuellement, la production d'un kilogramme d'aluminium nécessite entre 13 MWh et 17 MWh [10, 176] d'énergie électrique pour les alumineries les plus performantes.

Le courant minimum théorique requis pour l'électrolyse est fixé selon la loi de Faraday à 2,98 Ah.kg_{Al}⁻¹. Cette valeur est déterminée en considérant des conditions parfaites *i.e.* aucune réaction inverse ou parasite, pas de limitation dans la disponibilité des espèces ioniques, pas de perte de chaleur.

La tension minimale requise, pour que la réaction dans le bain électrolytique ait lieu, est égale à la force électromotrice (E_{bmf}) qui est la somme du potentiel à l'équilibre (E_o) et des surtensions de surface à l'anode (η_{aa}) et la cathode (η_{cc}) ainsi que de la surtension de concentration à l'anode (η_{ca}) [88]. Ainsi :

$$E_{bmf} = E_o + \eta_{cc} + \eta_{aa} + \eta_{ca} \quad (1.3)$$

Cette tension minimale, de 1,7 V à 1,8 V (960 °C) [89], dépend de la densité de courant, de la taille et du type d'électrodes utilisées, de la température et de la composition de l'électrolyte.

Une cellule d'électrolyse typique fonctionne à environ 4,2 V à 960 °C. La différence de tension avec la force électromotrice est due aux chutes de voltage (externe, à l'anode, à la cathode, dans le bain...). En intégrant cette tension de cellule d'électrolyse dans l'équation 1.2 et en assumant une efficacité de courant de 90 %, la consommation d'électricité pour produire un kilogramme d'aluminium est de 13,9 kWh [89].

Du point de vue thermodynamique, Haupin et Kvande [89] ont estimé la quantité d'énergie minimale nécessaire à la réaction d'électrolyse en utilisant les équations suivantes :

$$W_{el} = \Delta H + Q \quad (1.4)$$

$$\Delta H = \underbrace{\Delta H_{réaction}}_{\text{enthalpie de réaction}} + \underbrace{\sum_{i=1}^n \xi_i \Delta H_{r_i, T_{amb} \rightarrow T_{bain}}}_{\text{variation d'enthalpie liée à la chauffe de chaque réactif}} \quad (1.5)$$

Avec W_{el} l'énergie électrique fournie au procédé (J), ΔH l'énergie totale de réaction (J), Q les pertes de chaleur totales (J) et ξ_i le coefficient stœchiométrique de l'espèce chimique i .

Cette quantité d'énergie est estimée à 6,3 kWh (90 % CE, à 960 °C) et correspond à l'énergie minimale consommée à la production d'un kilogramme de métal. Il y a donc environ 7 kWh de perdus sous forme de chaleur vers l'environnement [50, 88, 89] soit un rendement énergétique de 50 %.

Pertes thermiques typiques d'une cellule d'électrolyse

Les progrès observés, dans les cuves modernes, sont principalement dus à l'amélioration de la stabilité électromagnétique, de la chimie du bain, du design des électrodes, du réseau d'électrodes ainsi qu'à un régime d'alimentation optimal et à un meilleur contrôle du procédé. Cependant, entre 40 % et 50 % d'énergie électrique est encore perdue sous forme de chaleur dans l'environnement. Une distribution typique des pertes de chaleur pour une cellule d'électrolyse est illustrée à la figure 1.4.

Les pertes thermiques s'élèvent à près de 50 % sur la partie supérieure de la cuve [75]. Celles-ci sont affectées d'abord par le changement des anodes, la quantité de croûte présente, les systèmes d'extraction des gaz et d'alimentation en alumine. Quant aux pertes thermiques au niveau des parois latérales, elles représentent la seconde source de perte de chaleur à près de 35 %. Ces dernières sont influencées par la structure et la composition des murs latéraux ainsi que de la ventilation présente autour de la cuve. En effet, la conception même de la cuve permet la formation d'une couche d'électrolyte solidifié (ou gelée) protectrice sur les parois latérales dont le rôle est discuté plus précisément dans la section 1.1.5.

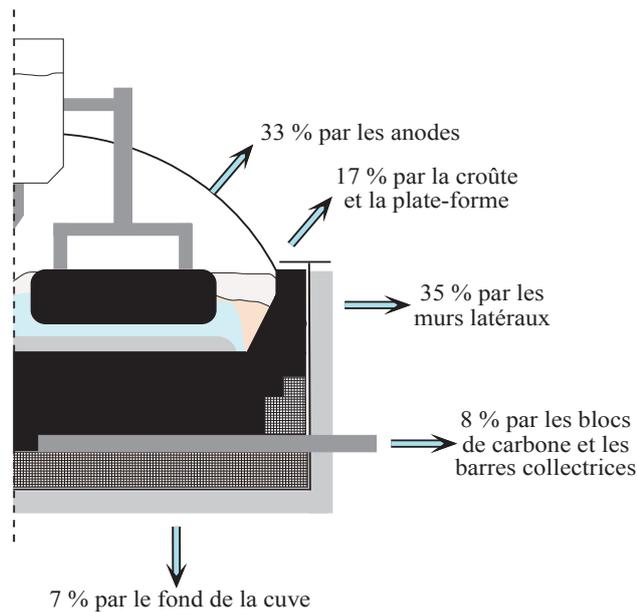


Figure 1.4 Répartition des pertes dans une cellule d'électrolyse en régime établi [179].

1.1.5 Rôle de la gelée

Étant donné le bon rendement Faraday (environ 90 % voire 95 % pour les cuves les plus modernes) et le fort ampérage utilisé, l'optimisation des coûts énergétiques peut être réalisée par la réduction des surtensions à l'origine des pertes thermiques. L'effet Joule est provoqué par les différentes couches résistives que le courant traverse et particulièrement par le bain électrolytique qui est responsable d'une surtension de 1,6 V à 2 V [118, 159]. Cette résistivité est due à deux facteurs :

- la faible conductivité électrique de l'électrolyte (210 S.m^{-1} à 240 S.m^{-1} [42, 43, 179] versus $350 \cdot 10^5 \text{ S.m}^{-1}$ pour l'aluminium liquide [213]) ;
- la surtension provoquée par la présence de bulles dans le bain (de 0,15 V à 0,35 V [118, 168]).

Afin de maintenir l'équilibre thermique de la cellule d'électrolyse, une partie de la chaleur créée par effet joule est évacuée par le côté de la cuve. La température des murs latéraux est alors inférieure à la température de fusion du bain et une couche de gelée (ou talus) est formée [227]. Il faut noter qu'aucun matériau ne résiste à la pénétration et aux attaques chimiques du bain électrolytique liquide à la température d'opération de la cellule. La formation de cette gelée est essentielle et assure la protection de la structure.

Lorsqu'une perturbation de la température du bain a lieu, le flux thermique correspondant va en grande partie être absorbé par les parois latérales *via* une modification de l'épaisseur de la gelée de manière à rétablir l'équilibre thermique de la cellule d'électrolyse [114, 178, 189]. La présence de la gelée permet de stabiliser le champ de température à l'intérieur de la cuve. Lorsque la température interne varie, la gelée réagit immédiatement et contrecarre ces variations [25, 203]. Or, la cuve d'électrolyse est soumise à diverses conditions d'opération qui perturbent son équilibre telles que l'ajout d'alumine, la hausse de la concentration en fluorure d'aluminium, l'effet d'anode, le remplacement des anodes et les transferts de bain et de métal en fusion. Ces perturbations modifient alors constamment l'épaisseur de la gelée [33, 192, 230].

Si la température du bain est trop élevée, la couche de gelée peut fondre partiellement voire complètement. Le mur de côté est alors en contact direct avec le bain. Les faibles viscosité et tension superficielle de la cryolithe liquide, lui permettent de pénétrer facilement dans les interstices et les pores des murs internes de la cellule (bulle n°5, figure 1.5) et d'attaquer la paroi menant à un taux d'érosion chimique d'environ $1,3 \text{ mm.j}^{-1}$ [192]. Si cette situation perdure, la durée de vie de la cellule s'en retrouve réduite [227].

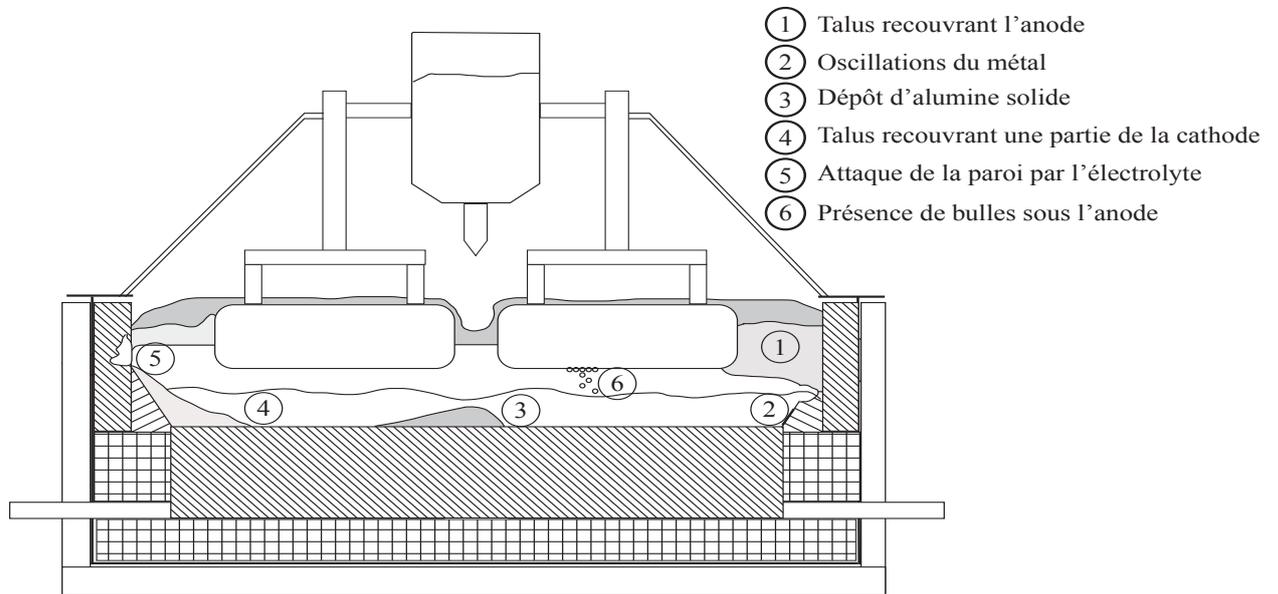
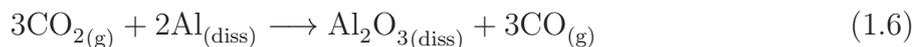


Figure 1.5 Représentation de l'influence de la couche de gelée sur la cellule d'électrolyse d'aluminium.

À l'inverse, opérer une cuve à de trop faibles températures va faire croître l'épaisseur du talus qui va venir recouvrir une partie des anodes (bulle n°1, figure 1.5). Le changement des anodes devient donc plus difficile. L'alumine se dissout moins rapidement et risque de

se déposer en dessous de la couche d'aluminium liquide (bulle n°3). Le talus peut également isoler électriquement une partie de la cathode (bulle n°4) et réduire alors la surface disponible à l'aluminium liquide. Les lignes de courant sont alors déformées favorisant leur composante horizontale [206]. Ce courant horizontal produit alors des forces électromagnétiques causant de grandes oscillations de métal (bulle n°2). Ces dernières provoquent des instabilités hydrodynamiques, des variations du voltage, une diminution locale de la distance inter-polaire et réduit le rendement Faraday de la cellule [15] en favorisant la réaction chimique inverse présentée à l'équation 1.6 [80]. Sous l'effet des oscillations de l'interface bain-métal et de la diffusion, l'aluminium se dissout dans le bain, puis remonte vers la couche gazeuse (bulle n°6) à cause des forts mouvements convectifs [54], des bulles et de l'effet Marangoni, où il est réoxydé suivant l'équation chimique suivante :



Actuellement, les systèmes de contrôle de cuve existants sont encore imprécis. Les cuves se retrouvent régulièrement sans couche de gelée, surtout après les effets d'anodes. Il est alors primordial de déterminer l'évolution temporelle de la gelée de manière à optimiser le contrôle du procédé et son rendement.

1.2 Définition du projet de recherche

Les alumineries misent donc sur l'innovation pour accroître le contrôle de leur procédé et la recherche des paramètres optimaux d'opération. La plus grande difficulté lors de la mise au point d'un système de contrôle efficace, est la disponibilité en temps réel des informations du procédé. L'environnement d'une cuve d'électrolyse n'est, de plus, pas propice aux mesures. Les hautes températures, le champs magnétique, les attaques chimiques, le dégagement de gaz nocifs et les opérations régulières sur les cuves, rendent difficile la mesure des paramètres d'optimisation. À ce jour, la chute de voltage d'une cuve est la principale mesure en continu qui est exploitée par le contrôle du procédé [118]. D'autres mesures sont effectuées manuellement, de manière périodique, telles que la composition du bain, la température, la quantité de métal liquide. Toutes ces informations permettent de déterminer la teneur en alumine du bain et la distance anode-cathode pour que les systèmes de contrôle puissent prendre les actions appropriées (*i.e.* déplacer les anodes, alimenter le bain en alumine et ajouter des additifs chimiques).

Quant à la couche de gelée, la mesure directe de son épaisseur n'est effectuée que très rarement car celle-ci est souvent difficile à obtenir, coûteuse et perturbe la stabilité de la cuve d'électrolyse. Malgré l'importance de connaître la position et le profil de ce front de solidification (voir section 1.1.5), il n'existe pas à ce jour de méthode de mesure en continu, fiable et précise.

Le projet de recherche proposé ici vise à remédier à ce problème en développant une méthode de mesure dite "indirecte" (sans perturbation physique du milieu considéré) de la couche de gelée ou plus précisément de répondre à la question suivante : Est-il possible de déterminer l'évolution du front de solidification d'un gel, dans un réacteur métallurgique à haute température, *via* l'utilisation de méthodes de mesure indirectes et quelles sont les difficultés et les limitations de ces systèmes ?

Le mise au point de ce type de mesure associé à une modélisation des phénomènes thermiques (à l'aide de modèles directs et de modèles inverses) permettrait d'établir de nouvelles stratégies pour contrôler le profil et l'épaisseur de gelée. Les pertes de chaleur, inhérentes au procédé, pourraient être significativement réduites et mèneraient à l'amélioration des performances énergétiques du procédé.

1.3 Objectifs du projet de recherche

Le projet a pour ambition d'amener les connaissances supplémentaires pour mieux comprendre et évaluer les mécanismes associés aux changements de phase solide-liquide de matériaux tels que la cryolithe. En outre, le développement d'un système de mesure indirecte permettra la détermination de l'évolution transitoire de la formation d'un gel au sein de réacteurs métallurgiques à haute température. Cette nouvelle technique de mesure sera notamment testée sur des cellules d'électrolyse d'aluminium afin d'évaluer ses performances dans un cadre industriel et sa possible intégration dans les futurs systèmes de contrôle.

1.3.1 Objectif principal

Un banc d'essais représentatif des procédés à haute température a été spécialement conçu pour étudier le phénomène de changement de phase dans un environnement contrôlé. Ce montage expérimental a servi d'une part à la conception des techniques de mesure indirectes du front de solidification et d'autre part à l'obtention des informations nécessaires

à la validation et à l'optimisation des modèles numériques utilisés pour la prédiction de l'interface diphasique et du comportement thermique d'un gel sur une surface refroidie.

1.3.2 Objectifs spécifiques

Afin de pouvoir réaliser la conception de ces systèmes de mesure, le projet de recherche doit passer par la réussite de certains objectifs spécifiques énumérés ci-dessous :

1. Développer et valider les méthodes de mesure indirectes du front de solidification à partir d'une cartographie infrarouge des températures des parois externes du montage.
2. Démontrer la qualité des données recueillies en s'appuyant de mesures directes du front de solidification, dans des conditions similaires à celles présentes dans les cuves d'électrolyse.
3. Concevoir et caler un modèle numérique direct simulant les phénomènes thermiques au sein du banc d'essais.
4. Valider le modèle numérique inverse permettant de prévoir le comportement instationnaire de l'interface de changement de phase solide-liquide se produisant à l'intérieur de fours métallurgiques.

1.4 Contributions originales

Les développements réalisés jusqu'à présent, dans l'étude du comportement des matériaux à changement de phase (MCPs) sont largement documentés. De nombreux modèles théoriques et numériques (voir section 2) pour déterminer l'évolution du profil de gelée ont été établis. Certaines études, détaillées à la section 2, abordent également la conception de systèmes de mesure visant à évaluer la position du front de solidification. Cependant ceux-ci ne peuvent généralement pas s'appliquer aux MCPs corrosifs et dont la température de fusion est élevée comme dans le cas de la cryolithe.

Par rapport aux méthodes existantes, l'originalité du système de mesure développé dans le présent document est qu'il associe une mesure non-intrusive avec un modèle inverse prédictif. De cette manière, il est possible de déjouer les contraintes imposées par la production d'aluminium et de satisfaire certains critères spécifiques demandés à la mesure de l'épaisseur de gelée dans les alumineries :

- investissements en temps de mesure et en traitement des données doivent être minimaux ;
- faible encombrement du système de mesure ;
- mobilité du système de mesure ;
- précision de la mesure.

Le caractère non-intrusif de ce type de système de mesure permet d'étendre son utilisation à différents secteurs de l'industrie comme l'agroalimentaire où une vitesse de congélation et une épaisseur optimales de glace doivent être obtenues pour la congélation des aliments. Il s'applique aussi aux systèmes de moulage de métal liquide où une vitesse de solidification précise est requise pour obtenir les propriétés mécaniques voulues. Son utilisation peut également être appliquée à la détection de gelée dans les pipelines, au stockage d'énergie solaire, au stockage de la chaleur et au contrôle de systèmes assujettis à un chauffage périodique.

Les contributions du projet de recherche dans le domaine du transfert de chaleur sont multiples et sont listées ci-dessous :

- la conception d'un montage expérimental représentatif des procédés métallurgiques capable de résister aux hautes températures ($\approx 1\ 000\ ^\circ\text{C}$) sous atmosphère contrôlée ;
- le développement de capteurs pour mesurer le front de solidification sous environnement corrosif et à haute température ;
- l'étude dynamique de la formation d'un gel sur une surface refroidie en utilisant différents matériaux à changement de phase.

1.5 Plan du document

Cette thèse par articles est composée de sept chapitres.

À la suite de l'introduction, une revue de littérature est présentée. Un état de l'art sur les différentes innovations technologiques liées à la réduction des pertes thermiques des cuves d'électrolyse est réalisé. Dans le même chapitre, les principales méthodes de modélisation et de mesure du changement de phase sont présentées.

Dans le chapitre 3, le montage expérimental sera détaillé ainsi que les différents systèmes de contrôle et de mesure utilisés.

Le chapitre 4, quant à lui, est tiré d'un article dédié à la validation du montage expérimental et des capteurs de mesure développés *via* l'utilisation de deux matériaux à changement de phase : le zinc et les sels fondus.

Au chapitre 5, la méthode numérique directe considérée permettant de modéliser le problème de changement de phase est décrite. Le choix de certains paramètres tels que les discrétisations temporelles et spatiales est abordée. Les tests numériques pour valider le travail de programmation sont effectués.

Enfin, un article, présenté au chapitre 6, est consacré à la validation d'une méthode inverse basée sur une approche pseudo 2D qui est utilisée pour prédire l'évolution du profil de gelée à l'intérieur du banc d'essai développé.

Le résumé des principaux résultats obtenus et des améliorations pouvant être apportées aux systèmes de mesure ainsi que les perspectives de développements futurs sont présentés en conclusion.

CHAPITRE 2

REVUE DE LA LITTÉRATURE

La volonté d'analyser et de modéliser les phénomènes physico-chimiques présents au sein de la cellule d'électrolyse sont à l'origine de nombreuses études ayant pour objectifs communs l'amélioration de l'efficacité énergétique, du rendement de production d'aluminium et l'augmentation de la durée de vie de la cuve. Ce chapitre a pour but de lister les principales études réalisées visant à l'amélioration du rendement énergétique et la durée de vie des cuves d'électrolyse d'aluminium et de démontrer le rôle et l'importance des phénomènes thermiques, notamment du changement de phase, se produisant dans le procédé industriel décrit au chapitre 1. La seconde partie du chapitre est consacré aux études spécifiques sur les phénomènes macroscopiques de la solidification et de la fusion pour permettre de saisir et de cerner l'originalité de ce projet de recherche. Les principaux travaux de recherche menés sur la modélisation et l'analyse du changement de phase seront présentés. Puis une comparaison des techniques de mesure du changement de phase sera réalisée. Pour terminer, une description du principe des méthodes inverses pour prédire l'évolution transitoire d'un changement de phase solide-liquide sera proposée.

2.1 Nouvelles technologies dans les cuves d'électrolyse

La conception et le contrôle des cellules d'électrolyse d'aluminium se révèlent difficiles à la vue des phénomènes physiques présents. La température extrême (≈ 950 °C) qui y règne et la présence de l'électrolyte corrosif limitent le choix de matériaux pour la structure de la cuve [92, 186]. La nécessité d'augmenter la productivité et le rendement énergétique des cuves ainsi que la volonté de réduire leur impact environnemental sont à la source de différents travaux de recherche sur le développement de nouvelles technologies et de techniques résumés au tableau 2.1.

Tableau 2.1 Revue des nouvelles technologies employées pour l'optimisation des cuves d'électrolyse.

Référence	Axe de recherche	Fonctionnement du système	Remarques
[92, 186]	Structure de la cuve	Matériaux réfractaires à optimiser pour une meilleure stabilité de la cuve	Corrosivité de l'électrolyte limite le choix des matériaux réfractaires
[12, 67, 95, 129, 191, 201, 221]	Contrôle de la cuve	Procédure numérique ou action à réaliser sur certains paramètres d'opération de la cuve en fonction des mesures réalisées	Le contrôle permet une meilleure stabilité de la cuve suite à diverses perturbations liées au fonctionnement de la cuve et améliore son rendement
[7, 110, 241]	Distance anode-cathode	Optimisation de la distance entre les électrodes de la cuve pour réduire les pertes énergétiques liées à la résistance du bain électrolytique comprise entre elles	Cette distance est limitée par la présence de bulles liées aux réactions chimiques qui peuvent augmenter drastiquement la tension de la cuve
[117, 128, 138, 147, 170, 214, 241]	Effets d'anodes	Réduction de la durée et du taux des effets d'anodes <i>via</i> un meilleur contrôle de l'alimentation et de la teneur en alumine du bain électrolytique	Développement de capteurs de mesure spécifiques et de nouvelles techniques d'alimentation
[57, 115, 184]	Forme des électrodes	Optimisation de la géométrie des anodes visant à améliorer l'évacuation des bulles de gaz en dessous de celles-ci	∅
[97, 119, 231]	Anodes inertes	Réduction de la consommation des anodes au cours de la réaction d'électrolyse	Permettent de réduire les pertes thermiques liées au changement d'anodes et éliminent la consommation de carbone graphitique - meilleure stabilité - augmentation de la tension d'alimentation aux bornes de la cuve

Suite page suivante

Tableau 2.1 – Suite du tableau précédent.

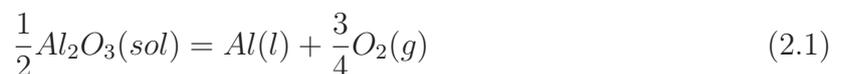
Référence	Axe de recherche	Fonctionnement du système	Remarques
[71, 126, 167, 231]	Cathodes drainées	Revêtement spécifique sur la cathode pour augmenter sa mouillabilité à l'aluminium coulé à un système de drainage	Réduction de la distance entre l'anode et la cathode <i>via</i> une diminution de la couche d'aluminium liquide et de la formation de vagues due aux champs magnétiques
[9, 27, 49, 62]	Modèles multi-physiques	Développement de modèles caractérisant plusieurs phénomènes physiques présents dans la cuve	Tributaires de la puissance de calcul et de la précision des modèles désirée
[1, 64, 65, 86, 91, 94, 149, 222]	Ventilation de cuves d'électrolyse	Contrôler le refroidissement des parois latérales des cuves et évacuer les gaz formés dans la cuve	Optimisation de l'équilibre thermique des cuves mais l'impact sur le profil de gelée est généralement estimé et non pas mesuré expérimentalement
[16, 29, 131, 191, 243]	Outils et instrumentation	Développement de capteurs et techniques de mesure pour évaluer des grandeurs spécifiques nécessaires au contrôle et aux diagnostics de cuve	Limités par la température de fonctionnement de la cuve, la corrosivité de la cryolithe et la présence de forts champs magnétiques

L'émergence de l'informatique a permis le développement de stratégies de contrôle du procédé visant à augmenter la stabilité et la performance de la cuve et à réduire les phénomènes dégradant sa durée de vie et son efficacité énergétique [67, 95, 129, 191, 201]. De nouvelles méthodes ou procédures ont vu le jour pour limiter également les périodes où le rendement chute drastiquement. Cela se produit lors du changement d'anode et de l'alimentation en alumine, lors de l'extraction de l'aluminium liquide et lors des phases de maintenance [12, 221].

La productivité des cuves est liée à l'intensité qui peut être fournie aux cuves. L'augmentation du courant d'alimentation de la cuve entraîne une augmentation de la consommation spécifique (kWh.t^{-1}). Pour réduire cette puissance consommée, une solution consiste à réduire la distance anode-cathode (ACD) ($\approx 4,5$ cm pour une cuve d'électrolyse classique) et ainsi diminuer la chute de voltage causée par la résistance du bain électrolytique. Cette ACD doit être cependant suffisante pour éviter le court-circuit de l'anode avec la couche d'aluminium liquide en mouvement causée par des effets magnétohydrodynamiques et pour assurer une température de bain suffisante. Des études numériques et expérimentales tentent d'optimiser cette ACD [7, 110, 241].

Un effort est également fait sur la réduction de la fréquence et la durée des effets d'anode qui correspondent à la formation d'une poche de gaz entre les électrodes lorsque le taux d'alumine dans le bain électrolytique diminue en dessous du niveau nécessaire à la réaction d'électrolyse ou simplement par la génération de bulles de dioxyde de carbone au niveau de l'anode. Cette poche augmente alors la tension de la cuve et est à l'origine des émissions de perfluorocarbures, des gaz ayant un potentiel de réchauffement global entre 5 700 et 11 900 fois plus élevé que celui du CO_2 [157]. On peut noter notamment que des stratégies pour réduire la durée des effets d'anode ont été développées [138, 147, 170]. Des équipements pour contrôler le taux d'alimentation en alumine [117, 128] et pour mesurer les effets d'anodes ont été créés [147, 214]. Des travaux ont même abordé la géométrie de l'anode pour faciliter l'évacuation de la couche de gaz [57, 115, 184].

Un autre axe concerne plus particulièrement le développement d'anodes inertes pour l'élimination de la formation de CO_2 , CO , CF_4 et C_2F_6 . L'anode, généralement fabriquée en cermet (combinaison de céramique et d'alliage métallique), ne se consomme plus puisque la réaction à l'anode devient :



Le point négatif est l'augmentation de la consommation énergétique car le potentiel réversible pour l'équation 2.1 est d'environ 2,25 V [97, 119, 231] au lieu de 1,2 V pour une anode en carbone (voir section 1.1).

Une autre technologie concerne l'utilisation d'une cathode drainée permettant de diminuer la distance entre les électrodes. Un revêtement particulier généralement en diborure de titane (TiB_2) est appliqué sur la cathode la rendant mouillable par l'aluminium. Un système de drainage est réalisé pour évacuer facilement le métal fondu ne laissant qu'une fine couche d'aluminium liquide sur la cathode. La réduction de la couche d'aluminium évite la formation de vagues engendrée par les forces magnétiques au sein de la cuve [71, 126, 167, 231].

D'énormes progrès ont aussi été réalisés dans la modélisation des cuves d'électrolyse. Des modèles multi-physiques sont désormais disponibles couplant notamment les phénomènes magnétohydrodynamiques [27, 28, 82, 175, 182, 238], électriques, mécaniques et thermiques [9, 49, 61, 62, 83, 235, 236, 242] assurant une optimisation du rendement énergétique et de la tenue mécanique de la cuve. Un compromis est cependant à faire entre la précision des simulations numériques et le temps de calcul dépendant principalement des facteurs suivants :

- le choix des équations gouvernantes et des hypothèses simplificatrices ;
- le choix de la géométrie à simuler (2D, 3D, axe de symétrie etc.) ;
- précision des maillages spatial et temporel.

Pour terminer, au niveau de l'optimisation thermique des cuves, certaines études notables abordent les thèmes suivants :

- la ventilation interne de la cuve d'électrolyse pour l'évacuation et le traitement des émissions mais assurant également un refroidissement de la cuve [1, 86, 94, 121] ;
- le refroidissement des parois latérales par échangeurs thermiques [65, 91, 149] ou par convection forcée [64, 222] ;
- le développement d'outils et d'instrumentation permettant le diagnostic thermique, électrique ou chimique des cuves [16, 29, 131, 191, 243] ;
- le développement de modèles numériques modélisant le transfert de chaleur au niveau de la cuve et la formation de la gelée décrite plus précisément aux sections 2.2.1 - 2.2.2.

2.2 Étude du changement de phase

Le changement de phase liquide-solide joue un rôle important dans de nombreux procédés industriels tels que le stockage de chaleur, la congélation alimentaire et la métallurgie. Cependant, l'intérêt d'étudier le changement de phase solide-liquide dans le développement et la modélisation des cellules d'électrolyse n'est apparu que depuis les années 70. Les principaux modèles thermiques des cellules d'électrolyse seront décrits dans la section suivante ainsi que les modèles classiques de résolution du problème de Stefan étant et/ou pouvant être utilisés dans la modélisation des cuves d'électrolyse (voir tableau 2.2).

2.2.1 Modèles statiques pour les cuves d'électrolyse

Haupin a été l'un des premiers artisans à s'intéresser à l'étude du changement de phase de la cryolithe au sein des cellules d'électrolyse de l'aluminium. Il a développé notamment un modèle statique unidimensionnel se basant sur la théorie des résistances thermiques [87]. Il a considéré que la chaleur provenant du bain électrolytique traverse unidirectionnellement une succession de couches latérales telles que le bain électrolytique, la couche de gelée et les parois composant le mur latéral de la cuve d'électrolyse. Ces parois sont considérées isolées sur leurs faces supérieures et inférieures. L'expression de l'épaisseur de la couche de gelée, x_{sol} est alors :

$$x_{sol} = k_{gel} A_{gel} \left[\frac{\Delta T_L}{h_{bain} A_{gel} \Delta T_S} - \sum_i^N R_i - \frac{1}{h_{amb} A_{gel}} \right] \quad (2.2)$$

Avec $\Delta T_S = T_{bain} - T_{liq}$ représentant la surchauffe du bain électrolytique et $\Delta T_L = T_{bain} - T_{amb}$ étant la différence de température maximale entre le liquidus et la température ambiante. k_{gel} et A_{gel} sont respectivement la conductivité et l'aire de la surface latérale protégée par la gelée. h_{bain} et h_{amb} sont les coefficients de transfert thermique global entre les interfaces bain/gelée et mur latéral/milieu ambiant ; R_i est la résistance thermique de la couche de matériau i formant le mur latéral.

Tableau 2.2 Revue des principaux travaux portant sur l'étude du changement de phase.

Référence	Objectifs	Type d'analyse					Géométrie	Maillage	Méthode de résolution	Remarques
		Exp	Numérique			An				
			1D	2D	3D					
[87]	Représentation simplifiée du transfert de chaleur sur les parois latérales de cuve d'électrolyse d'aluminium					x	Superposition de couches	∅	Résistances thermiques équivalentes	Permet d'évaluer grossièrement les phénomènes thermiques / pas utilisable pour le contrôle de cuve
[134]	Comparaison du modèle enthalpique avec la méthode industrielle		x				Cylindrique	Fixe	Méthode des volumes finis	Méthode industrielle plus rapide mais la méthode enthalpique est plus adéquate dans le cas de perturbations thermiques
[32]	Performance des cuves d'électrolyse <i>via</i> un modèle thermique purement conductif	x		x			Section de cuve d'aluminium	Adaptatif	Méthode des éléments finis	Permet d'évaluer le comportement thermique de cuve pour différents cas d'opération
[114]	Simplification du transfert de chaleur sur les parois latérales et supérieures de cuve d'électrolyse d'aluminium			x		x	Superposition de couches	∅	Résistances thermiques équivalentes	L'équilibre thermique des cuves est tributaire des pertes thermiques latérales et de celles au-dessus de la cuve

Suite page suivante

Tableau 2.2 – Suite du tableau précédent.

Référence	Objectifs	Type d'analyse					Géométrie	Maillage	Méthode de résolution	Remarques
		¹ Exp	Numérique			² An				
			1D	2D	3D					
[4]	Revue des différents modes de solidification et de fusion		x			x	∅	Divers systèmes de résolution	∅	
[192]	Revue des différentes perturbations d'une cuve en opération					x	∅	Résistances thermiques équivalentes	<i>Idem</i> référence [87]	
[230]	Revue des différentes perturbations thermiques d'une cuve en opération		x				∅	Basée sur les résistances thermiques équivalentes	<i>Idem</i> référence [87]	
[33]	Revue de la thermo-dynamique, de l'électrochimie et des pertes de chaleur de cuves d'électrolyse		x				∅	Résistances thermiques équivalentes	<i>Idem</i> référence [87]	
[227]	Modélisation du transfert de chaleur entre le bain et la gelée dans une cuve d'électrolyse <i>via</i> une formulation enthalpique	x	x	x			Fixe & mobile	Méthode des volumes finis	La modélisation des pertes de chaleur dynamique représente mieux les phénomènes observés expérimentalement	

Suite page suivante

Tableau 2.2 – Suite du tableau précédent.

Référence	Objectifs	Type d'analyse				Géométrie	Maillage	Méthode de résolution	Remarques
		Exp	Numérique						
			1D	2D	3D				
[228]	Modélisation dynamique de la gelée		x			Axiale	Fixe & mobile	Méthode des différences finies	Le modèle a permis d'estimer un coefficient d'échange de chaleur entre le bain et la gelée de $830 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$
[205]	Modélisation dynamique de la gelée	x	x			Axiale	Fixe	Formulation enthalpique	Permet d'évaluer les impacts des opérations sur les cuves mais les profils de gelée ne peuvent être évalués
[77]	Modélisation dynamique du changement de phase pour le stockage à chaleur latente	x		x		Cylindrique	Fixe	Capacité thermique effective <i>via</i> méthode des éléments finis	Nombreuses références aux modèles de changement de phase existants
[244]	Modélisation dynamique du changement de phase isotherme	x	x			Rectangulaire & cylindrique	Fixe	Formulation enthalpique	\emptyset
[66]	Modélisation dynamique à haute température du changement de phase	x		x		Cylindrique	Fixe	Formulation enthalpique	Utilisation des équations aux différences finies

Suite page suivante

Tableau 2.2 – Suite du tableau précédent.

Référence	Objectifs	Type d'analyse				Géométrie	Maillage	Méthode de résolution	Remarques
		¹ Exp	Numérique						
			1D	2D	3D				
[109]	Comparaison de modèles thermiques simulant le changement de phase dans une enceinte cylindrique	x				Cylindrique	Fixe	Modélisation quasi-statique	Différents modèles thermiques étudiés couplant conduction, convection et génération de chaleur
[73, 106, 152, 220, 234]	Différents modèles de changement de phase utilisant la méthode des éléments finis de frontière et autres modèles connexes	x	x			Diverses géométries	Fixe	Méthode des éléments finis de frontière	Discretisation de la surface du domaine au lieu de son volume mais plus de risques de divergence numérique
[13, 18, 51, 116, 130, 146, 165, 185]	Plusieurs modèles de changement de phase utilisant la méthode des éléments finis et autres méthodes connexes		x			Diverses géométries	Mobile	Méthode des éléments finis	Nécessitent de déplacer le maillage et de refaire le maillage à chaque pas de temps pour suivre la propagation de la discontinuité correspondant à l'interface solide-liquide mais des géométries plus complexes peuvent être modélisées

Suite page suivante

Tableau 2.2 – Suite du tableau précédent.

Référence	Objectifs	Type d'analyse				Maillage	Méthode de résolution	Remarques
		¹ Exp	Numérique					
			1D	2D	3D			
[40, 105, 139]	Modèles de changement de phase utilisant la méthode des éléments finis étendus		x	x		Fixe	Méthode des éléments finis étendus	Permettent de suivre une discontinuité sans modifier le maillage - géométries complexes peuvent être modélisées

¹ Symbole pour expérimental.

² Symbole pour analytique.

Ce modèle analytique est souvent une référence pour le développement des stratégies de contrôle et la validation de modèles de changement de phase plus complexes [134]. Il est parfois utilisé pour donner des estimations des pertes de chaleur dans des zones spécifiques de la cellule électrolytique ou pour évaluer grossièrement l'épaisseur de gelée formée [32]. Cependant, ce modèle n'est pas adapté pour évaluer précisément le profil de la gelée car le coefficient de transfert thermique global h_{bain} est une donnée difficilement mesurable expérimentalement et plus spécifiquement le modèle ne permet pas de prédire la formation de gelée en dessous de la couche de métal (ou pied de talus) et/ou l'apparition de points chauds [133]. Un modèle développé par Kiss et Dassylva-Raymond [114] s'affranchit du coefficient thermique global h_{bain} et est plus représentatif des phénomènes physiques puisque le modèle s'appuie sur la puissance thermique d'entrée au lieu de la surchauffe pour le modèle de Haupin. L'épaisseur de la gelée se calcule alors par :

$$x_{sol} = k_g A_g \left[\frac{\Delta T_L}{P} - \sum_i^N R_i \right] \quad (2.3)$$

Des modèles 2D en régime permanent ont également été développés afin de mieux représenter le profil de gelée [32, 114]. Ces modèles exploités numériquement sont à la base de la conception et du réaménagement (*retrofit*) des cuves actuelles. La résolution de ces problèmes 2D ne peut se faire que numériquement puisqu'une solution analytique n'est pas envisageable due à la non-linéarité du problème étudié [4, 133]. La validation des modèles numériques ne peut donc se faire que par l'intermédiaire de bancs d'essais expérimentaux ou *via* des campagnes de mesure effectuées *in situ*.

2.2.2 Modèles dynamiques pour les cuves d'électrolyse

Les cuves d'électrolyse sont soumises à de nombreuses perturbations qui influent sur les paramètres d'opération de la cuve telles que l'introduction d'alumine, les effets d'anode, le changement d'anode, la modification des propriétés du bain électrolytique etc. Bien qu'utiles pour la conception de la cuve et leur faible temps de calcul, les modèles statiques ne peuvent pas être envisagés pour l'étude des impacts des opérations de production sur l'évolution de l'épaisseur de gelée. Welch, B.J. et Stevens McFadden J. S. ont démontré que certaines perturbations comme l'alimentation en alumine, les effets d'anodes, les transferts de bain et de métal en fusion, la hausse de la concentration en fluorure d'aluminium dans l'électrolyte et l'augmentation de la tension d'alimentation, provoquent une variation de la température du bain et une fluctuation conséquente de la couche de gelée [192, 230].

L'impact des paramètres d'opération d'une cuve d'électrolyse sur l'épaisseur de la couche de gelée a fait l'objet d'études couplant modélisation et mesures expérimentales permettant la validation de modèles mathématiques dynamiques en 1D négligeant la présence de points chauds et le profil du pied de talus [33, 192, 227]. Wei *et al.* ont simulé la couche de gelée d'une cuve d'électrolyse à l'aide d'un code numérique 1D à maillage mobile [228]. Les résultats obtenus concordent bien avec les mesures effectuées par Taylor *et al.* [205]. La durée de vie et la productivité des cuves d'électrolyse sont grandement réduites par la présence répétée de ces points chauds ou de ces pieds de talus. La présence de ces pieds de talus augmente l'instabilité de la cuve d'électrolyse et abaisse son rendement. Stevens McFadden J. S. précise notamment que la durée de vie de la cuve ne dépasserait pas les 77 jours sans la présence du talus en supposant que les blocs de carbone des parois latérales ont une épaisseur de 10 cm et que la vitesse d'érosion est de 1,3 mm/jour [192].

Des modèles numériques dynamiques en 2D ont vu le jour permettant alors de prédire la géométrie de la couche de gelée et d'évaluer l'impact des propriétés thermophysiques sur l'évolution temporelle de la couche de gelée et de réduire le risque d'apparition de points chauds [81, 134, 227].

2.2.3 Modèles numériques hors électrolyse de l'aluminium

Les procédés impliquant un changement de phase solide-liquide ont été largement étudiés numériquement et attirent encore aujourd'hui l'attention, surtout dans le domaine du stockage de chaleur. Les principaux travaux numériques relatifs au domaine du changement de phase ont notamment été référencés par Gong [77]. Zivkovic et Fujii ont développé un modèle numérique basé sur la méthode enthalpique pour prédire le comportement transitoire d'un MCP dans des géométries cylindriques et rectangulaires [244]. Cette méthode a aussi été utilisée par Elgafy *et al.* [66] pour déterminer la performance thermique dans le cas où un MCP à haute température de fusion est utilisé. Il a été découvert que ce type de MCP dégage ou absorbe une grande quantité de chaleur comparé aux MCPs classiques. Kalaiselvam *et al.* [109] ont prédit la position de l'interface diphasique dans une enceinte cylindrique durant la phase de solidification à partir de deux modèles thermiques : conduction pure et conduction avec génération de chaleur. Puis, ils ont modélisé la phase de liquéfaction à l'aide de trois modèles thermiques :

- conduction pure ;
- conduction + génération de chaleur ;

- conduction + convection naturelle + génération de chaleur.

La condition de refroidissement est, dans cette étude, imposée sur la paroi extérieure du cylindre. La comparaison des résultats aux mesures expérimentales ont démontré que pour la solidification, le modèle intégrant la conduction et la génération de chaleur donne de meilleures prédictions. Au fur et à mesure que la solidification progresse, le volume de MCP liquide diminue minimisant l'impact de la convection naturelle. Quant à la phase de liquéfaction, le modèle couplant conduction, convection et génération de chaleur correspondrait mieux.

D'autres stratégies numériques modélisant le changement de phase ont fait également leur apparition s'inspirant des puissants modèles numériques développés dans les domaines du génie des matériaux et du génie civil. Ils permettant de modéliser des pièces ayant des formes complexes à défaut d'un temps de calcul plus important, d'un code plus complexe à mettre en œuvre ainsi que des risques d'instabilités. Quelques exemples de ces modèles sont listés ci-dessous :

- la méthode des éléments finis de frontière (BEM) [234];
- la BEM basée sur une réciprocité duale [106, 220] ou une réciprocité multiple [73, 152];
- la méthode des éléments finis (MEF) [13, 18, 130, 185];
- la méthode hybride basée sur les éléments finis et les volumes de contrôle [195, 196];
- la MEF discontinus [116];
- la MEF non-physique [51, 146];
- la méthode hp-MEF [165];
- la méthode des éléments finis étendus [40, 105, 139].

La méthode des éléments finis étendus fait partie des techniques numériques les plus récentes pour résoudre le problème de Stefan. Elle permet de suivre explicitement l'interface solide-liquide tout en gardant le maillage fixe. Diverses fonctions sont créées pour capturer ensuite le changement de phase à travers l'interface.

Les problèmes de changement de phase solide-liquide dits « Problème de Stefan » peuvent donc être résolus numériquement selon deux principales approches. Soit le maillage est fixe, dans ce cas là, le champ de température doit être déterminé dans la phase liquide et

solide. L'interface solide-liquide correspond à l'isotherme $T = T_f$. Soit le maillage est dit « mobile ». Le maillage spatial est modifié à chaque pas de temps de manière à ce que la frontière du domaine solide corresponde à une condition limite du système.

2.3 Mesure du changement de phase

Les études présentées dans la section 2.2 sont orientées sur la modélisation du phénomène du changement de phase solide-liquide. Que ce soit pour la validation de ces modèles numériques ou pour celle des stratégies de contrôle existantes des cuves d'électrolyse, il est nécessaire d'avoir des mesures expérimentales disponibles et viables. Or peu de recherches se sont attachées à l'étude du changement de phase du point de vue expérimental car l'obtention de données peut se révéler extrêmement difficile et coûteuse en fonction des MCPs étudiés et des méthodes de mesure développées. La présente section donne une vision globale des travaux réalisés jusqu'à présent sur le développement de techniques de mesure et/ou sur l'observation du front de solidification. Ces méthodes de mesure peuvent être groupées en deux catégories et sont listés au tableau 2.3 : les méthodes intrusives et non-intrusives.

2.3.1 Capteurs de mesure intrusifs

Les instruments de mesure intrusifs sont généralement caractérisés par le fait que la mesure de la grandeur physique à l'étude est réalisée par le biais d'une pénétration directe du milieu de mesure. Ce type de mesure fait appel à des capteurs « classiques » souvent utilisés dans l'industrie. Il a un avantage certain : son coût faible. Les données issues de ces capteurs peuvent être facilement et rapidement traitées. Nonobstant, le capteur de mesure va forcément influencer le milieu de mesure notamment dans le cas d'une étude thermique du système, où des échanges de chaleur peuvent avoir lieu entre le capteur et le MCP. Le processus de solidification est alors directement affecté.

Tableau 2.3 Revue des méthodes de mesure du front de solidification.

Référence	Mesure		Capteur/Technologie	MCP	T_{util}^3 (K)	Précision (cm)	Atouts/inconvénients de la mesure
	T^1	NI^2					
[26]		x	Mesure de température <i>via</i> thermocouples dans un bloc de carbone + méthode inverse	∅	≈ 1 273	< 2,2	Bonne sensibilité et robuste / thermocouples dans le bloc de carbone qui le fragilise et augmente le risque de rupture
[33, 201]	x		Mesure avec sonde mécanique	Cryolithe	≈ 1 273	< 1	Mesure difficile et nécessite l'ouverture de la cuve
[178]	x		Mesure à l'aide d'une sonde ayant un bras articulé	Cryolithe	≈ 1 273	< 0,5	Mesure automatisée / nécessite l'ouverture de la cuve
[225]	x		Mesure du front de solidification à l'aide de séries de thermocouples de type E	Polyéthylène glycol 900	≈ 307	< 0,05	Mesure précise et bonne résolution pour des MCPs ayant une température de fusion basse
[108]	x	x	Mesure du front de solidification <i>via</i> photographie + présence de thermocouples de type T	N-eicosane	≈ 309,5	NR ⁴	Visualisation directe du front de solidification / pas applicable pour les hautes températures - les T/C permettent une mesure locale du front de solidification
[199]	x	x	Mesure du front <i>via</i> photographie + présence de thermocouples de type K	N-hexadécane	≈ 291,4	NR ⁴	<i>Idem</i> référence [108]
[36]	x		Présence de thermocouples de type T	N-octadécane	≈ 301	NR ⁴	Bonne sensibilité à un changement de flux sinusoïdal

Suite page suivante

Tableau 2.3 – Suite du tableau précédent.

Référence	Mesure		Capteur/Technologie	MCP	T_{util}^3 (K)	Précision (cm)	Atouts/inconvénients de la mesure
	T^1	NI^2					
[34]	x		Mesures de température et de résistance électrique <i>via</i> 2 thermocouples Ni-NiCr + 4 sondes en Ni respectivement	Pb-61,9Sn	≈ 458	NR ⁴	Les points d'inflexion dus à la solidification sont plus facilement observables avec les sondes mesurant la résistance électrique. Ces dernières permettent de mesurer sur le volume entier de MCP <i>a contrario</i> des T/C
[5, 190]		x	Mesure de radiation <i>via</i> un dispositif de transfert de charge (CCD) et un creuset transparent en aérogel de silice	Eutectic Al-Al ₃ Ni, alliages Al-Si, hypoeutectique Al-Cu et alliages AlSiMg	$\sim 1\ 173$	NR	Fronts de solidification directement observables - facilite le contrôle de la vitesse de solidification / nécessite un filtrage des données - difficilement implantable dans le cadre de l'électrolyse de l'aluminium
[183]		x	Caméra vidéo haute vitesse	Eau	≈ 273	NR	Fusion directement observable - difficilement implantable dans le cadre de l'électrolyse de l'aluminium
[44, 98]		x	Tomographie	Sn / Al	NR/933	$\sim 2,5$ mm	Très bonne précision / traitement de données est fastidieux - petits échantillons - certains MCPs ne sont pas pénétrables par rayons X

Suite page suivante

Tableau 2.3 – Suite du tableau précédent.

Référence	Mesure		Capteur/Technologie	MCP	T_{util}^3 (K)	Précision (cm)	Atouts/inconvénients de la mesure
	T^1	NI^2					
[70, 99]	x		Sonde à ultrasons avec tiges de transmission	Si / alliage Al-12,6Si	1 690/973	NR	Mesure robuste / filtrage nécessaire - difficilement implantable dans le cadre de l'électrolyse de l'aluminium car nécessite l'ouverture de la cuve
[59, 60]		x	Sonde à ultrasons sur MCPs en phase solide	Alliages d'aluminium	≈ 303	NR	Mesure robuste / filtrage nécessaire - mesure délicate dans le cas de su- perposition de matériaux

¹ Symbole pour mesure intrusive.

² Symbole pour mesure non-intrusive.

³ Température d'utilisation maximale du capteur de mesure lors des essais.

⁴ Non renseigné mais fonction des précisions de la position du thermocouple et de celle de la température de fusion mesurée.

Dans les cuves d'électrolyse, la méthode standard pour évaluer le profil de gelée consiste à insérer une sonde mécanique à l'intérieur du bain. Cette sonde détermine l'épaisseur de la gelée verticalement et cela en différents points le long de la paroi [25, 33]. Le profil de gelée est directement mesuré à quelques centimètres près. La méthode de mesure est lourde et nécessite une bonne préparation du personnel. Elle ne peut donc être réalisée que ponctuellement. La disparition de la gelée dans la cuve d'électrolyse est souvent découverte trop tard lorsque, par exemple, un point chaud devient visible sur les parois externes compromettant la durée de vie de la cuve d'électrolyse.

Ce système de mesure a été utilisé par Taylor *et al.* pour des campagnes de mesure afin d'évaluer l'influence de l'alimentation en alumine et l'effet d'anode sur la couche de gelée d'une cellule d'électrolyse de 150 kA. Ils ont pu constater une augmentation de la gelée de 2 cm sur 20 min après alimentation de la cellule en alumine et une fusion rapide de 4 cm de gelée en provoquant manuellement un effet d'anode de 10 min [204].

Une sonde mécanique automatisée « *Elkem Position Probe* » a été développée par Rye *et al.* pour déterminer le profil transitoire de la gelée dans deux cellules d'électrolyse de 155 et 125 kA soumises à des effets d'anode. Cette sonde est constituée d'un bras articulé d'une précision de $\pm 0,5$ cm [178]. Aucune variation significative de la gelée, dans les deux cellules, durant ou après un effet d'anode de 2 min n'a pu être quantifiée. Toutefois, lorsque l'effet d'anode dure entre 8 et 12 min, une réduction de l'épaisseur de gelée comprise entre 7 et 11 cm de gelée a été évaluée.

Ces études reflètent que la dynamique de solidification/fonte de la gelée dans les cellules d'électrolyse est peu connue et démontrent également la nécessité de contrôler efficacement la cellule d'électrolyse pour réduire au maximum les variations d'épaisseur de gelée et maximiser le rendement énergétique du procédé d'électrolyse. Aucun dispositif à ce jour ne permet de mesurer précisément et en continu l'épaisseur de gelée lorsqu'elle est soumise à des fluctuations causées par des effets d'anode.

D'autres méthodes de mesure ont pu être utilisées dans le cadre de la conception de procédés de stockage par chaleur latente. L'environnement y est moins sévère et l'étude du changement de phase est faite sur des MCPs moins contraignants (température de fusion inférieure à 450 °C).

Une technique consiste à plonger une ou plusieurs séries de thermocouples dans le matériau à changement de phase, à des positions déterminées du milieu de mesure. La courbe de

refroidissement de chaque thermocouple est étudiée et analysée afin de déterminer quand a lieu le changement de phase. Les profils et la vitesse du front de solidification dans le temps peuvent être ainsi évalués lorsque la température du changement de phase est connue.

Wang *et al.* ont suivi l'évolution de la fusion du polyéthylène glycol 900 avec des thermocouples dans une enceinte rectangulaire transparente en polycarbonate placée horizontalement dont une face verticale est chauffée [225]. Jones *et al.* ont, quant à eux, étudié expérimentalement et numériquement la fusion d'une paraffine n-eicosane dans une enceinte cylindrique verticale en polycarbonate avec cette même technique. Les prévisions numériques obtenues sur la dynamique de solidification concordent bien avec les données expérimentales [108]. Dans les deux cas, le front de solidification a pu être observé visuellement. Un constat commun ressort de ces deux études. Le processus de fusion semblerait passer par plusieurs régimes de transfert de chaleur : une première phase où la conduction est dominante, puis vient la convection-conduction mixte pour finir sur un effet convectif dominant dans le matériau à changement de phase. Ce dernier a pour effet de déformer le profil du front de solidification. Toujours sur le même principe, une étude de Tan et Leong a consisté à déterminer le taux de solidification d'une paraffine n-hexadécane dans une enceinte rectangulaire de faible ratio (longueur/largeur de l'enceinte) dont une face verticale est refroidie par un flux thermique constant. Les résultats n'ont montré aucune courbure du front de solidification. Les dimensions de la cellule étant trop faibles pour permettre un mouvement convectif significatif [199].

Casano et Piva se sont intéressés aux effets d'un flux thermique périodique sur le processus du changement de phase. Le montage expérimental a consisté à imposer un flux sinusoïdal sur la face supérieure d'un creuset vertical contenant du n-octadécane et isolé thermiquement sur le côté. À partir des courbes de température, il est clairement constaté que les oscillations de température dans la phase liquide sont plus importantes que celles dans la phase solide. La comparaison avec les courbes prédites par les simulations numériques montrent de bonnes concordances malgré une déformation des courbes au niveau de la température du changement de phase [36].

Les thermocouples ont la capacité de détecter la présence d'un sous-refroidissement. Mais, bien qu'ils présentent un intérêt certain pour leur simplicité, ils ont néanmoins certaines limitations. La présence de ces thermocouples altère la composition et les propriétés des matériaux dans lesquels ils sont plongés. Ils perturbent le champ de température et ne détectent qu'un changement de phase local [113].

Une alternative a été proposée par Boily *et al.* consistant à placer les thermocouples dans la paroi de l'enceinte selon une disposition particulière permettant d'estimer le flux thermique et d'en déterminer sa direction [26]. L'évaluation du front de solidification n'est cependant plus directe. Une autre étude de Bruncko *et al.* a abordé le couplage des mesures de résistance électrique et de température dans le but d'estimer la vitesse du front de solidification d'un alliage Pb-61,9Sn au sein d'un four de type Bridgman [34]. Une meilleure détermination du point d'inflexion lors du changement de phase a été notée sur les courbes de résistance électrique. La mesure de résistance électrique a l'avantage de pouvoir détecter un changement sur le volume entier étudié et ne cause aucune perturbation du volume de l'échantillon.

2.3.2 Capteurs de mesure non-intrusifs

Les capteurs de mesure non-intrusifs font généralement appel à des techniques plus sophistiquées et à des phénomènes physiques plus complexes. L'extraction des données issues de ces capteurs est souvent fastidieuse.

Dans le cas des hautes températures, une étude intéressante a été proposée par Alkemper *et al.* suivie d'une publication de Steinbach et Ratke axée sur une stratégie de contrôle de la solidification d'alliages d'aluminium où une position, une vitesse et une accélération constante du front de solidification peuvent être imposées [5, 190]. Cette technique est basée essentiellement sur l'observation directe de la fraction liquide à l'aide d'une caméra thermique en utilisant les propriétés extrêmes de l'aérogel de silice. L'aérogel de silice se caractérise par sa faible conductivité thermique de l'ordre de 5 à 20 mW.m⁻¹.K⁻¹ et son niveau de transparence élevé (90 % en transmission). Dans ces deux publications, l'échantillon de mesure est placé dans un creuset en aérogel puis soumis à un flux thermique unidirectionnel. La position de l'interface est déterminée *via* la courbe d'intensité mesurée par la caméra thermique.

Des techniques photographiques sont possibles pour l'observation directe du front de solidification, mais elles manquent cruellement de précision [171, 183]. *A contrario*, l'imagerie à rayons X permet de caractériser le front de solidification avec une résolution inférieure au millimètre. Mais, dans la plupart des cas, ces techniques se restreignent à des échantillons de quelques centimètres. Les travaux de Chun *et al.* [44] complétés par ceux de Hytros *et al.* [98] ont suggéré que la tomographie à rayons γ ou à rayons X pourrait être utilisée pour sonder l'intérieur d'un solide et d'en donner une représentation 2 ou 3D. La mesure du front de solidification a été validée en comparant les mesures obtenues avec

celles prises par des thermocouples plongés dans des échantillons d'étain et d'aluminium respectivement. Il convient de noter que la précision de ces équipements varie de $\pm 1,3$ mm à $\pm 3,2$ mm. Ce type de mesure demande néanmoins du personnel qualifié, un traitement de données important et est difficilement intégrable dans les procédés industriels.

D'autres expérimentations ont été réalisées pour valider l'application de la mesure ultrasons dans la mesure de la vitesse du front de solidification. Deux approches sont à distinguer :

1. La première consiste à insérer la sonde à ultrasons directement dans la phase liquide. Eyer *et al.* ont mesuré la vitesse du front de solidification du silicium multicristallin en couplant le transducteur piézoélectrique de 5 MHz, avec trois tiges de transmission différentes (Al_2O_3 , SiC, mono-Si) servant ainsi de tampon thermique [70]. Le même capteur piézoélectrique a été utilisé pour émettre et recevoir le signal. Les résultats indiquent que la vitesse du front de solidification au début de l'essai est plus faible à cause de la grande capacité thermique du silicium. Des mesures directes de la position du front de solidification, à l'aide d'une tige métallique déplacée manuellement, a permis de valider les mesures ultrasons. Par contre, une contamination du MCP a été observée. Ihara *et al.* ont appliqué le même principe à l'étude d'un alliage Al-12,6Si à 700 °C en utilisant cette fois-ci une tige de transmission en titane [99].
2. Dans la deuxième configuration, la sonde est placée au niveau de la phase solide. Cette dernière configuration est limitée par la résistance acoustique et la dispersion du matériau. Drevermann *et al.* [60] et Drevermann *et al.* [59] ont mesuré le front de solidification pour différents alliages d'aluminium évoluant dans un four de type Bridgman et ont développé une stratégie de contrôle pour obtenir une vitesse de solidification constante. La mesure à ultrasons se révèle un bon compromis entre robustesse et simplicité. Les mesures sont tributaires du rapport signal-bruit et il reste encore de nombreux travaux à effectuer avant de pouvoir valider ce type de mesure à la détermination du front de solidification.

La conception du montage expérimental et des divers outils de mesure ainsi que le développement du programme expérimental et de l'approche numérique sont conditionnés par la précision souhaitée pour les instruments de mesure du front de solidification considérés. Dans le cadre de ce projet, une précision maximale de ± 5 mm a été choisie.

2.4 Méthodes inverses

Dans le cas des modèles numériques classiques dits « directs », la géométrie du domaine, les conditions initiales, les conditions limites et les propriétés physiques du système sont connues. La résolution des équations gouvernantes, décrivant le phénomène physique, peut être effectuée *via* une méthode numérique de résolution. Le problème direct permet de prédire l'évolution du système considéré à partir de la connaissance de son état actuel.

Lorsqu'une partie du domaine, une condition limite ou une condition initiale est inconnue, l'utilisation d'une méthode inverse s'avère nécessaire pour déterminer les paramètres inconnus à partir d'observations de l'évolution du système communément appelée l'identification de paramètre. Une mesure physique est alors nécessaire sur le système.

Du point de vue thermique, l'intérêt porté aux méthodes inverses date des années 60 lors du développement d'applications impliquant la mesure de flux. D'après Maillet *et al.* [132] : « Dans le problème direct, c'est le flux de chaleur excitateur sur une face de la paroi qui est la cause du transfert et qui provoque en conséquence des variations de températures internes. Dans le problème inverse, il s'agit de mesurer les conséquences (les températures) pour remonter aux causes (le flux thermique) » [132].

Les méthodes inverses ont également été utilisées pour estimer les paramètres structuraux, les propriétés thermophysiques des matériaux ou d'un système telles que la conductivité, la résistance thermique, la chaleur spécifique etc. Ce type de technique permet de remonter notamment à l'estimation du front de solidification de MCP à partir d'une mesure de température et/ou de flux thermique. Plusieurs ouvrages traitent de ce genre de problème et compilent les principales techniques utilisées [17, 161]. Marois a également fait une revue des méthodes inverses dans le domaine du transfert de chaleur [133].

Le montage expérimental décrit au chapitre 3 a été développé pour permettre la mesure et la détermination de tous les paramètres nécessaires au modèle numérique direct. Des capteurs de mesures non-intrusifs seront testés pour estimer la solidification de la cryolithe *via* une démarche inverse validée au chapitre 6 pour des applications soumises à des conditions extrêmes de température et de flux thermique interdisant l'emploi d'un capteur intrusif.

2.5 Conclusion

Le rendement énergétique des cuves d'électrolyse est dépendant de la connaissance et de la mesure des phénomènes thermiques présents. Les conditions d'utilisation d'une cuve d'électrolyse ne peuvent permettre une mesure continue dans la cuve. Plus particulièrement, la mesure de la couche de gelée est un facteur clef pour la stabilité thermique de la cuve et de son contrôle. Mais l'évolution du profil de la gelée n'est toujours pas intégrée dans les stratégies de contrôle des cuves actuelles malgré les modèles numériques thermiques existants. De plus, la technologie pour mesurer le profil de gelée est limitée par la température et l'agressivité de la cryolithe.

Le présent travail s'est orienté sur l'utilisation des méthodes de mesures non-intrusives *via* une caméra thermique et une sonde à ultrasons sur un banc d'essai expérimental pour étudier uniquement les phénomènes thermiques régissant la solidification de matériaux à changement de phase. Bien évidemment, l'utilisation de la caméra thermique implique le développement de méthodes inverses couplées à une méthode directe de résolution du problème de Stefan selon une méthode enthalpique décrite au chapitre 5.

CHAPITRE 3

PRÉSENTATION DU MONTAGE EXPÉRI-MENTAL

Au chapitre 2, il a été démontré que les méthodes numériques développées pour estimer et simuler le changement de phase manquaient de données expérimentales nécessaires à leur validation. Sur site, des campagnes de mesure sont difficilement réalisables et nuiraient à la production. Les phénomènes physico-chimiques présents dans la cuve d'électrolyse en fonctionnement rendraient délicate la validation d'un système dédié à la mesure de la gelée. Afin de s'affranchir de ces problèmes de perturbations externes, un banc d'essai expérimental reproduisant les phénomènes thermiques des cuves d'électrolyse d'aluminium a été réalisé et est exclusivement dédié à l'étude du changement de phase solide-liquide. Ce chapitre a pour objectif de détailler le montage expérimental et les systèmes de mesure développés pour étudier les phénomènes de solidification dans un environnement contrôlé, pour des matériaux corrosifs et des tests à haute température. Une vue d'ensemble du banc d'essai sera d'abord réalisée. L'instrumentation choisie pour les mesures directes et indirectes du front de solidification sera présentée ainsi que les moyens de mesure des paramètres caractéristiques aux modèles numériques. Puis le choix du système d'acquisition et de contrôle sera effectué. Pour terminer, une analyse du montage sera réalisée pour démontrer son utilité et son originalité.

3.1 Montage expérimental

L'élément central du banc d'essai est un four industriel cylindrique construit par Pyradia, d'une puissance de 20 kW (bulle n°1, figure 3.1) et pouvant atteindre les 1 150 °C. Dans la partie inférieure, deux couches superposées de Kaocrete HS (béton haute température, bulle n°11) et de briques réfractaires (de type ASTM K26, bulle n°10) permettent d'assurer une résistance suffisante pour le maintien du creuset à haute température tout en permettant de pratiquer l'ouverture nécessaire aux mesures par le dessous. Un orifice de 0,305 m a été réalisé de manière à avoir un accès direct à la partie inférieure du creuset lors de tests (bulle n°4). Les éléments chauffants (puissance de 3 400 W, bulle n°5), de type fer-chrome-aluminium, sont au sein même de la brique réfractaire (briques de 1/6 de cylindre) de manière à uniformiser la chauffe et assurer également la protection des éléments

chauffants dans le cas d'un déversement du MCP dans le four ou de fausse manipulation. Cette configuration empêche l'accumulation de poussières ou de débris sur les éléments, source la plus fréquente de défaillance des éléments chauffants.

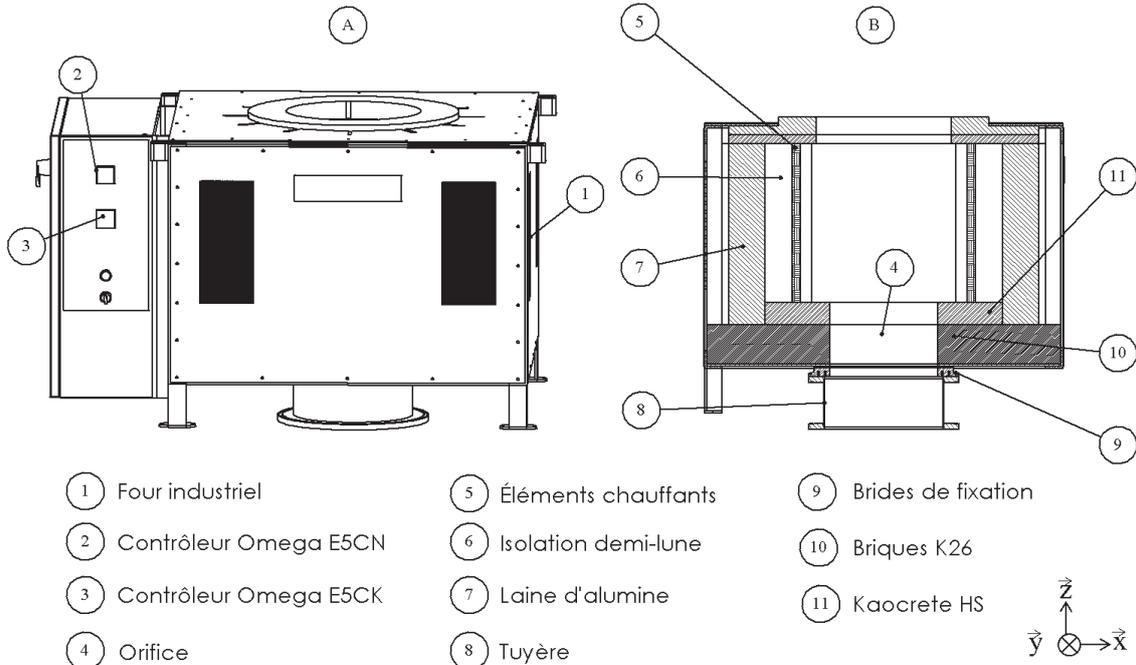


Figure 3.1 Représentations du four complet (A) et d'une coupe du four (B).

Le four possède également un double thermocouple de type K relié à deux contrôleurs : Omega E5CK (bulle n°3) et Omega E5CN (bulle n°2). Le premier servant à la régulation de la température du four et le second comme système de sécurité lorsque la température dépasse les 1 150 °C. Le four est surélevé de 1,28 m pour permettre la manipulation et l'installation des différents équipements décrits dans les sections suivantes.

A la figure 3.2, le montage expérimental complet est représenté. Au-dessus du four se trouve une hotte en acier inoxydable ventilée (bulle n°2) pour permettre l'extraction de gaz pouvant s'échapper du creuset à haute température. Cette ventilation assure également le refroidissement du LVDT sensible à la chaleur (bulle n°3). Un système de levage composé d'un bras mobile, d'un treuil électrique et d'un crochet permet d'une part l'introduction du creuset chargé en matériau à changement de phase dans le four ou son extraction et d'autre part facilite le centrage du creuset dans le four (bulle n°4).

Deux MCPs ont été choisis pour les tests. Le zinc pur à 99,9 % et la cryolithe, fournie par Rio Tinto Alcan, dont la composition est présentée dans la section 4.4.3. Les MCPs sont

contenus dans des creusets en carbone graphitique spécialement usinés dont les dimensions caractéristiques se trouvent en annexe A. Le carbone graphitique a été choisi pour éviter des réactions à haute température avec les MCPs considérés. En outre, le carbone est déjà utilisé par les alumineries pour protéger les cuves d'électrolyse de la cryolithe liquide.

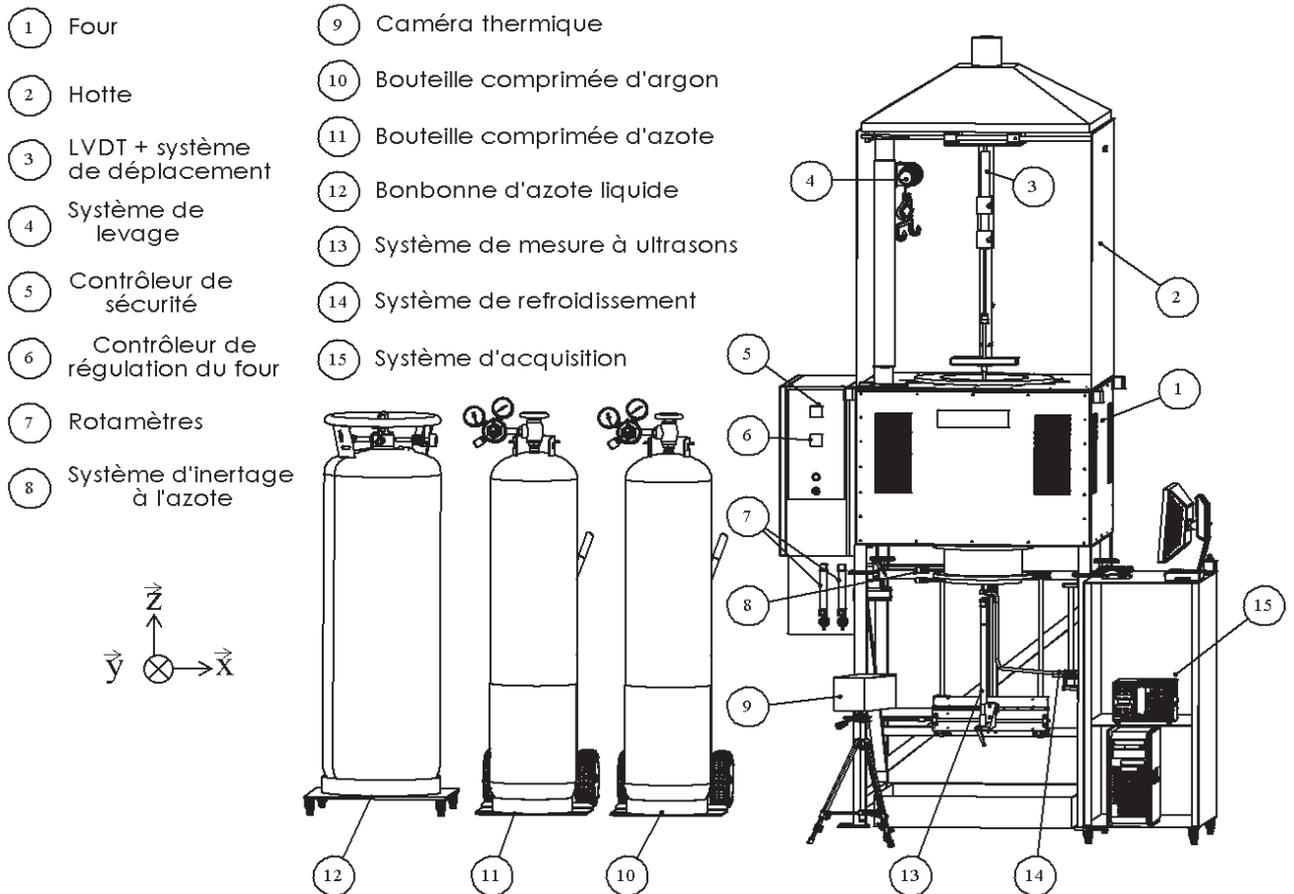


Figure 3.2 Représentation du montage expérimental complet. Les câbles d'alimentation et la tuyauterie n'ont pas été représentés.

Les dimensions du creuset ont été déterminées afin de garantir une résistance mécanique suffisante pour contenir le poids du MCP qui peut, dans le cas du zinc, atteindre les 100 kg et permettent d'assurer une bonne résistance aux risques de fissuration et de propagation des fissures à haute température. Il faut préciser que le carbone graphitique s'oxyde lorsque la température dépasse les 500 °C. Pour réduire la dégradation du creuset, un système d'inertage à l'azote a été développé (bulle n°8). Ce système, relié à un rotamètre (bulle n°7), permet d'assurer un débit continu d'azote (bulle n°11) sur la surface inférieure du creuset lors de la chauffe du four évitant ainsi le déversement du MCP et permettant par la même occasion d'utiliser le creuset pour plusieurs tests consécutifs.

Malgré la présence de ce système, le creuset s'oxyde durant les essais de solidification. Il faut donc avant chaque test, couper la base du creuset d'une tranche d'environ 3,5 mm d'épaisseur en moyenne. Les répercussions sur les mesures effectuées sur cette surface sont discutées à la section 3.3.2. Un couvercle en carbone schématisé en annexe A est positionné sur le creuset en graphite pour réduire les vapeurs qui pourraient émaner du MCP. Ces vapeurs peuvent en effet venir attaquer les matériaux réfractaires du four ou se condenser dans les zones plus froides du montage.

Pour pouvoir installer le creuset dans le four, un porte-creuset en Inconel est utilisé (voir annexe B pour plus de détails sur les dimensions). Ce porte-creuset possède un système d'injection d'argon, relié à un rotamètre (bulle n°7) et une bouteille d'argon comprimé (bulle n°10) pour maintenir une atmosphère inerte à l'intérieur du creuset. Cela permet également d'éviter l'oxydation et le perçage du creuset ce qui résulterait en un déversement du MCP liquide dans le four en fonctionnement. Lors des différents tests réalisés, aucune dégradation du creuset n'a pu être observée au niveau des surfaces soumises à l'inertage à l'argon. Avant chaque test, les dimensions internes et externes du creuset sont mesurées.

Sur le dessus du porte-creuset est placé un couvercle en Inconel avec un orifice permettant la mesure directe 2D (x, z) du front de solidification et est orienté de manière à suivre le système de déplacement du LVDT (bulle n°3). Afin de restreindre le débit d'argon qui s'échappe de l'intérieur du porte-creuset, des plaques de carbone sont introduites au-dessus du couvercle du porte-creuset lors de la phase de chauffe. De la laine en alumine est placée à la base du four, entre le porte-creuset et les parois internes du four de manière à boucher les interstices présentes dues à l'usure des joints au niveau des briques de béton Kaocrete HS. Cette laine évite par la même occasion que de l'azote, provenant du système de refroidissement (bulle n°14) pénètre dans le four et vienne perturber sa régulation. En figure 3.3 sont schématisés le creuset en carbone et le porte-creuset utilisés pour les expérimentations.

Lors de la phase de chauffe, un bouchon thermique, représenté à la figure 3.4, est constitué d'une structure en acier inoxydable supportant 6 couches d'isolant en fibre de verre (Insblock-19) de 25,4 mm d'épaisseur (annexe C). Ce bouchon thermique permet tout d'abord d'isoler le creuset durant la phase de chauffe et de protéger la face inférieure du creuset de l'oxydation en créant un espace confiné. Enfin, il assure une atmosphère inerte *via* un système d'injection d'azote intégré. Placé dans la tuyère (bulle n°8, figure 3.1), ce bouchon est maintenu à l'aide d'une table élévatrice. Le dessus du bouchon se retrouvant lors de son installation à 10 mm du creuset.

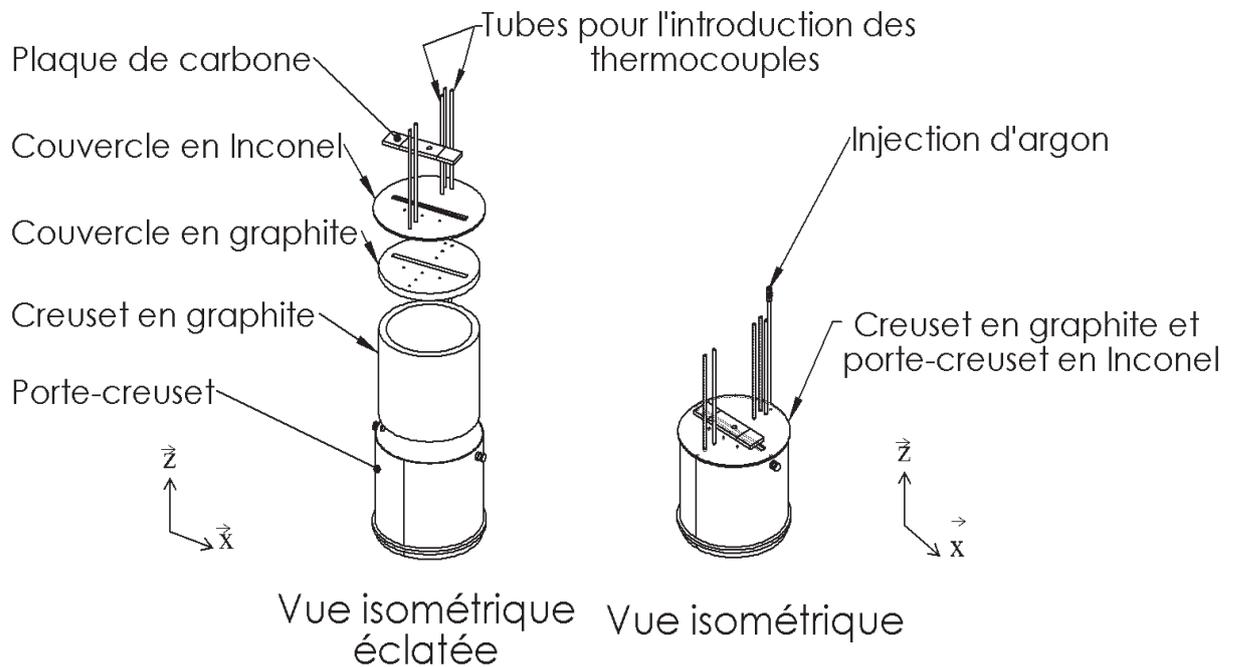


Figure 3.3 Représentations du porte-creuset contenant un creuset en carbone.

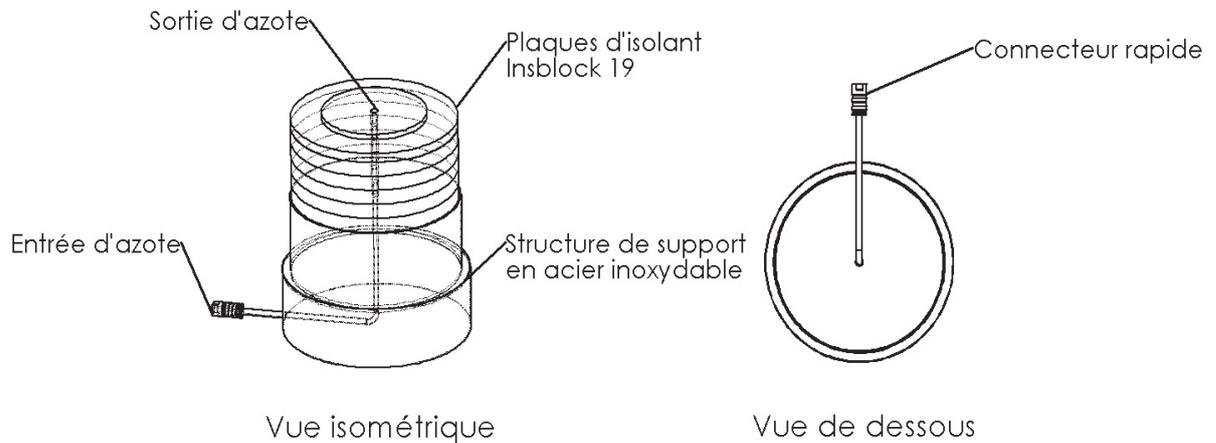


Figure 3.4 Représentations du bouchon thermique servant à la protection du creuset en phase de chauffe.

Une tuyauterie en Téflon (6,4 mm DE) assure l'acheminement des différents gaz vers les systèmes d'injection et la connexion se fait à l'aide de connecteurs rapides pour réduire le temps de manipulation.

La phase de refroidissement forcé est assurée par un système situé sous le four et est représenté à la figure 3.5. Ce système est constitué de :

- Une bonbonne d'azote liquide de 250 L à 15,85 bar afin d'assurer un débit d'azote gazeux en continu durant la phase totale de refroidissement.
- Un débitmètre contrôleur de type Omega FMA 2612A pouvant fournir un débit volumique contrôlé maximal de 500 L/min (pour de l'air) ; Le débitmètre est contrôlé *via* un port RS-232 par un système d'acquisition décrit à la section 3.5. La température du gaz traversant le débitmètre est aussi mesurée *via* un thermocouple interne au système.
- Un élément chauffant, placé entre la bonbonne et le débitmètre contrôleur, évite le refroidissement intense de la tuyauterie et du débitmètre sensible à la température.
- Un système de positionnement et d'orientation de la buse.
- Une buse cylindrique de 6 mm de diamètre intérieur.

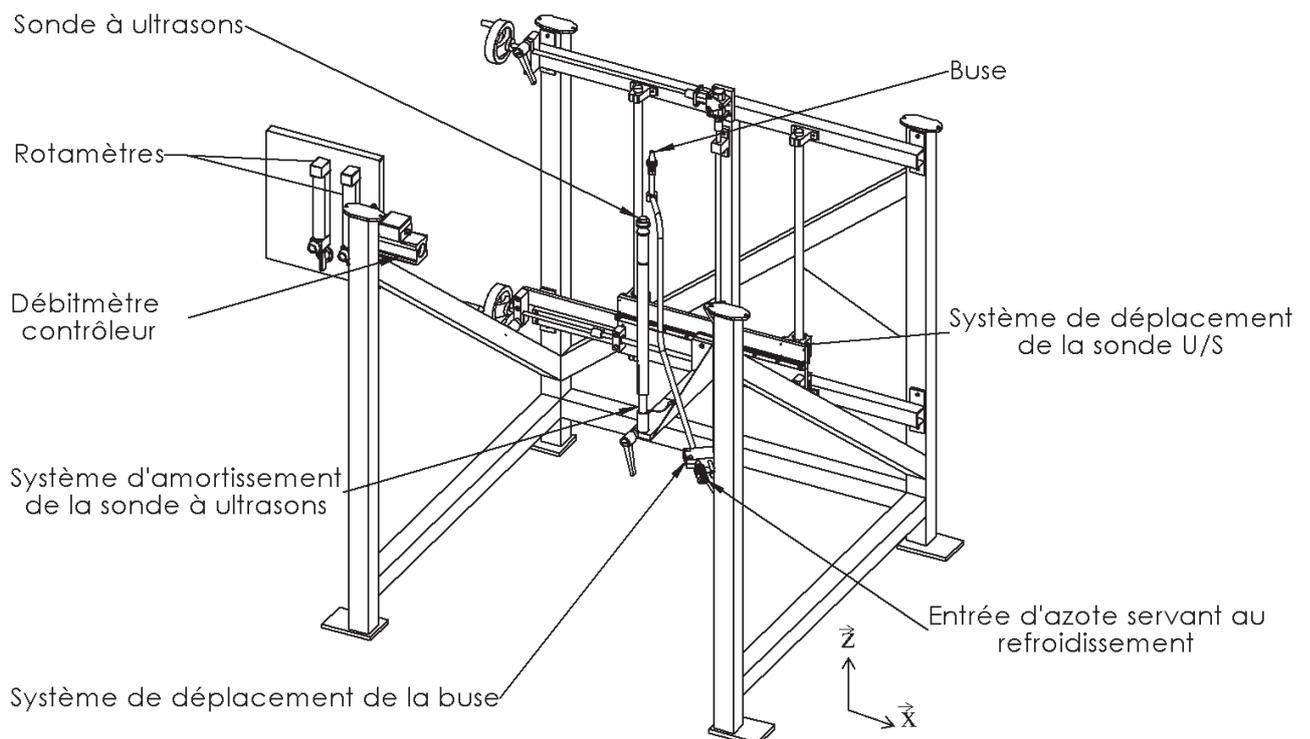


Figure 3.5 Vue trimétrique du dessous du four. Les câbles d'alimentation et la tuyauterie n'ont pas été représentés.

Quand la température est stabilisée dans le four et quand le MCP est complètement fondu dans le creuset, le bouchon thermique est retiré de la base du four. Une vérification de l'état

du creuset est réalisée afin de s'assurer que l'oxydation n'est pas critique et que le risque de perçage est faible. La buse est ensuite placée à la position désirée et le refroidissement est lancé. La résistance chauffante et le rayonnement du creuset et du porte-creuset sur la tuyauterie en acier inoxydable du système de refroidissement assurent la préchauffe de l'azote injecté. Toutefois le débit est incrémenté par palier de $20 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ afin d'éviter des chocs thermiques trop importants.

3.2 Mesures directes de l'épaisseur de gelée

Plusieurs systèmes de mesure ont été conçus et testés sur le banc d'essai pour permettre d'évaluer directement l'épaisseur de gelée.

3.2.1 Système de mesure LVDT + Tige

Afin de pouvoir comparer les données issues de la modélisation numérique simulant l'évolution temporelle du changement de phase, un nouveau système de mesure directe du front de solidification a été développé. Ce système couple un LVDT et une tige de céramique avec laquelle le profil de solidification est mesuré manuellement. La mesure s'effectue par l'introduction de la tige dans le MCP liquide jusqu'à ce qu'elle vienne « palper » la surface du front de solidification.

Fonctionnement d'un LVDT

Le LVDT ou *Linear Variable Differential Transformer* est un capteur inductif composé d'un corps généralement cylindrique regroupant le bobinage, les pièces de fixation, la connexion électrique et les circuits électroniques ainsi qu'un noyau magnétique mobile à l'intérieur du corps qui est prolongé par une tige de liaison (voir figure 3.6). Le corps est ferromagnétique afin d'agir en tant que barrière contre les interférences électromagnétiques. Le bobinage est constitué de trois enroulements coaxiaux autour d'un cylindre creux non-ferromagnétique et isolé électriquement [93].

Quand un signal alternatif d'excitation est appliqué à l'enroulement primaire, des tensions sont induites dans les deux bobines secondaires. Le noyau magnétique à l'intérieur de l'ensemble des bobines d'enroulement fournit le chemin de flux magnétique reliant la bobine primaire et les bobines secondaires. Puisque les deux tensions sont de polarités opposées, les bobines secondaires sont branchées en série mais en opposition par rapport au centre. En position centrale, les tensions de sortie des bobines sont égales et de polarités opposées,

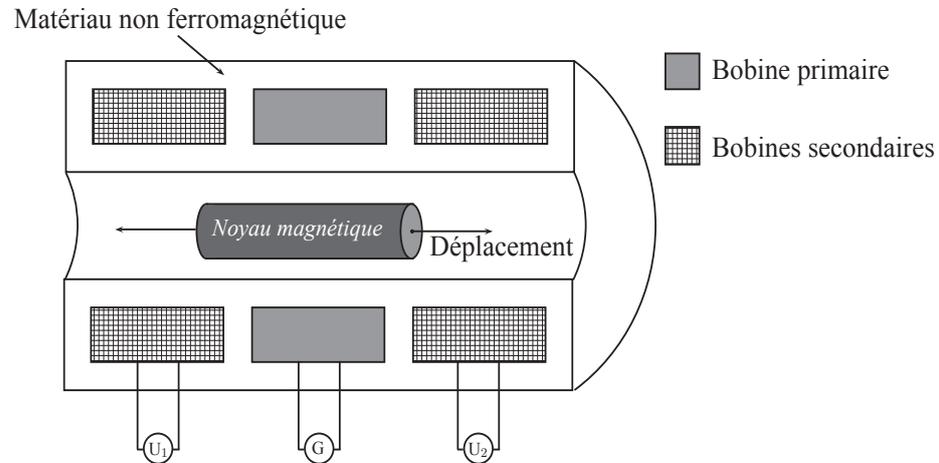


Figure 3.6 Schématisation du fonctionnement interne du LVDT.

la tension de sortie est alors égale à zéro. La position zéro d'un LVDT est extrêmement stable et reproductible.

Lorsque le noyau magnétique se déplace, un déséquilibre électromagnétique se produit. Ce déséquilibre génère une tension de sortie en courant alternatif différentiel qui traverse les bobines secondaires et qui est linéairement proportionnelle à la direction et l'amplitude du déplacement. La tension induite dans la bobine secondaire, vers laquelle le noyau est déplacé augmente tandis que la tension induite dans la bobine secondaire opposée diminue. Le LVDT possède la robustesse inhérente et la durabilité d'un transformateur. Il a une résolution quasi-infinie et une bonne linéarité. Enfin, il est particulièrement adapté pour les environnements hostiles (haute pression, milieu corrosif, radioactivité élevé).

Le modèle choisi pour nos essais est le LIPS 101 *Stand Alone Linear Sensor* de Positek avec sortie trois fils en 4-20 mA. Le LVDT est maintenu par deux blocs en Delrin (polyoxyméthylène) sur un système de déplacement orienté selon la direction \vec{x} (voir figure 3.7). Le Delrin a une température de fusion de 175 °C. Cependant les risques de dégradation du système de fixation sont faibles puisque des tests préliminaires ont montré que la température n'excède pas les 45 °C dans la hotte. Le LVDT intègre un conditionneur qui se charge à la fois d'alimenter le LVDT en 24 VDC mais aussi de transformer, amplifier et filtrer le signal de retour, provenant du LVDT, afin de le transmettre au système d'acquisition en 4-20 mA. Une alimentation spécifique convertissant le 110 VAC en 24 VDC est nécessaire.

Système de prises de mesure

Trois types de tige en céramique (0,0125 m DE), couplés au LVDT, ont été considérés : en alumine (Al_2O_3), en nitrure de bore (BN) et en carbure de silicium (SiC). Le diamètre choisi de 0,0125 m DE limite l'erreur de mesure due à une surface de contact trop importante mais assure cependant une bonne résistance mécanique. La céramique a aussi été choisie pour sa résistance aux attaques chimiques engendrées par la cryolithe. Les essais ont montré qu'un maximum de 1 mm de tige est érodée après chaque test dépendamment bien sûr du temps d'utilisation. La dilatation thermique de ce type de céramique est également faible (coefficients de dilatation linéaire de $7,1 \cdot 10^{-6} \cdot \text{K}^{-1}$ pour l'alumine, 4,5 et $0,5 \cdot 10^{-6} \cdot \text{K}^{-1}$ pour le nitrure de bore et le carbure de silicium respectivement) réduisant ainsi les erreurs de mesure dues à la présence prolongée de la tige dans le MCP.

La tige en céramique, de 0,76 m de longueur, est maintenue au LVDT *via* l'utilisation d'un collet de serrage et d'un mandrin permettant d'obtenir un bon maintien de la tige. La position horizontale du LVDT, à une précision de ± 1 mm, est réalisée à l'aide d'une lecture directe sur une règle métallique positionnée au niveau du système de déplacement du LVDT. Le système de protection du LVDT est constitué d'une plaque rectangulaire en

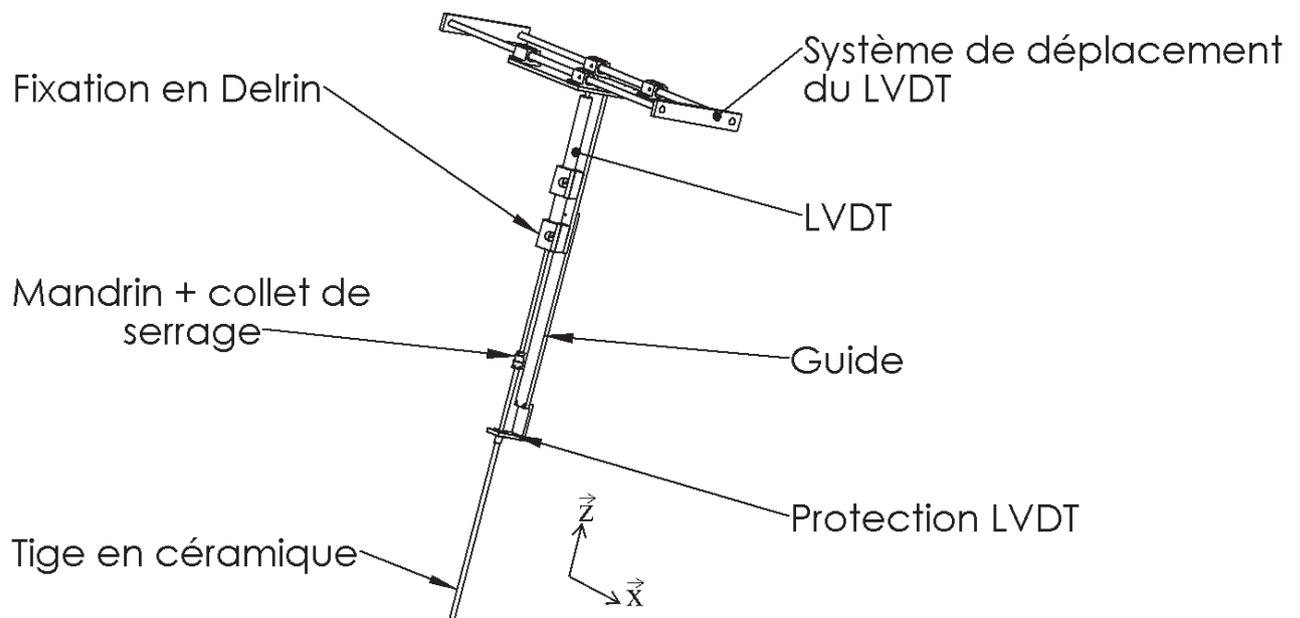


Figure 3.7 Vue trimétrique du LVDT et de son système de déplacement.

acier recouverte d'isolant qui est placée à une distance de 0,52 m du LVDT (voir figure 3.7). Cette plaque contient un guide métallique d'un diamètre de 13,3 mm et interchangeable en fonction de la tige de mesure utilisée. Ce système assure la protection du LVDT contre les

vapeurs et également contre le flux rayonnant de chaleur émanant du creuset et du four. Il maintient également la tige en céramique perpendiculairement afin de réduire l'erreur de mesure due à une flexion et/ou une rotation de celle-ci lors des mesures.

Précautions à prendre et erreurs de mesure

Afin de réduire les erreurs de mesure, les précautions suivantes ont été prises :

- La sortie du LVDT est en courant 4-20 mA. Ce type de sortie permet de réduire l'influence du bruit sur la mesure et le signal de sortie. Si un branchement est défectueux, le 0 A indique un problème. *A contrario*, une lecture de 0 V due à un mauvais branchement sur une sortie 0-10 V, par exemple, pourrait être considérée comme une mesure possible. De plus, une sortie en courant n'est pas perturbée par la longueur de fil de résistance électrique finie.
- La tige est maintenue continuellement dans le four et dans le creuset (au-dessus du MCP) lors des tests pour réduire les chocs thermiques et la fatigue. Deux mesures du profil de la base du creuset sont effectuées, au cours de chaque test, pour avoir le profil du creuset à froid puis juste avant la phase de refroidissement afin de mesurer la ligne de référence pour la suite des mesures. Les erreurs engendrées par la dilatation thermique de la tige sont alors limitées.
- Le LVDT choisi est sensible à la température (température d'utilisation maximale de 125 °C). De la laine d'alumine est placée autour du LVDT pour réduire les erreurs dues à la dérive thermique de l'instrument de mesure.
- Avant chaque test, le LVDT est positionné de manière à ce que les mesures soient réalisées pour des valeurs de courants maximaux lorsque tout le MCP est fondu afin de garantir une meilleure précision de mesure (voir figure 3.8).
- La tige en céramique est à une température supérieure à celle du MCP dans lequel elle est plongée ($T_{Tige} > T_{MCP}$). La tige vient alors bouleverser le phénomène de solidification lorsque la tige palpe le front de solidification mesuré. Un échange thermique a donc lieu. De plus, lorsque le changement de phase se produit sur une plage de température, ce qui est le cas notamment pour la cryolithe, une zone pâteuse apparaît. Cette zone vient influencer la qualité de la mesure et représente la plus grosse erreur de la mesure du front de solidification [22]. Pour cela, une répétition des mesures (7 répétitions / point de mesure) a été choisie pour réduire l'écart-type moyenné. Une erreur de mesure supplémentaire de 3 mm est observée lorsque de la cryolithe est utilisée.

- La température de consigne du four est fixée de manière à satisfaire :

$$(T_{four} - T_{fusion}) < 100 \text{ } ^\circ\text{C} \quad (3.1)$$

Ceci permet d'obtenir une fusion complète du MCP mais aussi de limiter les effets de la dilatation thermique sur la mesure.

- La température dans le creuset (au-dessus du MCP) est mesurée en continu ce qui permet de corriger les mesures LVDT connaissant, à la fois, la variation de température dans le creuset entre chaque mesure et la dilatation thermique de la tige.

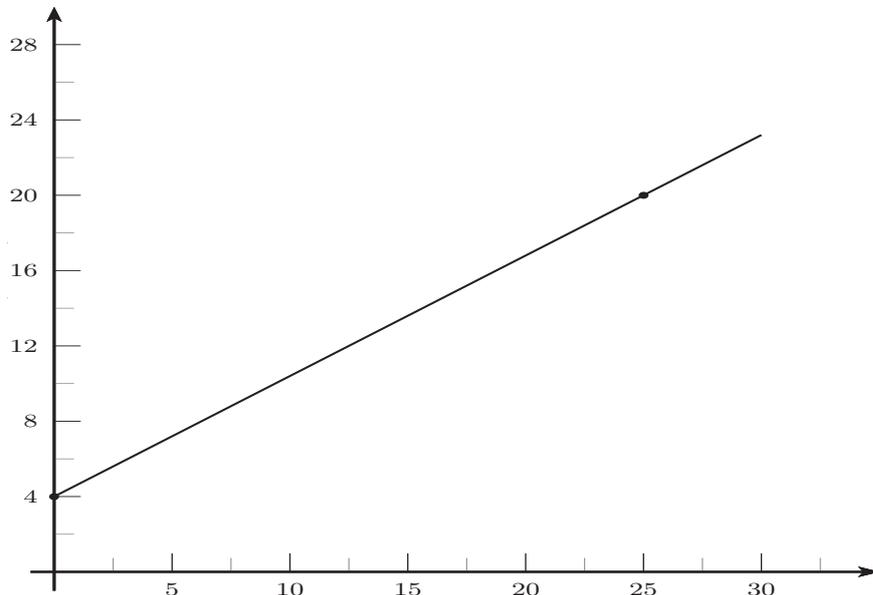


Figure 3.8 Signal de sortie du LVDT.

Les erreurs dues à la résolution du LVDT étant négligeables, il convient de préciser que le système de mesure est soumis à deux types d'erreur qui dépendent des conditions expérimentales, de la qualité de la prise de mesure et de l'instrumentation choisie :

- Les erreurs aléatoires maximales dues au bruit, aux erreurs de linéarité, aux erreurs d'hystérésis, de répétabilité et de dérive thermique sont estimées à 1,4 % de l'étendue de mesure (EM) [30] ;
- Les erreurs systématiques maximales causées par un mauvais réglage de l'appareil, un mauvais étalonnage, la dilatation thermique de la tige en céramique, les erreurs engendrées par la présence même du capteur ont été évaluées à 0,8 %/EM [30].

3.2.2 Thermocouples

Il est possible, comme précisé au chapitre 2 de suivre l'évolution du front de solidification par l'intermédiaire de thermocouples en suivant leur réponse dans le temps et en connaissant la température du changement de phase du MCP. 5 thermocouples de type K (Chromel/Alumel) d'Omega (jonction fondée, 6,3 mm DE x 762 mm L, gaine à base de Nickel-Chrome) sont introduits dans les tubes du porte-creuset (voir figure 3.3) et positionnés verticalement à l'intérieur du MCP à l'aide de pinces et de supports de laboratoire. Les thermocouples sont introduits périodiquement, en fonction des essais, à une position et une hauteur définies. Cela permet d'éviter qu'ils gèlent dans le MCP en phase de refroidissement et les protège de la cryolithe, trop corrosive. Ils sont toutefois maintenus à l'intérieur du four, au-dessus du MCP liquide, pour limiter la perturbation du milieu lors des mesures. Les orifices sont positionnés de manière à pouvoir placer les thermocouples à des positions spécifiques dans le creuset. Ces positions sont indiquées en annexe B.

3.3 Mesures indirectes

3.3.1 Système de mesure à ultrasons

Un système à ultrasons a été développé afin de mesurer le front de solidification de manière non-intrusive. Contrairement aux systèmes utilisant les rayons X, un laser ou des particules radioactives, les systèmes ultrasons ne nécessitent pas de préparation spéciale de l'échantillon qui pourrait affecter le médium testé. En outre, les ultrasons permettent d'évaluer plusieurs grandeurs physiques sur le médium testé tels que l'épaisseur, la densité, les propriétés élastiques et mécaniques, les défauts, etc. Malgré la richesse des informations obtenues *via* les signaux ultrasonores, la mesure est fortement limitée par le contact physique entre le transducteur et le matériau testé ainsi que par l'atténuation du signal qui augmente avec la température [107, 177]. Bien que la mesure par ultrasons n'est pas une méthode destructive par nature, le mécanisme de la transmission implique l'utilisation d'une pâte ou d'un liquide afin d'assurer un bon contact de la sonde avec le matériel testé. Les matériaux de graphite qui sont de nature poreuse augmentent la diffusion sonore. La sensibilité de la mesure doit être ajustée afin d'éviter la détection des échos dispersés.

Le système de mesure imaginé couple un transducteur piézoélectrique ultrasonique de type impulsion-écho de 2,25 MHz avec un système de déplacement localisé en dessous du four (bulle n°13, figure 3.2). La technologie repose sur l'utilisation d'un matériau piézoélectrique qui se déforme sous l'effet de l'application d'une tension à ses bornes. On génère ainsi une

onde ultrasonore en ajustant la tension à ses bornes. Dans cette configuration, la sonde sert d'émettrice et de réceptrice de l'onde ultrasonore. En mode réception, l'onde retour vient percuter le capteur et vient déformer le quartz qui émet un voltage proportionnel à sa déformation.

Le système de déplacement permet de déplacer la sonde à ultrasons selon le diamètre du four (direction \vec{x} pour pouvoir comparer les mesures avec celles du système de mesure LVDT + tige décrit à la section 3.2.1. Le transducteur est fixé sur un tube en acier inoxydable avec un collet de serrage. Ce tube possède un système d'amortissement de manière à obtenir un bon contact entre le transducteur et la surface testée, évitant de cette manière une trop forte pression sur le creuset en graphite à haute température.

Un « *delay line* » est placé entre l'élément actif et la surface testée. Il sert de coupleur pour éviter un contact direct et minimise l'atténuation des ondes en assurant un bon couplage. Il agit comme un écran thermique lorsque la sonde de mesure, sensible à la chaleur, est en contact avec le creuset à haute température. L'élément piézoélectrique se détériore lorsque sa température excède les 400 °C.

Cet instrument n'a pas pu être utilisé dans le cas des tests avec des creusets en carbone, car le milieu est trop dispersif (à cause de la taille des grains qui le compose et une porosité pouvant atteindre les 20 %). Les méthodes classiques de mesures de temps de vol ne sont pas adaptées pour déterminer la vitesse des ondes ultrasonores et pour évaluer un front de solidification avec de la cryolithe.

L'utilisation des ultrasons a donc été mise de côté pour privilégier la mesure *via* une caméra infrarouge décrite dans la section suivante. Toutefois, des recherches sont en cours pour pouvoir utiliser un autre système de mesure basé sur les ultrasons avec la cryolithe comme MCP. Cette fois-ci, deux sondes : une jouant le rôle de transmetteur (10 MHz) et l'autre de réceptrice, seront couplées à des cylindres de quartz de 5 cm [74].

3.3.2 Caméra infrarouge

Après avoir étudié les différentes techniques rendant possible la mesure d'un profil de température, le choix s'est orienté vers la caméra thermique qui permet de faire une mesure de profil de température d'une surface sans contact (méthode non-destructive). La mesure peut se faire loin de la surface à étudier et les données peuvent être échantillonnées en temps réel. De plus, cette technique permet de faire des mesures avec un angle de visée de

$\pm 45^\circ$ pour du graphite, au delà l'émissivité varie rapidement. Ainsi, la caméra ne sera pas placée perpendiculairement au creuset mais légèrement de côté pour laisser la place au système de refroidissement qui lui, doit être perpendiculaire à la surface à refroidir.

Principe d'une caméra infrarouge

La thermographie infrarouge est une technique optique qui ne nécessite aucun contact pour détecter les radiations. La caméra thermique est un radiomètre à balayage spatial. Les caméras classiques disposent d'un très grand nombre de détecteurs rangés en lignes et en colonnes (environ 100×100 à plus de 800×600 suivant la résolution désirée). Chacun des détecteurs est le conjugué d'une seule surface élémentaire ΔS de la scène thermique et reçoit en permanence le flux de cette surface. Le rayonnement reçu par le détecteur provoque un échauffement de celui-ci et sa résistance s'en trouve changée. L'analyse de la scène thermique est réalisée par un balayage électronique qui vient consulter périodiquement chacun des détecteurs : c'est la lecture de la matrice. L'information recueillie sur chaque détecteur est par la suite traduite en température. Le temps séparant chaque lecture de la matrice est mis à profit pour intégrer le signal de chaque détecteur, améliorant ainsi le rapport signal sur bruit.

Étalonnage de l'émissivité

Avant chaque utilisation de la caméra, il convient d'effectuer l'étalonnage de l'émissivité. En effet, l'émissivité varie avec l'angle d'observation ainsi qu'avec le matériau et son état de surface. Un corps rugueux a une meilleure émissivité qu'un corps lisse car les anfractuosités jouent le rôle de microcorps noirs (cavités).

La première étape de la mesure de l'émissivité passe par une bonne focalisation de l'objectif et le réglage de la plage de mesure qui sera utilisée lors des tests expérimentaux. On applique sur le matériau visé, une peinture d'émissivité connue ($\epsilon = 0,95$) qui sera la zone de référence ; on fait l'hypothèse que les températures moyennes sur le matériau et sur la référence sont identiques. Une première mesure de la température, T_{Ref} est réalisée sur la zone de référence. Puis la caméra thermique est positionnée en direction de la zone d'émissivité inconnue. L'émissivité est ensuite modifiée progressivement jusqu'à ce que le calculateur donne $T_{Inconnue} = T_{Ref}$.

Caméra thermique et traitement des images

Le modèle choisi est une caméra thermique SC 620 de Flir Systems qui utilise une technique active à excitation longue dont voici quelques caractéristiques techniques :

- distance minimale de focalisation : 0,3 m ;
- résolution thermique : $55 \cdot 10^{-3}$ K ;
- détecteur : matrice de 640 x 480 éléments ;
- réponse spectrale : 7,5 - 13,5 μm ;
- gamme de température : -40 °C à 1 500 °C ;
- incertitude de mesure : ± 2 °C ou ± 2 % de la lecture ;
- images/sec : 30 Hz ;
- enregistrement par carte mémoire ou transfert des images par port Firewire.

Plusieurs sources entachent la précision de la mesure infrarouge et sont listées ci-dessous :

- La réflexion des objets présents dans l'environnement de mesure. Cette source radiative dite $T_{\text{Réfléchie}}$ est mesurée avant chaque test.
- L'angle d'incidence. La caméra thermique est placée au maximum à ± 35 ° de la normale à la surface du creuset.
- Le focus de l'image qui dépend de la taille de la surface à mesurer.
- Les variations d'émissivité sur l'ensemble du profil de surface.

Les mesures de température de surface sont ensuite traitées par le logiciel : *ThermaCam Researcher* de Flir System qui permet l'analyse locale des images, l'acquisition en temps réel, l'exportation des données en différents formats. Une image infrarouge mesurée par la caméra et traitée par le logiciel est donnée à la figure 3.9. Sur cette image est placée une ligne (L1), tracée à l'aide du logiciel, au niveau de la partie inférieure du creuset. Cette ligne a une longueur équivalente au diamètre de l'orifice effectué sur le porte-creuset et est orientée de manière à suivre la direction de mesure du LVDT pour comparaison avec les données extraites des modèles développés aux chapitres 5-6. Les températures mesurées au niveau de la ligne (L1) sont extraites sous forme matricielle.

Le profil classique d'une mesure infrarouge lors de la phase de refroidissement est représentée à la figure 3.9. Il est facilement observable qu'il existe une fluctuation des températures

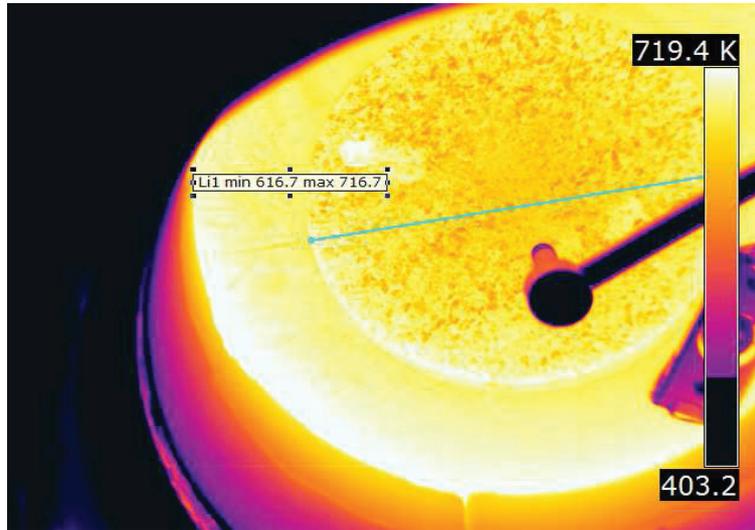


Figure 3.9 Image infrarouge de la partie inférieure du creuset mesurée par la caméra thermique SC 620.

mesurées le long de la ligne (L1). Cette fluctuation est due à la dégradation du creuset en graphite lors de la phase de refroidissement et la création d'interstice où l'émissivité peut être considérée égale à celle d'un corps noir. Une régression linéaire d'ordre 2 est effectuée pour obtenir une équation caractérisant la température sur la ligne (L1). La même méthodologie est appliquée pour chaque image traitée.

Pour évaluer l'incertitude de la caméra infrarouge, il aurait été nécessaire de comparer des mesures de température de surface prises par la caméra infrarouge avec celles d'un capteur étalon à des températures d'opération similaires à celles utilisées au cours des tests avec la cryolithe ($\approx 950\text{ }^{\circ}\text{C}$). N'ayant pas de possibilité d'évaluer l'incertitude du capteur par l'utilisation d'une mesure étalon, l'erreur considérée est $\pm 4\%$ incluant l'erreur de précision donnée par la documentation fournisseur lors des essais de calibration qui est de $\pm 2\%$.

3.4 Mesures des grandeurs thermophysiques caractéristiques

Cette section a pour but de présenter les systèmes de mesures choisis pour évaluer certaines grandeurs thermophysiques utiles pour la validation des modèles numériques.

3.4.1 Sonde de flux

Une sonde de flux mesure le flux de chaleur dans une direction ainsi que la température de surface. Le résultat est exprimé en $W.m^{-2}$. Les sondes de flux ont généralement la forme d'une plaque plate ayant une sensibilité selon la direction perpendiculaire à sa surface. Quand la chaleur traverse la sonde de flux, le matériau constituant la sonde agit comme une résistance thermique. Le flux de chaleur va se déplacer avec un certain gradient de température à travers la sonde, de la zone chaude vers la zone la plus froide.

La majorité des sondes de flux sont constituées d'une thermopile qui est un ensemble de thermocouples connectés en série. Cette configuration augmente la puissance du signal de sortie. Un seul thermocouple va générer une tension de sortie qui est proportionnelle à la différence de température entre ses jonctions. La thermopile est contenue dans un matériau support dont les propriétés sont connues et qui dépend de l'application souhaitée. La différence de température (ΔT) entre les deux surfaces du support contenant les thermocouples est proportionnelle au flux de chaleur et dépend de l'épaisseur (e) ainsi que de la conductivité thermique (k) du support contenant les thermocouples.

Il est possible de remonter à la densité de flux *via* la relation suivante :

$$\vec{\varphi} = -\frac{k}{e}\Delta T \quad (3.2)$$

Chaque sonde de flux à sa propre sensibilité et ses caractéristiques sont données par le fabricant. L'équation gouvernant la conversion au flux tient compte de la dépendance de la sensibilité à la température.

La sonde choisie est une sonde de chez Hukseflux Thermal Sensors de type HF01 ayant une précision de 15 %. Ce type de mesure, comme pour les mesures à ultrasons, est très sensible au bon contact physique entre la sonde et la surface testée.

Vu que la conductivité thermique de la sonde n'est pas équivalente à celle de l'environnement, le flux est défléchi, en particulier vers les bords du capteur. Si le flux n'est pas unidirectionnel à la sonde ou si la sonde n'est pas placée perpendiculairement à la surface de contact, le flux thermique mesuré ne reflètera pas la réalité. Pour remédier à ce problème, il faut s'assurer de poser la sonde de flux sur une surface uniforme, libre de toutes saletés et au besoin d'améliorer le contact avec un ajout de graisse conductrice.

Il existe principalement trois méthodes de fixation :

1. la colle ou l'adhésif ;
2. la technique d'aimantisation ;
3. l'utilisation d'un système de visserie.

Ce dispositif se révèle difficile à tester à cause de la température d'opération atteignant les 950 °C. Dans notre application, les adhésifs ne peuvent être utilisés à une si haute température. Les aimants ne sont pas non plus envisageables car des creusets en Inconel (pour les essais à basse température) et en graphite (pour les essais à haute température) sont prévus et sont tous deux des matériaux difficilement magnétisables. Ces types de creuset ont été choisis pour leur résistance aux hautes températures et pour leur faible interaction avec les MCPs choisis. Pour des raisons de sécurité, il n'a pas été possible de visser directement les sondes de flux sur les creusets en carbone. Ces sondes de flux pourront être utilisées dans le cas de futurs tests avec des MCPs permettant l'utilisation de creuset en acier par exemple ou en utilisant des colles chargées de poudre céramique conçues pour des applications à haute température.

3.4.2 Mesure de diffusivité thermique

La diffusivité thermique α ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) caractérise l'aptitude d'un matériau à diffuser la chaleur. C'est une propriété intervenant dans tous les processus de transfert de chaleur en régime instationnaire. La méthode flash est la méthode de mesure de la diffusivité thermique la plus connue et la plus utilisée car elle permet de faire une mesure sans contact.

L'échantillon est placé au sein d'un four réglé en température. Après stabilisation, un pulse instantané d'énergie (pulse laser) est envoyé sur la face avant de l'échantillon. La chaleur va se propager à travers l'échantillon. L'augmentation de température sur la face arrière de l'échantillon est enregistrée en fonction du temps *via* un détecteur. Le système doit être couplé à des systèmes de refroidissement à l'azote liquide pour le détecteur infrarouge et à l'eau pour la régulation du four. La diffusivité thermique est déterminée à partir du thermogramme et de l'épaisseur de l'échantillon mesurée. Si on considère le cas où des pertes ont lieu, la température de la face arrière va augmenter jusqu'à un maximum et décroître par la suite.

La méthode proposée par Parker *et al.* [164] permet de déduire approximativement la diffusivité thermique en assumant un échantillon isentropique et adiabatique à partir de

la relation suivante :

$$\alpha = 0,1388 \frac{L^2}{t_{1/2}} \quad (3.3)$$

Avec L représentant l'épaisseur de l'échantillon et $t_{1/2}$ le temps de demi-montée.

Cette technique requiert un échantillon de faible dimension (25 mm de diamètre) et de quelques millimètres d'épaisseur (maximum 10 mm). La difficulté de la mesure réside sur le fait qu'il faut avoir un échantillon le plus plat possible et une émissivité maximale afin que le signal récupéré par le détecteur donne des résultats probants.

D'autres méthodologies existent pour évaluer la diffusivité thermique à partir du thermogramme telles que la méthode des moments temporels [53] et la méthode des temps partiels [52], etc. Il faut cependant retenir que la composante aléatoire de l'incertitude est mieux estimée à partir d'essais répétés. Les sources d'erreurs systématiques dans la mesure sont associées à l'échantillon lui-même, aux mesures de température, au rendement du détecteur, au circuit d'acquisition de données et à l'analyse de données (la largeur d'impulsion, le chauffage non uniforme de l'échantillon, la dilatation thermique de l'échantillon et les pertes de chaleur par rayonnement). L'incertitude de mesure de la diffusivité thermique est généralement comprise entre 3 % et 5 % en fonction de la température maximale du test [14, 90].

Le diffusivimètre choisi est le modèle LFA 457 de la société Netzsch. Ses caractéristiques permettent la mesure de la diffusivité en fonction de la température pour l'ensemble des matériaux et MCPs utilisés durant nos tests :

- gamme de mesure : 0,01 à 1 000 mm.s⁻¹ ;
- gamme de température : TA (température ambiante) - 1 100°C ;
- précision de la mesure : ± 5 %.

La conductivité des différents matériaux utilisés dans cet ouvrage a été évaluée expérimentalement et une caractérisation thermique plus poussée de ces matériaux est disponible dans l'étude réalisée par Khatun [112].

3.4.3 Mesure de la température de fusion (T_f)

La détermination de la température de fusion du MCP (T_f) est essentielle pour la validation et la précision des modèles numériques développés puisque c'est à partir de cette

valeur que sont calculés les profils transitoires de solidification. La mesure est réalisée par un Analyseur Enthalpique Différentielle (DSC).

Le DSC est un système déterminant la variation de flux thermique émis ou reçu par un échantillon lorsqu'il est soumis à une variation de température, sous atmosphère contrôlée. Lors d'une chauffe ou d'un refroidissement, toute transformation intervenant dans un matériau est accompagnée d'un échange de chaleur : la DSC permet de déterminer la température de cette transformation et dans quantifier la chaleur échangée.

En DSC, on utilise deux échantillons lors de la mesure. L'un constituera l'échantillon de référence et l'autre l'échantillon à tester. Chaque matériau est placé dans un creuset spécifique où vient s'insérer un thermocouple. Ces creusets sont ensuite posés sur un porte-échantillon généralement en platine dont les propriétés thermiques sont connues.

Lorsqu'un système subit une réaction de transformation sous l'effet d'un programme de chauffage ou de refroidissement, sa température évolue différemment de celle de l'étalon. La différence de température (ΔT) qui s'établit entre le matériau qui réagit et le matériau inerte de référence est mesurée. Celle-ci est proportionnelle à la chaleur échangée au cours de la réaction ou à la différence d'énergie sensible entre l'échantillon et la référence.

Les effets thermiques liés aux différentes perturbations (régulation de température, environnement du calorimètre) sont compensés par un montage différentiel où sont mesurés les échanges thermiques, qui s'opèrent par conduction *via* le porte échantillon en platine, entre le bloc régulé en température (T) et chacun des deux creusets contenant l'échantillon et la référence inerte. Ces échanges thermiques sont mesurés par de capteurs fluxmétriques. La différence de température entre les creusets est maintenue à une valeur nulle par addition de puissance thermique au niveau du creuset de l'échantillon ou celui contenant la référence, selon que la réaction est endothermique ou exothermique. L'intégration de la puissance thermique nécessaire pour maintenir l'écart de température entre les deux creusets à zéro, en fonction du temps, fournit la valeur de la chaleur associée au phénomène thermique se produisant dans l'échantillon.

La mesure de la température de fusion a été effectuée *via* un DSC 404 F3 Pegasus de Netzsch pour une température de fonctionnement atteignant les 1 500 °C. La chaleur latente peut également être évaluée à partir des thermogrammes. Ces valeurs sont disponibles aux tableaux 5.2 et 6.2 et sont extraites des mesures faites par [112]. Il faut noter que la précision de l'appareil est de $\pm 3 \%$.

3.5 Acquisition et contrôle

Le montage expérimental est équipé d'un système permettant l'acquisition et le traitement de l'ensemble des signaux numériques et analogiques provenant des capteurs de mesure. Il assure également le contrôle des différents systèmes de régulation.

Le système est composé d'un châssis dans lequel il est possible d'insérer 5 modules différents. Ces modules offrent une large gamme de fonctionnalité incluant entre autres des modules pour les entrées analogiques, des modules pour les sorties analogiques et d'autres pour les entrées/sorties digitales. Les modules d'entrées analogiques amplifient, isolent et filtrent les signaux d'entrée provenant des sondes de mesure ayant généralement une tension très faible de l'ordre du μV . Quant aux modules de sorties analogiques, ils fournissent une tension et un courant isolés pour la commande de système. Les modules d'entrées/sorties digitales assurent l'isolation des signaux digitaux. Il faut parfois intégrer au système des blocs terminaux, utilisés pour sécuriser la connexion des signaux aux modules. Certains terminaux sont conçus pour travailler avec un type de module spécifique et fournissent un conditionnement du signal pour certaines sondes. On peut citer par exemple le bloc terminal pour mesurer les tensions des thermocouples qui comprendra un circuit de compensation de soudure froide.

Concernant le châssis, il contrôle, alimente les modules et agit sur la communication entre eux. Pour notre application, un système de type National Instruments (NI) PXI-1033 a été choisi intégrant les modules suivants :

- NI TB-2605 est un bornier à compensation de soudure froide intégrée. Le bornier se connecte directement sur l'entrée/sortie d'un NI PXI-2501. Sur ce bornier est branché l'ensemble des thermocouples ainsi que les sondes de flux thermiques. La sortie du bornier est connectée à un multimètre NI PXI-4070.
- Un multiplexeur NI PXI-2501 permettant un balayage à haute vitesse des signaux basse tension ($\pm 10\text{ V}$) avec un temps de commutation de $30\ \mu\text{s}$.
- Un multimètre NI PXI-4070 de 23 bits de résolution et cadencé à 1,8 millions d'échantillon par seconde ($M_{éch}\cdot\text{s}^{-1}$).
- Un module d'acquisition de données NI PXI-6221 multifonctions (analogique, numérique, fréquence, tension). Sa sensibilité pour des mesures de tension continue est de $5,2\ \mu\text{V}$. Le module est relié au bloc de connexion d'E/S blindé NI SCB-68 pour des mesures très précises de tension provenant du LVDT.

Une application Labview a été développée pour pouvoir traiter l'ensemble des mesures et des données acquisitionnées. À la figure 3.10, un schéma représentant le système d'acquisition dans sa globalité est présenté.

3.6 Conclusion

Le montage expérimental détaillé dans ce chapitre est conçu pour permettre des tests variés. Il permettra à l'avenir d'étudier et caractériser le phénomène de solidification de matériaux à changement de phase ayant une température de fusion pouvant atteindre les 1 000 °C grâce notamment au contrôle précis des conditions de chauffe et de refroidissement. La modularisation du banc d'essai est un atout important de ce type de montage car il permet de tester divers équipements de mesure qu'ils soient intrusifs ou non-intrusifs.

Ainsi, plusieurs systèmes de mesure détaillés ici ont pu faire l'objet de tests permettant la validation de leur utilisation pour deux types de MCP (le zinc et la cryolithe) dans le chapitre 4 :

- la caméra thermique ;
- le LVDT.

Ce montage a également été utilisé pour valider un modèle inverse modélisant la solidification de la cryolithe décrit au chapitre 6.

CHAPITRE 4

VALIDATION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Avant-Propos

Auteurs et affiliation :

C. Bertrand : Étudiant au doctorat, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie mécanique.

M. Désilets : Professeur, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique.

G. Soucy : Professeur, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique.

Date d'acceptation : 14 novembre 2011

État de l'acceptation : Version finale acceptée

Revue : Review of Scientific Instruments

Référence : [21]

Contribution au document : Cet article présente les méthodes de mesure, décrit l'appareillage et le protocole de mesure utilisés pour la validation du banc expérimental détaillé au chapitre 3. Il présente également les premiers résultats obtenus avec les instruments de mesure du changement de phase qui seront utilisés pour valider la méthode inverse détaillée au chapitre 6.

Titre en français : Mesures expérimentales au sein d'un réacteur métallurgique à changement de phase.

Résumé en français : La mesure de l'évolution du front de solidification est essentielle pour l'optimisation et le contrôle de nombreux procédés métallurgiques. Cependant, cette mesure est fastidieuse, imprécise et chronophage. Généralement, l'industrie a besoin d'instruments fiables pour la caractérisation thermique des réacteurs à changement de phase. Cet article fournit aux chercheurs les moyens et les instruments pour étudier le comportement thermique des procédés impliquant la transformation de matériaux à changement de phase jusqu'à 1 000 °C. Dans ce document, un montage expérimental original est décrit et est utilisé pour analyser le comportement de deux matériaux à changement de phase à haute température : le zinc et les sels fondus. Il est entre autre possible d'évaluer l'évolution temporelle en 2-D du front de solidification. Les mesures effectuées avec le zinc mettent en évidence la présence de deux régimes thermiques : la diffusion thermique suivi du changement de phase. Une vitesse de solidification de 20 mm.hr⁻¹ est mesurée avec deux approches différentes : des thermocouples et une sonde mécanique. Enfin, une caméra infrarouge est également employée pour faire le lien entre le comportement thermique externe et l'évolution du front de solidification à l'intérieur du réacteur. Lorsque cette mesure est intégrée dans une méthode numérique inverse, l'utilisation de cet instrument comme nouveau capteur non-intrusif semble prometteuse.

4.1 Introduction

Phase change phenomena occur in many industrial applications such as latent heat storage systems [63, 120, 151], castings [226, 237], blast furnaces and aluminium electrolysis cells [206, 208, 227]. In these solid-liquid transformations, the position of the solidification front and its progression are essential parameters since accurate measurements of these variables are needed for improving the energy efficiencies and designs of the related equipments. Although many techniques exist for tracking the solidification front and its velocity, they can be categorized into two categories : intrusive or non-intrusive techniques.

Intrusive techniques include thermocouples [36, 108, 199] and thickness probes [178, 204]. In the first case, the location of the solidification front is determined by analyzing the cooling curves of an arrangement of thermocouples judiciously located, knowing the melting temperature of the phase change material (PCM). The second technique concerns the utilization of a mechanical probe with which the solid-liquid interface relative to a known reference location is immediately measured. Both techniques are generally suitable for non-corrosive environments and cheaper than any other measurement techniques. Moreover, the data treatment is very simple. Unfortunately, since the probes are directly in contact with the PCM, the temperature field is locally disturbed. The profile and the velocity of the solidification front may be altered as well. Much less attention has been paid to the quantification of these effects.

Non-intrusive techniques such as optical instruments [5, 108, 150, 169, 190] are often used to get directly the solidification front, even if these techniques are restricted to transparent PCMs and reactors. X-rays tracking systems [141, 239, 240] are interesting despite the fact that they are limited to samples of a few centimeters and require fastidious data processing. Many papers [162, 163, 193] are devoted to the applicability of ultrasound systems. In these works however PCMs with melting point less than 400 °C are normally used. To overcome this temperature limitation, some authors attempted to couple a piezoelectric transducer (PZT) with a transmission medium [41, 60, 96, 104, 158, 181]. Ultrasound techniques are sensitive to the quality of the contact between the piezoelectric sensor and the surface studied. The acoustic impedance, an extrinsic property of the PCM, has also an important effect on the measurements.

Another interesting technique couples the measurement of thermal variables such as temperature, temperature field or heat flux, at a specific location, with the tracking of the

solid-liquid interface by resolving a numerical inverse method [123, 145, 223]. Other measurement techniques can be found in Ref. [22].

To the author’s knowledge, no measurement technique has been designed to support high temperature and corrosive PCMs such as those existing in the smelting industry. In view of the harshness of such production environment, developing a measurement technique is a challenging goal. We tackled this challenge by designing a small-scale experimental setup to develop and test different solidification front measurement techniques using an important quantity of PCM up to 1 000 °C in a controlled environment. The coupling of external measurements with direct internal measurements through the use of an inverse method to track solidification fronts has never been presented (figure 4.1) and could be a new way to control the solidification process.

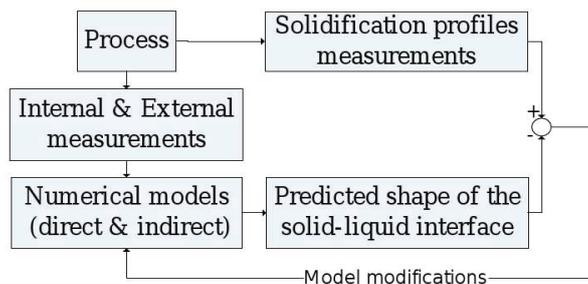


Figure 4.1 Control strategy for the solidification front.

The objective of this work is to describe the use of an original experimental setup giving the opportunity to test several internal and external measurement techniques and numerical methods developed mainly to evaluate the dynamic behaviour and the thickness of the solidification front for an electrolytic bath. Firstly, a detailed description of the experimental bench and the possible measurements are presented. A section is dedicated to explain how the natural convection is considered within the system. Then the procedure employed and the equipment used are described. Tests were conducted with two high temperature PCMs such as zinc and molten salts. This article also explores the possibility of using two instruments to evaluate the evolution of the solidification front. Finally, the thermal behavior of the two PCMs is reported in the last section.

4.2 Experimental Setup

The experimental bench is designed to reproduce the environmental conditions existing in a typical smelting reactor. This bench, illustrated in figure 4.2, allows the modification of

various parameters that have an influence on the performance of the phase-change process, including the dynamic of cooling and heating. It also makes it possible to test internal and external solidification front measurement techniques. For the sake of clarity, it can be assumed that the experimental setup is divided into six subsystems :

- cylindrical oven ;
- graphite crucible ;
- cooling system ;
- internal measurement systems ;
- external measurement systems ;
- acquisition and control systems.

4.2.1 Cylindrical oven

The main part of this metallurgical reactor rests on a 20 kW cylindrical oven (designed by Pyradia). The particularity of the oven is that the heating elements are inserted inside ceramic plates. This geometry offers two advantages : the heating process is more uniform within the furnace and the heating elements are protected from any possible leak from the crucible.

The base of the oven is composed of a superposition of two refractory layers : an insulation brick layer and a high temperature concrete layer. The concrete layer (Kaocrete HS) has been chosen for its high mechanical resistance (34,5 MPa) enabling the test of large PCM volume (up to 0,04 m³). An opening of 0,305 m was done at the bottom of the oven to get a direct access to the carbon crucible. The oven is elevated at 1,28 m over the ground level in order to install the cooling system and the thermal measurement equipments described in the following sections. A hood is also installed on the top of the oven to evacuate any dangerous vapor or hot gas.

4.2.2 Graphite crucible

The choice of the crucible material has been done based on the PCM chemical compatibility and the level of temperature. A graphite crucible is chosen here. Few materials can support the chemical degradation done by the corrosive molten salts used in the metal smelting and graphite is already used in this industry. Preliminary tests with normal operating

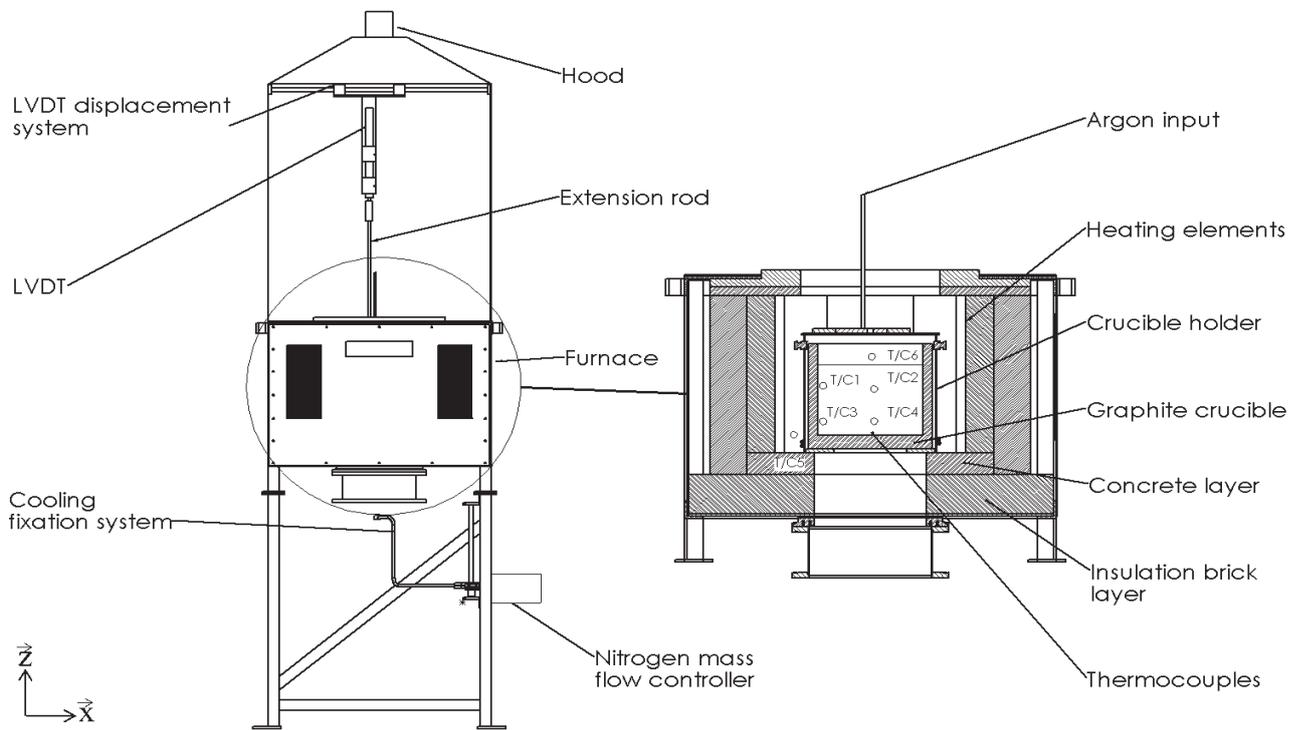


Figure 4.2 Experimental setup.

conditions ($1\,000\text{ °C}$, $125\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ nitrogen cooling) were conducted to get the optimal thickness of the graphite crucible bottom wall.

The cylindrical graphite crucible, having an internal diameter of $0,29\text{ m}$ and an external diameter of $0,34\text{ m}$, is placed at the center of the oven using a crucible holder. This crucible holder also ensures a protective atmosphere within the crucible when temperature of the test exceeds 500 °C . Argon is used here, as an inert gas, since its density is slightly higher ($1,7837\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ at 0 °C , $101,325\text{ kPa}$) compared to air. An opening of $0,20\text{ m}$ was done at the crucible holder bottom to get a direct access to the carbon crucible bottom surface where the cooling process occurs. This configuration permits a preferential heat flow in the downward direction. The heat flow and gravity directions being aligned, the convective phenomena, within the liquid PCM, are minimized. This surface is also dedicated to :

- Dynamic thermal measurements using heat flux sensors ;
- External measurement techniques such as an infrared camera [122, 172]. This technique is detailed in section 4.2.5.

4.2.3 Cooling system

The cooling system is composed of a mass flow controller (Omega model FMA 2612A) coupled with a brass straight nozzle (0,006 m internal diameter). The nozzle is maintained at a fixed relative position with respect to the metallurgical reactor, *via* a specific positioning system. It enables to test different nozzle locations using a volumetric flow that ranges up to 250 L.min⁻¹. Nitrogen is employed as the cooling fluid because it is lighter than ambient air (1,2506 kg.m⁻³ at 0 °C, 101,325 kPa). This inert gas helps to protect the crucible against air oxidation. Temperature of injected nitrogen is measured directly by the mass flow controller and is controlled by a heating element placed directly at the exit of the nitrogen supply.

4.2.4 Internal measurement systems

The internal measurement techniques consist of :

1. Five type K thermocouples (accuracy $\pm 0,75$ %), four of whom (thermocouples T/C 1 - 4 in figure 4.2) are placed inside the carbon crucible at specific locations with a precision of ± 2 mm. The function of these thermocouples is twofold ; they serve to get the thermal behavior of the PCM and to get the evolution of the solidification front during the experiments, having an *a priori* knowledge of the PCM melting temperature. The fifth thermocouple is positionned between the crucible holder cover and the PCM (thermocouple T/C 6).
2. A new experimental technique is developed to measure directly the solid-liquid interface. It is essentially composed of a linear variable displacement transformer (LVDT) coupled with a 0,76 m long extension rod (0,0125 m OD). The LVDT is a low cost device largely employed in industrial processes because of its reliability and its accuracy. The output voltage being proportional to the rod displacement, the solidification profiles can be directly measured when the rod is moved to get in contact with the solidification front. Since the temperature field inside the oven is mainly axisymmetric, the measurements of the solidification profiles are only taken along the crucible diameter by mean of a displacement system specially designed. The rod is held inside the furnace to prevent any material solidification and to restrict the impact of the measurement on the temperature distribution inside the PCM as well as thermal shocks. A preliminary test with normal operation conditions without any PCM was carried out to evaluate the exact thermal dilations of the rod and of the carbon crucible during the heating process.

To determine the LVDT accuracy, five samples (thicknesses of 3,5; 9,4; 12,7; 63,9; 105,3 mm) were measured randomly with ten repetitions at ambient temperature. The data obtained were compared to the measurements done with a vernier micrometer. A statistic treatment of the data was done to determine two equations characterizing the absolute error bars both above and below (ΔER_{max} and ΔER_{min}) each thickness measurement (see figure 4.3). The following equations were obtained :

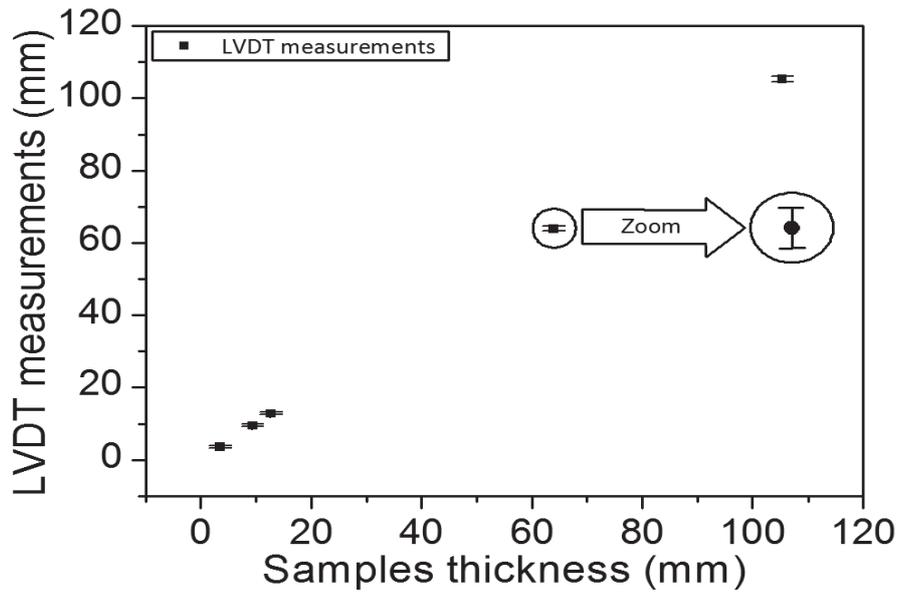


Figure 4.3 LVDT measurement errors.

$$\begin{aligned} \Delta ER_{max}(mm) &= 1,0043 \times \text{Solid thickness (mm)} \\ &\quad - (\text{Solid thickness (mm)} + 0,3577) \end{aligned} \quad (4.1)$$

$$\begin{aligned} \Delta ER_{min}(mm) &= 0,9942 \times \text{Solid thickness (mm)} \\ &\quad - (\text{Solid thickness (mm)} + 0,1910) \end{aligned} \quad (4.2)$$

4.2.5 External measurement systems

The development of inverse numerical models requires the use of external measurement sensors. Two sorts of techniques were selected.

1. Heat flux sensors (HF01 Hukseflux) are placed under the crucible holder once the temperature is low enough. The precision can reach $\pm 15\%$, depending on the contact resistance as well as the heat flux.

2. An infrared camera is placed under the reactor to set a continuous reading of the temperature profile under the carbon crucible. Since the measurements are done behind the cooling system, the fluid flow under the carbon crucible is not disturbed. Emissivity and reflected temperatures (infrared radiation reflected to the camera by the surrounding areas) are measured before each experiment. Considering the accuracy specifications provided by the manufacturer, a temperature profile accuracy of $\pm 4\%$ is achieved.

4.2.6 Acquisition and control systems

A Labview application on a Dell Precision T3400 (Intel Core 2 Quad Q6600, 2,40 Ghz) was developed to acquire and to control the following equipments :

1. the control of the furnace temperature is done with the help of an E5CK Omron Controller coupled with a type K thermocouple (T/C 5, figure 4.2) ;
2. the furnace controller as well as the cooling gas mass flow controller are connected to the computer *via* DB-9 connectors ;
3. thermocouples and heat flux sensors are acquired by a five-slot PXI data acquisition instrument from National Instruments (model NI PXI-1033), including a multiplexer (NI PXI-2501) coupled to a digital multimeter (NI PXI-4070) ;
4. a two 16-bit analog input board (NI PXI-6221) is used to acquire DC voltage coming from the LVDT.

The infrared camera is a USB instrument controlled by a dedicated software (ThermaCam Researcher 2.9) which serves also to extract the temperature fields.

Finally, the inert gas flows are controlled manually with two Omega variable area rotameters.

4.3 Convection heat transfer within the crucible

It is known that the rate of cooling, positions of cooled or heated boundaries, the shape of the enclosure, the initial concentration of the melt and gravitational field all have an influence on the melt motions within a liquid phase and consequently on the rate and profile of solidification. In the specific case of alloys, the formation of a mushy zone, in which both the liquid and solid phases coexist, can occur during the solidification. The heat

and mass transfer can be altered when the liquid flows within the interstices of the mushy layer. Moreover, thermal gradients and/or compositional gradients also have an impact on the natural convective flow of the melt and are mainly caused by the gravitational field [233].

Many studies, both experimental and numerical, have focused on the natural convection in enclosures, especially for rectangular geometries or annulus with different boundary conditions or orientations [8, 85, 211]. For cylindrical geometries, both vertical and horizontal orientations have been analyzed [102, 125, 127, 212]. However, most studies in vertical cylinders deal with a problem where a fluid layer is heated from below and cooled at its upper surface.

In smelting industries, few researchers estimated the heat transfer coefficient in aluminium cells. One can cite the works of Taylor et Welch [200, 202] as well as Gan et Thonstad [76]. It was found that the natural convection for the frozen ledge varies from 450 to 750 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Chen *et al.* [39] did a review of bath-ledge convection coefficients calculated by theoretical estimations, numerical models and experimentations.

In the experimental setup developed here, the carbon crucible is heated by the furnace elements on the vertical sides and on the top of the crucible while the bottom is under a forced cooling process. Thus, it is clear that the heat transfer within the melt PCM is due to the natural convection. Despite the fact that the natural convection exists in our system, the numerical model developed in Ref. [135] assumes that the heat transfer within the liquid PCM is conduction-dominated in order to simplify the implementation of such a problem within an inverse method and in the perspective of a control strategy. Indeed, when cryolite is used, the evaluation of natural convection within a multi-component PCM having a mushy zone is CPU time consuming. Nevertheless, the effects of the flow motions are considered using an enhanced thermal conductivity [2, 32, 58, 135, 198].

4.4 Experimental Procedure

4.4.1 Tested phase change materials

Two PCMs were considered in order to validate the experimental setup and to investigate cases of increasing complexity :

- commercial 99,9 % zinc was primary used to calibrate and to test the experimental setup using a non-corrosive metallic PCM ;
- molten salts (corrosive PCM mainly composed of cryolite).

4.4.2 Experimental protocol

The experimental procedure for both cases is described in the following paragraphs :

1. The furnace temperature is fixed to 525 °C (1 000 °C in the case of the molten salts) with a heating speed of 5 °C.min⁻¹. An argon volumetric flow of 34 L.min⁻¹ (3,45 bar) is set inside the crucible holder to maintain an inert atmosphere inside the furnace.
2. During the heating process, an insulation block is installed inside the furnace opening at its bottom to reduce the heat losses and to limit the oxidation of the bottom exposed surface of the graphite crucible. A nitrogen flow rate of 16 L.min⁻¹ (3,45 bar) is also used between the insulation block and the crucible to flush away the air at this critical location. The system reaches the steady-state after approximately 4 hours.
3. During the cooling process, the insulation block is first removed. The brass nozzle is then installed at 0,10 m from the bottom surface of the crucible. To avoid any thermal shock, the forced nitrogen flow is gradually increased up to 150 L.min⁻¹ (increments of 20 L.min⁻¹).
4. The infrared camera is installed under the furnace. Throughout the cooling process, thermocouples at locations described in figure 4.2, as well as the heat fluxes can be acquired up to a minimum sampling interval of 10 s.
5. Measurements with the LVDT systems were taken at each prescribed point at $P_i = \{-12, 7; -10, 2; -5, 1; 0; 5, 1; 10, 2; 12, 7\}$ cm from the center of the crucible. Five repetitive LVDT measurements are done to improve statistic treatment of the data. The solidification profile retained is the average value of these five readings. These profile measurements as well as the infrared mapping are done every 15 min.

4.4.3 Case of the molten salts

The molten salts used here is mainly composed of cryolite (80,5 wt.% Na_3AlF_6) and three additives (11,5 wt.% AlF_3 , 5,45 wt.% CaF_2 and 2,5 wt.% Al_2O_3). The phase diagram of such a PCM is illustrated in figure 4.4 and was realized using Factsage (v6.2).

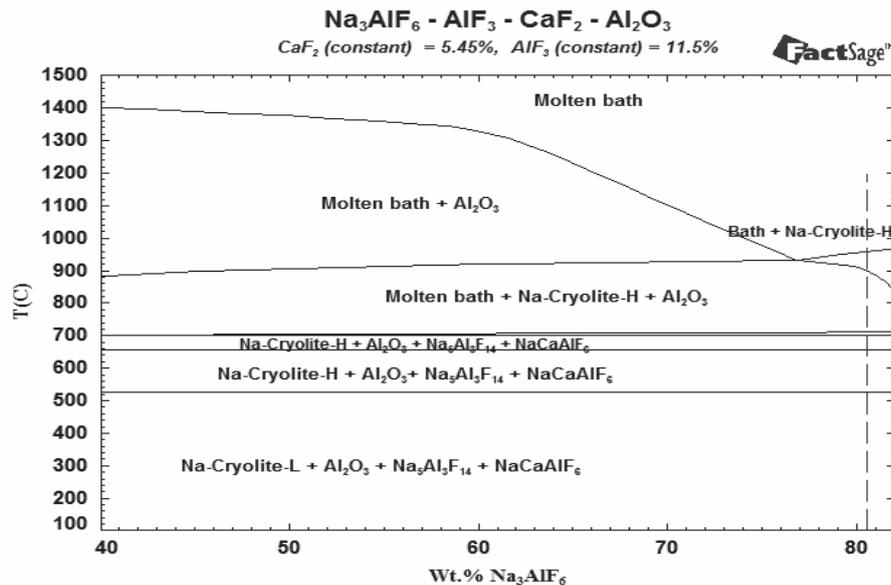


Figure 4.4 Isopleth diagram of Na_3AlF_6 - Al_2O_3 - 11,5 wt.% AlF_3 - 5,45 wt.% CaF_2 . Dashed line shows the solidification of the studied bath at 80,5 wt.% Na_3AlF_6 and 2,5 wt.% Al_2O_3 .

Tableau 4.1 Transition temperatures during the solidification of the studied bath.

°C	Fraction (wt.%)					
	Molten bath	Al_2O_3 (Alumina , corundum)	Na- cryolite	$\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ (chiolite)	NaCaAlF_6 Ca- cryolite)	CaF_2 (fluorite)
957,7	100,0	-	-	-	-	-
898,3	49,7	-	50,3(H)	-	-	-
709,1	27,4	2,2	70,4(H)	-	-	-
699,1	2,6	2,5	66,4(H)	28,5	-	-
699,1	-	2,5	65,7(H)	30,9	0,9	-
654,0	-	2,5	60,2(H)	31,2	6,1	-
654,0	-	2,5	60,2(H)	31,2	6,1	-
525,6	-	2,5	53,8(H)	31,3	12,4	-
525,6	-	2,5	52,4(L)	31,3	13,8	-
25,0	-	2,5	51,9(L)	31,3	14,3	-

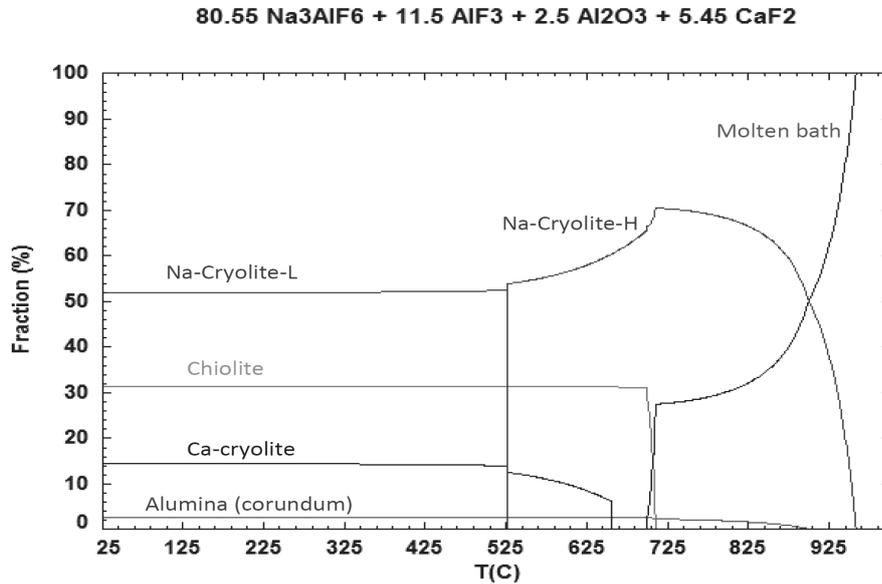


Figure 4.5 The solidification of the molten bath leads to the precipitation of different compounds.

Considering the experimental procedure described at section 4.4.2 and the used PCM, we can see that the first phase that is solidifying is Na-cryolite-H at 957,7 °C (table 4.1). It is clearly observed that heating of the present bath, up to the liquid state region, followed by cooling, in equilibrium condition, results in transformation of phases, particularly cryolite to chiolite (see table 4.1 and figure 4.5). At 525,6 °C, a solid-solid transformation occurs where the Na-cryolite composition changes.

4.5 Results

The experimental setup detailed in the previous sections aims at studying the thermal behaviour of the system as well as at validating the LVDT and infrared measurement systems in the case of two different PCMs.

Firstly, 37 kg of commercial zinc having a melting point of 421 °C¹ were tested. Figure 4.6 shows the temperature evolutions of the experimental setup measured by three thermocouples (T/C 2, 4, 6) during a cooling process of 4 hr. These thermocouples are respectively located at 0, 2,5 and 13,7 cm from the bottom of the graphite crucible. For clarity, the error bars for the temperature curves T/C 2 and T/C 4 are not shown. The mean solidification front measured by the LVDT is also illustrated in this figure.

¹measured with a Differential Scanning Calorimeter

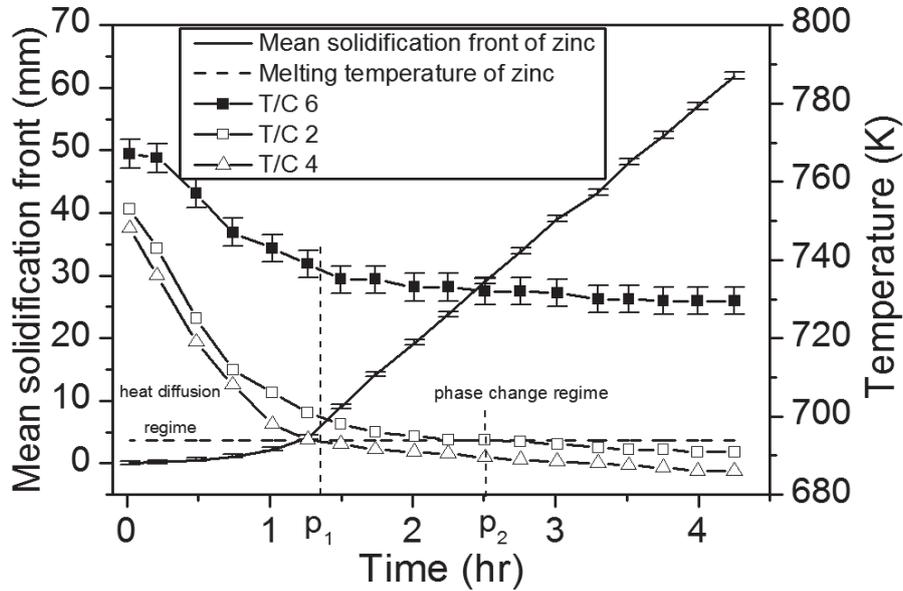


Figure 4.6 Temperatures inside the crucible and zinc mean solidification front.

In figure 4.6, whether one looks at the temperature curves or at the mean solidification curve, it clearly appears that the solidification process is composed of two regimes. The first one, occurring between 0 and $P_1 = 1,35$ hr, is imputable to the heat diffusion within the liquid PCM. In this regime, the average slope of the temperature curves T/C 2 and T/C 4 are around -44 $^{\circ}\text{C}.\text{hr}^{-1}$ while the mean solidification is equal to zero. The intersection between the temperature curve T/C 4 and the melting temperature of zinc (P_1) represents the beginning of the phase change process and the second regime. In this part, the slope of the temperature curves decreased at -2 $^{\circ}\text{C}.\text{hr}^{-1}$, due to the phase change process and a lower conductivity of zinc in the solid phase (around 110 $\text{W}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). A constant solidification rate of 22 $\text{mm}.\text{hr}^{-1}$ is however measured. This rate can also be calculated using the intersections between the melting temperature of zinc and the temperature curves T/C 4 (P_1) and T/C 2 (P_2) and knowing the distance between these two thermocouples.

The variation of the experimental solidification front with time is given in figure 4.7. For the sake of clarity, only 8 solidification profiles are illustrated. No profiles can clearly be obtained before 1 hr of cooling. After this point, the phase change phenomenon is rapid, the 2D profiles have a convex form and are symmetrical with respect to the crucible center. Indeed, the nozzle is located at the center of the crucible, thus the convection coefficient is higher close to the crucible center and decreases along the crucible radius. The PCM is cooled down rapidly due to its high thermal conductivity.

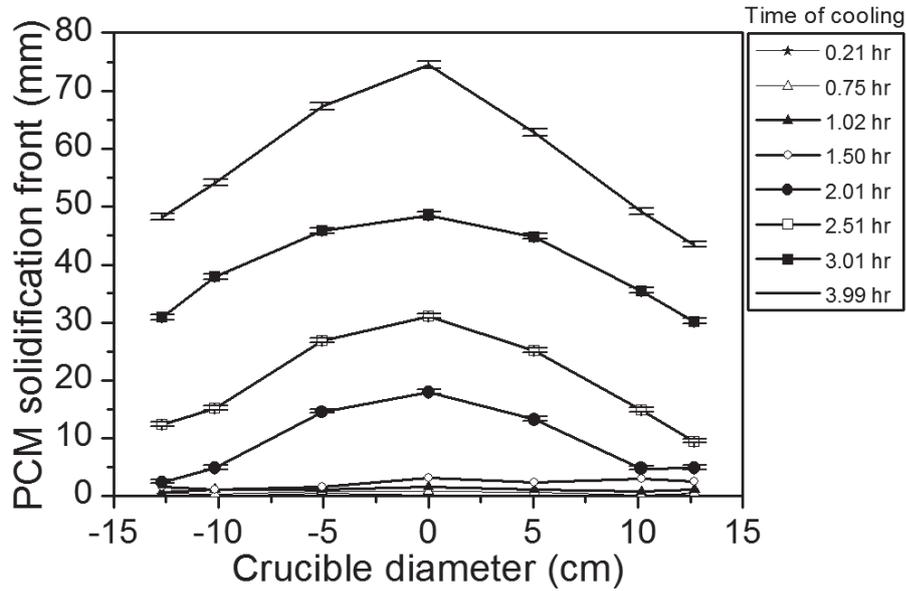


Figure 4.7 2D solidification profiles of zinc. Only a few error bars (time of cooling ≥ 2 hr) are shown for visual clarity.

Natural convection also occurs within the liquid phase increasing the 2D profile and modifying the solidification front dynamics. After 4 hours of cooling, a maximum solidification of 74 mm is obtained (over the possibility of 81 mm when all the PCM is solid).

External measurements are done using the infrared camera. Figure 4.8 presents an infrared photography of the graphite crucible containing zinc after 45 min of cooling. The porosity of the graphite crucible is easily observed (black spots) on the picture. The temperature data have been extracted on a line drawn at the center of the crucible, at the exact location where the LVDT measurements have been done. The porosity produce a noise on the measured temperatures since the emissivity should not, in this case, be considered as a constant (normally $\epsilon = 0,95$). A linear regression was thus chosen to get the temperature field and minimize the impact of this noise on our results. This procedure was done for each picture at every 15 min.

Some of the temperature profiles are presented in figure 4.9. These profiles have a concave form centered with respect to the middle of the crucible and showing the location of the cooling system. The curves should be symmetric. Nevertheless, the temperatures are 20 °C higher on the left side when compared to the right side. This can be attributed to the porosity of the graphite and/or the misplacing of the cooling probe.

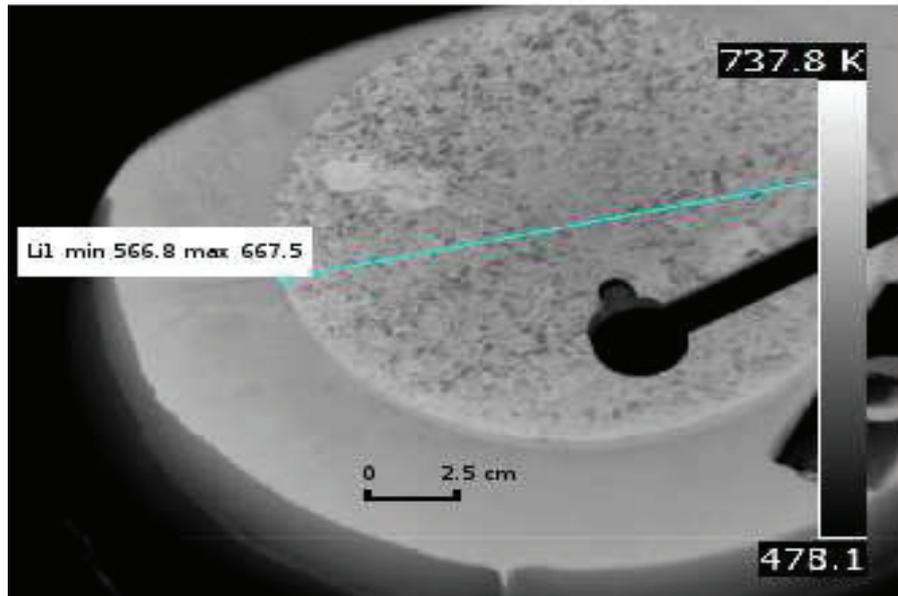


Figure 4.8 Measurement of the temperature field using an infrared camera.

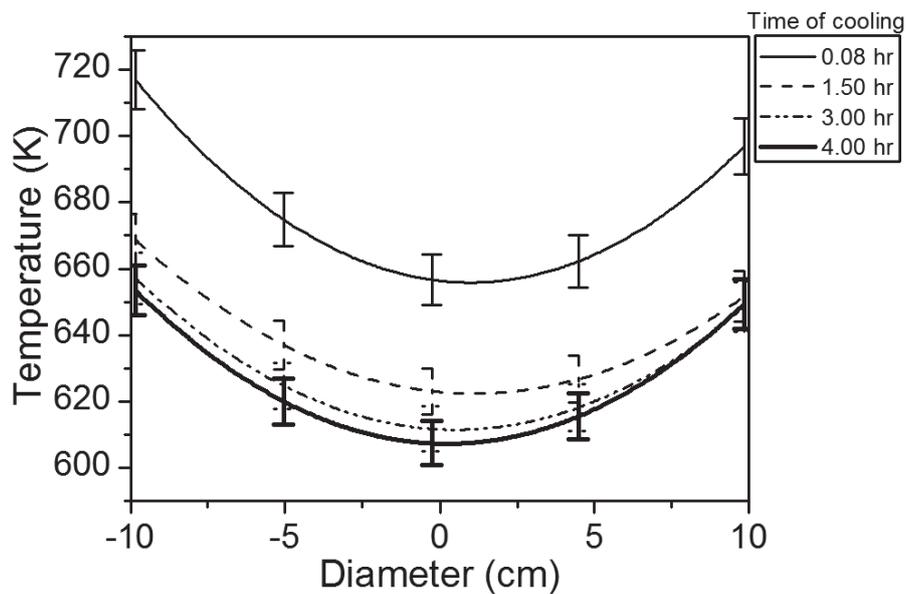


Figure 4.9 2D temperature fields under the graphite crucible obtained by an infrared camera.

The change in temperature profiles largely decreases before 1,5 hr of cooling. Considering an accuracy of $\pm 4\%$ with the infrared camera, the profiles obtained after 1,5 hr could be considered similar. Therefore, coupling an inverse numerical method with an infrared camera can be a challenging task, in this particular case given that after 1,5 hr, no temperature variation can be precisely measured while a zinc solidification rate of $22 \text{ mm}\cdot\text{hr}^{-1}$ occurs within the crucible. This phenomenon should not appear with the molten salt given

that its low conductivity increases the global thermal resistance of the system. A way to attenuate this problem is to increase the measurement frequency of the camera.

Finally, 2D solidification profiles during 2,32 hr were measured using 18 kg of molten salts as a PCM (see figure 4.10). It is worth to mention that a reduction of 1 mm is observed on the rod length after the experiment. The LVDT measurements have been modified to take into account this phenomenon.

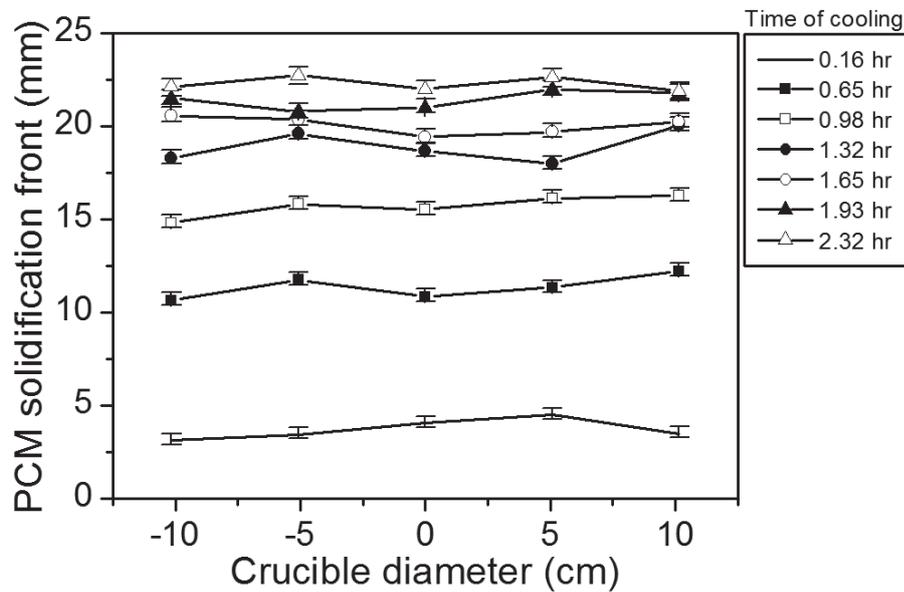


Figure 4.10 2D solidification profiles of molten salts. Measurements with the LVDT systems were taken at $P_i = \{-10, 2; -5, 1; 0; 5, 1; 10, 2\}$ cm from the center of the crucible.

Unlike solidification profiles obtained with zinc, the solidification fronts of the molten salts are flatter and only one solidification regime is detected due to a lower superheat. Figure 4.11 illustrates this solidification regime. In this case, the variation of the forced convection coefficient with the radius has a low impact on the solidification profile because the solid thermal resistance composed by the solidified PCM and the graphite crucible is high due to the low thermal conductivity of the molten salts (around $1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$).

Figure 4.11 also shows the temperature measured by four thermocouples (T/C 1 - 4). T/C 1 and 3 are placed at 12,4 cm from the center of the crucible with a distance of 7,5 and 2,5 cm from the bottom of the crucible. T/C 2 and 4 are fixed at 6,7 cm from the center of the crucible and are at the same height as T/C 1 and 3 respectively. The temperatures were manually taken, introducing the thermocouples during the forced cooling process. Since cryolite is extremely corrosive, specially at high temperatures, it was not possible to let

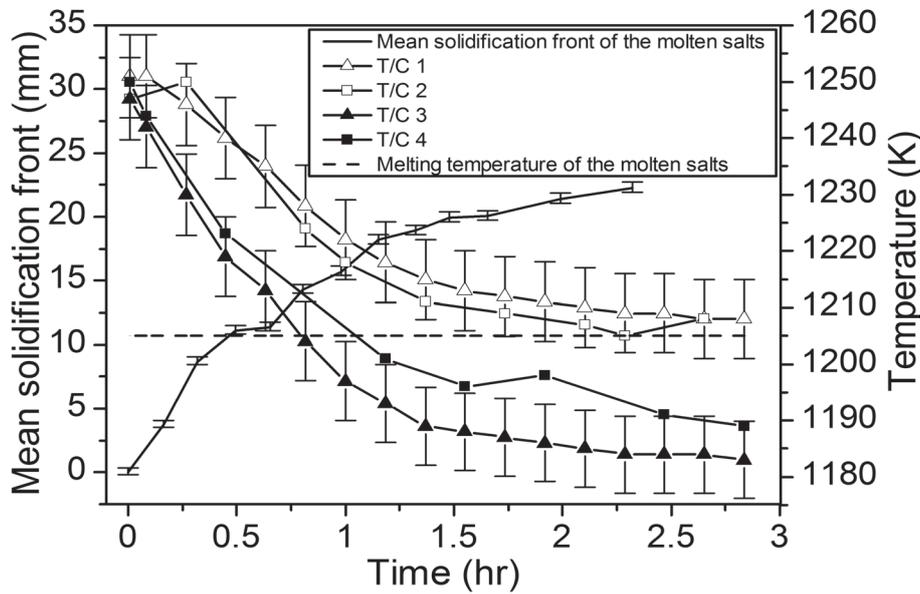


Figure 4.11 Temperatures inside the crucible and mean solidification front of molten salts. The error bars for the temperature curves T/C 2 and T/C 4 are not shown.

the thermocouples inside the liquid PCM. Consequently, the minimum periodicity of the measurement is around 10 min. Figure 4.11 demonstrates that vertical thermal gradients exist inside the liquid phase (between T/C 1 and 3 or T/C 2 and 4) and increase with the mean solidification front evolution during the experiment with a maximum of 25 °C. No major horizontal thermal gradient can be seen considering the measurement errors of the thermocouples. Due to low temperature differences, the existing natural convection is very limited and has a low impact on the 2D solidification profiles.

4.6 Conclusion

A new experimental bench has been designed to evaluate the thermal behavior of large samples of phase change materials up to 1 000 °C. Its design makes it possible to test internal and external measurement instruments aiming at measuring the solidification front evolution with time. Control and acquisition signals can be monitored and stored by a computer. Moreover, we have described a new system for directly measuring the transient solidification front. More precisely, a linear variable displacement transformer (LVDT) coupled with an extension rod has been used to determine 2D solidification profiles of zinc and molten salts. The study of zinc shows two thermal regimes and a solidification rate around 20 mm.hr⁻¹ was measured. This last result was also confirmed by the analysis of thermocouple data. The use of an infrared camera as an external measurement technique

has been demonstrated but was still limited by the acquisition rate. Nevertheless, this apparatus will be integrated in an inverse numerical method in further tests.

CHAPITRE 5

RÉSOLUTION DIRECTE DU PROBLÈME DE STEFAN

Il a été démontré dans le chapitre 3 que le montage expérimental développé était représentatif des phénomènes thermiques présents dans une cellule d'électrolyse d'aluminium. L'un des objectifs du montage est de valider les modèles numériques qui ont été développés pour simuler le changement de phase solide-liquide à haute température. Ce chapitre a pour but de présenter dans un premier temps les équations caractéristiques des phénomènes thermiques puis de formuler le problème physique du changement de phase. Le problème est mis ensuite en équations et la méthode des volumes de contrôle utilisée pour résoudre ces équations est présentée. Enfin, le modèle numérique est appliqué sur un cas concret permettant sa validation.

5.1 Modèle théorique

Cette section vise à formuler et à expliciter les équations théoriques régissant les phénomènes de transfert de chaleur au sein du montage expérimental étudié dans le chapitre 3.

Soit un milieu solide, isotrope et homogène à l'intérieur duquel s'effectue uniquement un transfert de chaleur par conduction. Le milieu est incompressible et stationnaire. Des sources internes de chaleur interviennent en générant une puissance volumique \dot{q} . Le bilan énergétique s'obtient en appliquant le principe de conservation de l'énergie à un volume fini V , limité par une surface fermée S et contenu dans un milieu solide entre deux instants très voisins t et $t + \Delta t$ (voir figure 5.1). On obtient :

$$\int \int \int_V \rho c_P \frac{\partial T}{\partial t} dV dt = - \int \int_S \vec{\varphi} \cdot \vec{n} dS dt + \int \int \int_V \dot{q} dV dt \quad (5.1)$$

$\vec{\varphi}$ représentant un flux de chaleur surfacique. Afin de transformer l'intégrale de surface en une intégrale de volume, on utilise le théorème de Green fréquemment utilisé en analyse vectorielle :

$$\int \int_S \vec{A} \cdot \vec{n} dS = \int \int \int_V \text{div} \vec{A} dV \quad (5.2)$$

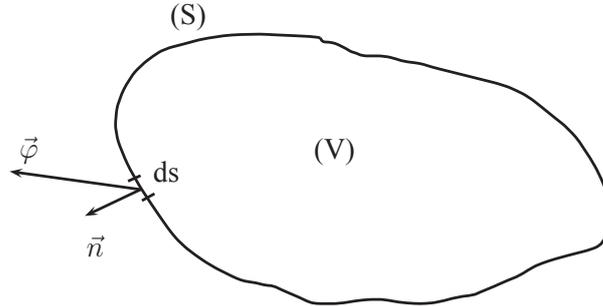


Figure 5.1 Schématisation du transfert de chaleur dans un volume solide V .

Le bilan énergétique 5.1 se formule alors :

$$dt \times \int \int \int_V \left[-div \vec{\varphi} + \dot{q} - \rho c_P \frac{\partial T}{\partial t} \right] dV = 0 \quad (5.3)$$

L'équation 5.3 doit être satisfaite $\forall V$. En tout point du milieu considéré, l'équation de conservation de l'énergie devient :

$$div \vec{\varphi} + \rho c_P \frac{\partial T}{\partial t} - \dot{q} = 0 \quad (5.4)$$

En intégrant la loi de Fourier : $\vec{\varphi} = -k_T \overrightarrow{grad} T$ dans l'équation 5.4, le problème se résume à résoudre l'équation suivante :

$$\rho c_P \frac{\partial T}{\partial t} = div \left[k_T \overrightarrow{grad} T \right] + \dot{q} \quad (5.5)$$

Le premier terme de l'équation représente la variation d'énergie interne où ρ est la masse volumique de la substance présente et c_P la chaleur massique à pression constante. Les deux termes, à droite de l'équation, représentent respectivement la quantité de chaleur par diffusion entrant dans le volume V de conductivité thermique k et la quantité de chaleur générée dans V en raison de la présence des sources internes.

5.2 Méthode enthalpique

Les problèmes de transfert de chaleur mettant en jeu les phénomènes de changement de phase solide-liquide sont des cas difficiles à traiter analytiquement. Des solutions analytiques existent pour des cas simples majoritairement pour des géométries 1D avec des matériaux eutectiques où le changement de phase est supposé isotherme. On peut citer par exemple les cas suivants :

- Lorsque la solidification 1D d'un MPC liquide dans un domaine semi-infini est soumis à un échelon de température T_w . Le front de solidification satisfait les relations [4] :

$$x_{sl}(t) = 2\lambda\sqrt{\frac{k_{MCP_s}t}{\rho_{MCP_s}c_{MCP_s}}} \quad (5.6)$$

$$\lambda e^{\lambda^2} \operatorname{erf}(\lambda) = c_{MCP_s} \frac{T_o - T_w}{\sqrt{\pi}L} \quad (5.7)$$

- Lorsque le problème concerne l'étude de la solidification d'une barre semi-infinie à l'état liquide soumise à une condition de Dirichlet (T_w) sur une de ces frontières et isolée thermiquement sur l'autre. Dans ce type de configuration, la position adimensionnée du front de solidification (x_{sl}^*) est la solution de l'équation suivante [148] :

$$\frac{T_f - T_i}{T_f - T_w} \frac{k_s}{k_l} \sqrt{\frac{\alpha_l}{\alpha_s}} \frac{\exp\left(-\left(\frac{\alpha_l}{\alpha_s}\right)(x_{sl}^*)^2\right)}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\alpha_l}{\alpha_s}x_{sl}^*\right)} + \frac{\exp\left(-(x_{sl}^*)^2\right)}{\operatorname{erf}(x_{sl}^*)} - \frac{\sqrt{\pi}x_{sl}^*L}{c_l(T_f - T_w)} = 0 \quad (5.8)$$

Avec :

$$x_{sl}^* = \frac{x_{sl}}{2\sqrt{\alpha_l t}} \quad (5.9)$$

et

$$\alpha_i = \frac{k_i}{\rho c_i} \quad i \in \{s, l\} \quad (5.10)$$

Les indices s et l font références aux phases solide et liquide.

Rathjen et Jiji ont également trouvé une solution analytique pour le cas d'un domaine 2D semi-infini soumis à une température constante lorsque $(x, y) > 0$ [173]. Cependant la grande majorité des études sur le changement de phase sont réalisées à partir d'une approche numérique du problème.

La grande difficulté du problème du changement de phase, appelé communément le problème de Stefan, réside dans le fait que l'équation aux dérivées partielles qui régit le phénomène doit satisfaire certaines conditions aux frontières qui ne sont généralement pas connues à l'avance. De plus, la position de ces conditions limites doit être déterminée en fonction du temps et de l'espace. Alors, pour résoudre ce type de problème, il faut se tourner généralement vers une analyse numérique du phénomène. Alexiades et Solomon, Crank et Özisik ont notamment présenté diverses techniques couramment utilisées pour résoudre ce genre de problème [4, 48, 160].

Dans les problèmes de changement de phase, le matériau étudié est présent dans le milieu sous deux phases et est séparé par l'interface solide-liquide se déplaçant dans le temps. Les propriétés thermiques évoluent de façon non-linéaire entre ces deux phases et un saut des propriétés thermiques apparaît ce qui rend la résolution numérique difficile et provoque des problèmes de convergence. Parmi les méthodes numériques permettant de suivre l'interface diphasique, les méthodes de « front-tracking » et « enthalpique » sont largement utilisées. Le premier schéma permet d'obtenir explicitement la position de l'interface. La méthode enthalpique est celle envisagée ici car sa résolution numérique est simple et est plus représentative des phénomènes thermiques puisque :

- Le problème est reformulé de manière à ce que la condition sur l'interface solide-liquide (ou condition de Stefan) soit implicitement liée à un seul jeu d'équations de conservation et qu'elle puisse s'appliquer à n'importe quel point du domaine de résolution [194, 218, 219].
- La position de l'interface diphasique est alors déterminée *a posteriori* comme une caractéristique de la solution. Le déplacement du front de solidification n'a pas besoin d'être déterminé explicitement [37].
- Plusieurs études ont déjà validé l'utilisation de la méthode enthalpique [47, 124, 217].

Pour se faire, une fonction enthalpique H_T a été introduite dans l'équation de la chaleur simulant l'énergie emmagasinée ou libérée lors du changement de phase. En négligeant la présence de sources internes, l'équation 5.5 devient :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (k \vec{\nabla} T) - H_T \quad (5.11)$$

Avec :

$$H_T = \delta H \frac{\partial f}{\partial t} \quad (5.12)$$

où :

$$\delta H = \rho (c_{P_l} - c_{P_s}) T + \rho L \quad (5.13)$$

f représente la fraction volumique liquide. c_{P_s} et c_{P_l} représentent respectivement les chaleurs spécifiques à pression constante de la substance à l'état solide et liquide. L est la chaleur latente de fusion. ρ est la masse volumique telle que $\rho = \rho_s = \rho_l$.

La chaleur spécifique moyenne du MCP est estimée à l'aide de la fraction volumique liquide suivante :

$$c = (1 - f) c_{P_s} + f c_{P_l} \quad (5.14)$$

Lorsque des substances pures ou des alliages eutectiques sont étudiés, le changement de phase s'effectue à une température de fusion T_f . Néanmoins, dans le cas de mélanges ou d'alliages, le changement de phase survient dans un intervalle de température $[T_s, T_l]$. L'énergie ainsi dégagée est déduite de la fraction liquide $f(x, y, t)$ selon une fonction construite de manière à varier linéairement dans l'intervalle de température $[T_s, T_l]$ telle que :

$$f = F(T) = \begin{pmatrix} 0 & T \leq T_s \\ \frac{T-T_s}{T_l-T_s} & T_s < T < T_l \\ 1 & T \geq T_l \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

Il faut noter que la fraction liquide est généralement dépendante de plusieurs paramètres tels que la température, la concentration, taux de refroidissement ainsi que de la vitesse et de la nature de la solidification [219]. De plus, le type de relation liant les propriétés thermiques de la phase liquide et celles de la phase solide au sein de la zone pâteuse ont un impact sur la stabilité numérique du modèle [133]. Afin d'éviter de complexifier le modèle numérique et le temps de calcul, il est communément assumé que la fraction liquide est uniquement dépendante de la température [218, 219]. Bien que différents types de fonctions de fraction liquide existent [219], une représentation affine de la fraction liquide donne de bons résultats et est représentative des phénomènes qui ont lieu dans des fours métallurgiques [198]. Dans le cas où l'intervalle entre T_s et T_l est faible, la convergence peut être considérablement améliorée en considérant un lissage de type Hermite entre $f = 0$ et $f = 1$, assurant ainsi la continuité en valeur et en dérivée de la fonction.

5.3 Résolution numérique

La méthode enthalpique décrite dans la section 5.2 est appliquée sur un repère cartésien et la démarche numérique générale aboutissant à la résolution de problèmes de solidification/fusion de matériau à changement de phase est développée dans les sections suivantes.

5.3.1 Présentation du schéma numérique considéré

Un schéma numérique de type implicite à maillage fixe a été utilisé car la matrice des équations algébriques à résoudre a une structure régulière et est donc facilement programmable. Il est toutefois difficile de contrôler la concentration des points dans une région

d'intérêt à moins de changer le maillage au fur et à mesure de la résolution numérique du problème.

Le schéma implicite implique que les valeurs à déterminer sont exprimées en fonction des valeurs antérieures aux points considérés et à partir des valeurs inconnues présentes aux nœuds voisins à un même instant t . Ce type de schéma a l'avantage d'être moins limité par le choix du pas de temps. La résolution de l'équation générale de la conduction 2D est ensuite effectuée en utilisant la méthode des volumes de contrôle de Patankar [166] et s'inspire des travaux de Swaminathan et Voller [194] et Elgafy *et al.* [66].

Le domaine de calcul est discrétisé en un nombre fini de points. Le maillage est effectué de manière à ce que chaque point du maillage se trouve entouré d'un volume élémentaire appelé volume de contrôle. Les équations aux dérivées partielles décrites à la section 5.2 sont ensuite intégrées sur chaque volume de contrôle (voir figure 5.2) pour obtenir des équations discrétisées qui peuvent être résolues numériquement *via* un algorithme. Les informations continues de la solution des équations caractéristiques sont alors remplacées par des valeurs discrètes. Cette méthode a été choisie parce que la solution implique que la conservation de l'énergie doit être satisfaite quel que soit le volume de maillage présent dans le domaine de calcul.

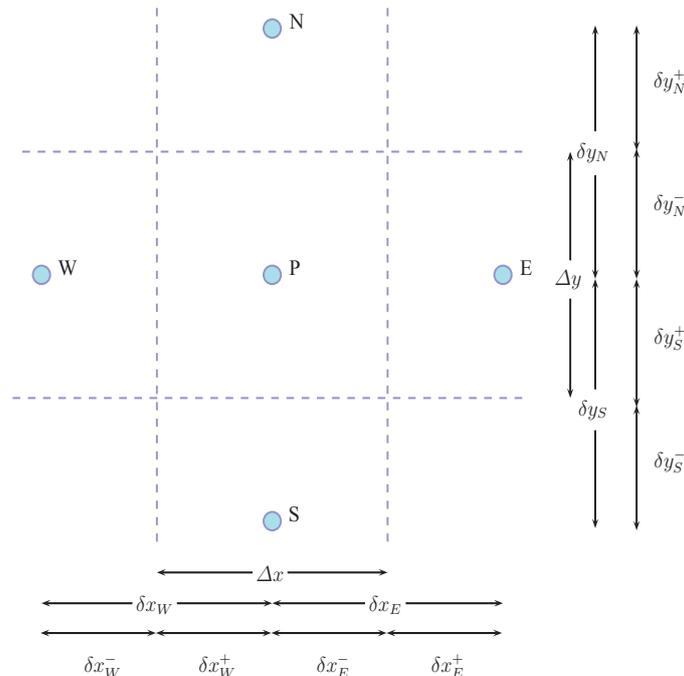


Figure 5.2 Schématisation des volumes de contrôle. La maille P correspond au volume de contrôle considéré. Les mailles N, S, E, W sont les volumes de contrôle au nord, sud, est, ouest respectivement.

L'équation générale de la conduction 2D (éq. 5.11) est alors appliquée au point P au centre du volume de contrôle de la figure 5.2 représentant un volume de contrôle dans une géométrie en coordonnées cartésiennes :

$$\rho c (T_P - T_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} = \left[\left(k \frac{\partial T}{\partial x} \right)_E - \left(k \frac{\partial T}{\partial x} \right)_W \right] \Delta y + \left[\left(k \frac{\partial T}{\partial y} \right)_N - \left(k \frac{\partial T}{\partial y} \right)_S \right] \Delta x - \delta H_P (f_P - f_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} + \bar{S} \Delta x \Delta y \quad (5.16)$$

Un terme supplémentaire $\bar{S} \Delta x \Delta y$ a été introduit dans l'équation 5.16. Ce terme sera uniquement utilisé pour insérer, suivant la position du nœud considéré, la condition limite. Le terme \bar{S} est ensuite linéarisé de la sorte :

$$\bar{S} = S_C + S_P T_P \quad (5.17)$$

$\bar{S} \Delta x \Delta y$ étant nul à l'intérieur du domaine de calcul.

La variation de température entre le point considéré P et le nœud voisin est évaluée par une différence finie centrée d'ordre 2.

L'équation 5.16 devient :

$$\rho c (T_P - T_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} = \frac{k_E}{\delta x_E} (T_E - T_P) \Delta y - \frac{k_W}{\delta x_W} (T_P - T_W) \Delta y + \frac{k_N}{\delta y_N} (T_N - T_P) \Delta x - \frac{k_S}{\delta y_S} (T_P - T_S) \Delta x - \delta H_P (f_P - f_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} + (S_C + S_P T_P) \Delta x \Delta y \quad (5.18)$$

Puisque le terme δH_P est fonction de la température, l'équation 5.18 est non-linéaire. L'équation 5.18 peut être reformulée de manière itérative telle que :

$$\rho c (T_P^{t+1} - T_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} = \frac{k_E}{\Delta x} (T_E^{t+1} - T_P^{t+1}) \Delta y - \frac{k_W}{\Delta x} (T_P^{t+1} - T_W^{t+1}) \Delta y + \frac{k_N}{\Delta y} (T_N^{t+1} - T_P^{t+1}) \Delta x - \frac{k_S}{\Delta y} (T_P^{t+1} - T_S^{t+1}) \Delta x - \delta H_P (f_P^{t+1} - f_P^0) \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} + (S_C + S_P T_P^{t+1}) \Delta x \Delta y \quad (5.19)$$

L'exposant $t + 1$ correspond à l'itération en cours.

Voller et Swaminathan [218] ont formulé une approximation de la fraction liquide f_P^{t+1} en se servant d'un développement en série de Taylor tronquée :

$$f_P^{t+1} = f_P^t + \left. \frac{dF}{dT} \right|_{f_P^t} \left(T_P^{t+1} - F^{-1} \Big|_{f_P^t} \right) \quad (5.20)$$

En insérant l'équation 5.20 dans l'équation 5.19, il devient :

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} \left(\rho c + \partial H_P \left. \frac{dF}{dT} \right|_{f_P^t} \right) + \frac{\Delta y}{\Delta x} (k_E + k_W) + \frac{\Delta x}{\Delta y} (k_N + k_S) - S_P \Delta x \Delta y \right] T_P^{t+1} = \\ & k_E \frac{\Delta y}{\Delta x} T_E^{t+1} + k_W \frac{\Delta y}{\Delta x} T_W^{t+1} + k_N \frac{\Delta x}{\Delta y} T_N^{t+1} + k_S \frac{\Delta x}{\Delta y} T_S^{t+1} \\ & + \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} \left[\rho c T_P^0 + \delta H_P \left(f_P^0 - f_P^t + F^{-1} \Big|_{f_P^t} \left. \frac{dF}{dT} \right|_{f_P^t} \right) \right] + S_C \Delta x \Delta y \end{aligned} \quad (5.21)$$

Pour la résolution numérique, l'équation est mise sous la forme d'une équation aux différences de la forme :

$$(a_P - A1) T_P^{t+1} = a_W T_W^{t+1} + a_E T_E^{t+1} + a_N T_N^{t+1} + a_S T_S^{t+1} + b \quad (5.22)$$

Avec :

$$\begin{aligned} a_W &= k_W \frac{\Delta y}{\Delta x} ; a_E = k_E \frac{\Delta y}{\Delta x} ; a_N = k_N \frac{\Delta x}{\Delta y} ; a_S = k_S \frac{\Delta x}{\Delta y} \\ a_P &= a_W + a_E + a_N + a_S + \rho c \left(\frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} \right) - S_P \Delta x \Delta y \\ A1 &= -\partial H_P \left. \frac{dF}{dT} \right|_{f_P^t} \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} \\ b &= \frac{\Delta x \Delta y}{\Delta t} (\rho c T_P^0 + \delta H_P (f_P^0 - f_P^t)) - A1 F^{-1} \Big|_{f_P^t} + S_C \Delta x \Delta y \end{aligned} \quad (5.23)$$

k_j est la moyenne harmonique de la conductivité thermique définie entre le nœud P et le nœud voisin telle que :

$$k_j = \frac{2 k_P^{VC} k_j^{VC}}{k_P^{VC} + k_j^{VC}} \Big| j = \{N, S, E, W\} \quad (5.24)$$

À titre d'exemple, dans le cas où un flux surfacique est appliqué sur la face nord du domaine, les équations 5.3.1 sont modifiées pour tous les nœuds présents sur cette surface

nord par :

$$\begin{aligned} S_P &= 0 \\ S_C &= \frac{|\vec{\varphi}|}{\Delta y} \end{aligned} \quad (5.25)$$

Si un flux de chaleur surfacique échangé par convection et radiation est appliqué au niveau de la face sud du domaine par exemple, les équations 5.3.1 sont dans ce cas de figure remaniées de la sorte :

$$\begin{aligned} S_P &= \frac{-1}{\Delta y \left(\frac{1}{h_{comb_S}} + \frac{\Delta y}{k_P} \right)} \\ S_C &= \frac{T_{\infty_S}}{\Delta y \left(\frac{1}{h_{comb_S}} + \frac{\Delta y}{k_P} \right)} \end{aligned} \quad (5.26)$$

Une fois que les équations sont transformées pour satisfaire les conditions frontières appliquées aux différents nœuds considérés, on obtient un système d'équations qui permet d'obtenir le champ de température dans le domaine en imposant un maillage défini par le couple de constantes $(\Delta x, \Delta y)$ et par la définition d'un pas de temps Δt donné.

La procédure de résolution débute par imposer $f_P^t = f_P^0$. Puis l'ensemble des coefficients est calculé et la matrice des équations (5.22) est résolue de manière à obtenir le champs de température \mathbf{T}^{t+1} . La fraction liquide est finalement mise à jour en appliquant l'équation 5.20. Les deux dernières étapes sont répétées jusqu'à convergence de la solution.

La fraction de liquide est donc calculée pour chaque pas de temps ce qui permet de remonter et de suivre l'évolution du front de solidification dans le temps. Le système d'équation est résolu *via* la méthode implicite des directions alternées [35]. Il faut noter que la taille des mailles $(\Delta x, \Delta y)$ et le pas de temps Δt sont dépendants du problème traité. Ils sont fonctions de la géométrie à l'étude, des propriétés thermophysiques et des hypothèses considérées pour simplifier la géométrie et les équations gouvernantes.

5.3.2 Validation du choix de la méthode enthalpique et des paramètres de discrétisation

Les résultats obtenus par les simulations numériques sont entachés d'erreurs. Outre les erreurs de modélisation dues notamment aux choix du modèle numérique et à la simplification délibérée des équations caractéristiques s'appuyant sur les hypothèses posées, des

erreurs de discrétisation et de troncature sont présentes. Celles-ci influent sur la qualité de la solution et peuvent créer des problèmes de convergence du modèle numérique. Le choix des paramètres de discrétisation est donc primordial.

Validation du modèle enthalpique

Le modèle numérique a fait l'objet d'une comparaison avec un modèle simplifié utilisé dans l'industrie de la production d'aluminium dans lequel le changement de phase n'est pas modélisé explicitement et le MCP est présent sous une seule phase. Marois *et al.* ont comparé, en utilisant les propriétés de la cryolithe, les résultats obtenus avec le modèle enthalpique et un modèle dit « industriel », où la fonction enthalpique H_T est négligée. Ceci dans plusieurs cas transitoires et de conditions limites simulant les variations de flux existants dans les cellules d'électrolyse. Il a été démontré que les deux modèles sont robustes lorsque des cas en régime permanent sont étudiés mais le modèle enthalpique est cependant plus adéquat pour simuler les phénomènes transitoires [134].

Le modèle enthalpique a également été comparé à une solution analytique décrite par les équations 5.6-5.7. Marois a adapté le modèle (géométrie et conditions initiale et limites) pour satisfaire les hypothèses posées pour ce cas analytique étudié. Il a été prouvé que les résultats étaient similaires et que le modèle enthalpique développé permet de simuler adéquatement les problèmes à changement de phase isotherme [133].

Validation du pas d'espace

Le schéma de résolution repose sur la méthode des différences finies. Le modèle numérique est ainsi soumis à des erreurs de troncature liées aux approximations des équations aux dérivées partielles par le schéma numérique de discrétisation. En effet, ces dérivées partielles sont approximées et la précision de celles-ci est liée aux ordres des termes négligés $O(\Delta x^2)$ dans les séries de Taylor [46, 72, 215]. Marois [133] et Minkowycz *et al.* [144] estiment que l'erreur apportée par les séries de Taylor est de $O(\Delta x^2)$. De plus, étant donné que le maillage a une résolution finie et que la température dans la maille est considérée uniforme (pas de gradient de température à l'échelle de la maille), des erreurs dues à la discrétisation spatiale existent.

Marois *et al.* [134] ont effectué des études paramétriques et de sensibilité sur le modèle présenté ici pour étudier la solidification verticale de la cryolithe contenue dans un creuset cylindrique en carbone soumis à une convection forcée sur sa base et en testant l'impact d'une variation soudaine de flux surfacique imposée sur la face opposée. Ils ont pu déter-

miner que l'équilibre énergétique est atteint pour un maillage optimal, similaire à celui représenté à la figure 5.2, de $\Delta x = \Delta y = 0,005 \text{ m}$.

Validation du pas de temps

La précision du modèle numérique pour simuler les phénomènes transitoires de changement de phase est dépendante du pas de temps sélectionné puisque la température au sein de chaque maille est calculée et réactualisée selon le paramètre d'itération choisi. Selon Bianchi *et al.*, l'approximation de la dérivée partielle temporelle repose sur le nombre de Fourier de maille caractérisant la diffusion dans les mailles (voir figure 5.2) et qui est défini par [24, 134] :

$$\Delta Fo = \frac{k \Delta t}{\rho c \Delta x^2} \quad (5.27)$$

L'étude réalisée par Marois *et al.* a permis notamment de valider le maillage temporel effectué sur le modèle direct où le schéma de résolution temporelle suit le schéma d'Euler décentré au premier ordre [24, 134]. Dans la suite du document le pas de temps considéré est de $\Delta t = 10 \text{ s}$. Cette valeur permet de bien représenter les phénomènes transitoires avec de la cryolithe comme MCP ($\Delta Fo \ll 1$) [24, 133].

5.4 Application du modèle

La formulation enthalpique du problème de changement de phase, décrit dans la section 5.2, a été appliquée sur un cas concret représentatif des fours à hautes températures. Les sections qui suivent décrivent les étapes suivies pour aboutir à la validation de la méthode numérique développée.

5.4.1 Description du problème

Le four métallurgique conçu est représenté de manière simplifiée à la figure 5.3. De manière standard, le MCP est contenu à l'intérieur d'un creuset semi-graphitique et confiné à l'intérieur d'une région représentée par ς . Cette région est formée d'une zone solide ς_s , d'une zone pâteuse ς_m et d'une zone liquide ς_l de telle sorte que $\varsigma = \varsigma_s \cup \varsigma_m \cup \varsigma_l$. Le creuset semi-graphitique est représenté par ς_c . Le creuset est ensuite introduit dans un porte-creuset en acier afin de faciliter son positionnement dans le four et d'assurer une atmosphère inerte en injectant de l'argon en continu. De la laine d'alumine est placée autour du porte-creuset pour assurer l'étanchéité de celui-ci et pour éviter que de l'azote utilisé pour refroidir la surface externe du creuset ne s'introduise dans le four et vienne ainsi perturber sa régulation. La consigne du four est fixée à une température supérieure

à la température de fusion T_f du MCP. Une fois la température stabilisée dans le four et le régime établi obtenu, le processus de solidification est réalisé en projetant de l'azote sur la partie inférieure du creuset. Le système de mesure manuel composé du LVDT et de la tige d'alumine permet de suivre l'évolution de ce front de solidification *via* des mesures périodiques le long du diamètre du creuset. Quant à la caméra thermique, elle est utilisée à la fois pour mesurer le champs de température en dessous du creuset mais sert également au contrôle de la dégradation du creuset durant les expériences.

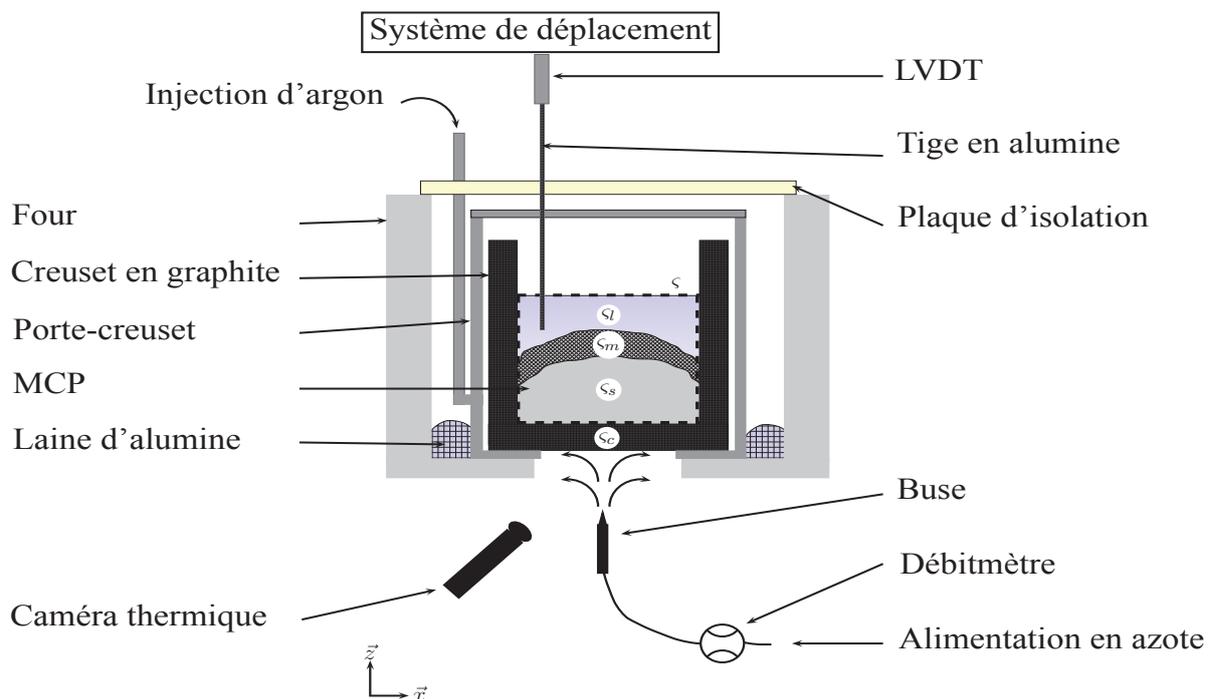


Figure 5.3 Représentation simplifiée du montage expérimental.

Les phénomènes thermiques présents dans un tel système sont présentés à la figure 5.4. Le volume de contrôle choisi correspond à une demi-section selon le plan Oxz coupant le centre du creuset cylindrique exploitant ainsi les conditions de symétrie qui existent dans le four. Aux frontières Ω_1 et Ω_3 de ce volume de contrôle, des flux surfaciques φ_1 et φ_3 sont présents et correspondent à la chaleur dégagée par le four et qui est absorbée par le système. Un flux de chaleur convectif est imposé à la frontière Ω_2 . Le coefficient de transfert de chaleur global h prend en compte non seulement les effets dus à la convection forcée se produisant le long de la paroi inférieure du creuset mais également des pertes thermiques par radiation. La frontière Ω_4 se trouve sur l'axe de symétrie du creuset.

À la vue d'un tel système, valider une méthode numérique directe simulant le changement de phase est une tâche ardue car l'évaluation du flux surfacique sur une paroi en graphite

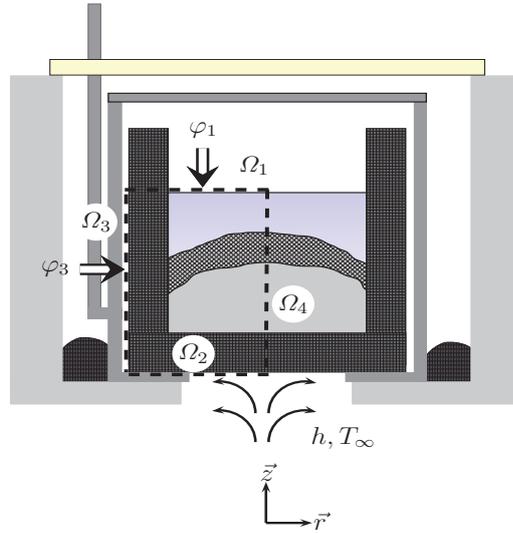


Figure 5.4 Schématisation du montage et des phénomènes thermiques.

cylindrique Ω_3 à haute température est un déficit technologique de taille [25]. Il en va de même pour le flux surfacique entrant par la surface du MCP liquide Ω_1 . N'étant pas en mesure d'évaluer les conditions limites aux bords du système, il est donc impossible, dans cette configuration, d'appliquer et de tester la méthode enthalpique *via* une approche directe.

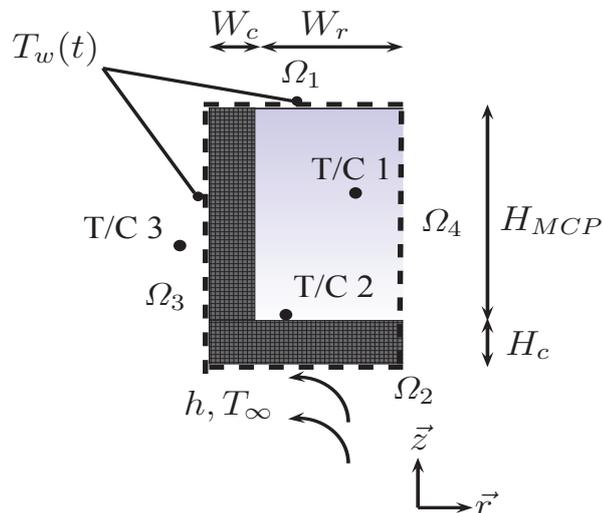


Figure 5.5 Système étudié pour la validation de la méthode directe.

Le but étant ici de valider le modèle enthalpique, les fronts de solidification et la distribution de température dans le MCP ont été utilisés pour évaluer la pertinence du modèle numérique. Le problème décrit dans le paragraphe précédent a été contourné en utilisant des conditions de Dirichlet au lieu de flux surfaciques. Le montage expérimental a donc

été remanié et est présenté à la figure 5.5. Seul le volume de contrôle a été représenté par souci de clarté. Les thermocouples T/C 1 et T/C 2 ont été utilisés pour mesurer la température dans le MCP et pour estimer la température $T_w(t)$ aux frontières Ω_1 et Ω_3 . Ces thermocouples ont été placés à 0,075 m et 0,05 m du fond du creuset respectivement. Le modèle enthalpique a donc été modifié pour satisfaire les nouvelles conditions limites du système. Les procédures expérimental et numérique employées ainsi que les hypothèses sont détaillées dans les sections suivantes.

5.4.2 Procédure expérimentale

Les tests expérimentaux ont été réalisés avec du zinc pur à 99 % comme matériau à changement de phase à cause de ses propriétés thermiques :

- Il s'agit d'un matériau eutectique. Les mesures expérimentales *via* le LVDT sont plus précises puisqu'elles ne sont pas impactées par une zone pâteuse qui augmente l'incertitude de mesure.
- La température de fusion T_f du MCP a été mesurée *via* un calorimètre différentiel à balayage et se produit à 421 °C, soit une température relativement basse comparée à la température de fusion de la cryolithe. Ce MCP permet ainsi de tester l'équipement et le montage dans des conditions moins sévères que dans les cuves d'électrolyse classiques.

La procédure expérimentale suivie aux cours des essais est la suivante :

1. La température du four est fixée à 525 °C.
2. Durant la phase de chauffe, un bloc isolant est installé pour réduire les pertes thermiques s'échappant de la partie inférieure du creuset.
3. Une fois l'état d'équilibre obtenu, le creuset est rapidement refroidi par l'intermédiaire d'une buse placée à 0,09 m du creuset projetant au niveau de la frontière Ω_2 un débit volumique d'azote atteignant les 110 L.min⁻¹.
4. Les températures T/C 1 et T/C 2 et les fronts de solidification ont été mesurés toutes les quinze minutes pendant 4 h.
5. Les profils de solidification du zinc ont été mesurés aux points de mesures P_i par rapport au centre du creuset tels que $P_i = \{-12, 7; -10, 2; -5, 1; 0; 5, 1; 10, 2; 12, 7 \text{ cm}\}$.

5.4.3 Procédure numérique

Au temps $t < 0$, le creuset est rempli de zinc pur à une température uniforme et supérieure à sa température de fusion T_f . Au temps $t = 0$, le système est à l'état d'équilibre à une température isotherme $T_i = T_{liq}$. Puis quand $t > 0$, une température transitoire $T_w(t)$ est imposée sur les frontières Ω_1 et Ω_3 et le système est soumis à une convection forcée sur Ω_2 .

Le modèle mathématique développé a été adapté de manière à satisfaire les hypothèses ci-dessous :

1. Les effets convectifs engendrés par les variations de la masse volumique au sein de la phase liquide sont considérés *via* l'utilisation d'une conductivité thermique liquide rehaussée [32, 135, 198].
2. La loi de diffusion de Fourier régit les phénomènes de transferts de chaleur dans les deux phases présentes.
3. La distribution de température dans le système est supposée axisymétrique. Cette hypothèse réduit le problème à une géométrie cylindrique 2D (r, z) .
4. La masse volumique est indépendante de la température.
5. La conductivité thermique et la chaleur spécifique varient linéairement avec la fraction volumique liquide dans la zone pâteuse [218].
6. Le coefficient de transfert de chaleur convectif h est fonction de la température, des propriétés physiques du fluide et des paramètres géométriques du système de convection forcée [22].

5.4.4 Équations caractéristiques et conditions limites

Si l'on considère les hypothèses posées à la section 5.4.3, l'équation de diffusion de la chaleur caractérisant la distribution de température dans le système (creuset + MCP) de la figure 5.5 se formule de la manière suivante :

$$\rho c(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(k(T) r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k(T) \frac{\partial T}{\partial z} \right) - \delta H \frac{\partial f}{\partial t} \quad (5.28)$$

Avec $\delta H = \rho(c_{P_l} - c_{P_s})T + \rho L$

Les conditions limites imposées sur notre système peuvent être explicitées de la sorte :

$$k(T) \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} = h(T|_{z=0} - T_\infty); k(T) \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \quad (5.29)$$

$$T(z = H_{MCP} + H_c) = T(r = W_c + W_r) = T|_{\Omega_1, \Omega_3} = T_W(t) \quad (5.30)$$

Les dimensions du système et les propriétés thermiques utilisées sont présentées dans les tableaux 5.1 - 5.2.

Tableau 5.1 Dimensions du four métallurgique.

Paramètres	Magnitude
H_{MCP} (m)	0,080
H_c (m)	0,050
W_r (m)	0,170
W_c (m)	0,025

Tableau 5.2 Liste des propriétés thermophysiques [112] et des conditions frontières et aux limites pour la géométrie étudiée.

Paramètres	Magnitude
ρ_{MCP} ($kg.m^{-3}$)	7 140
ρ_c ($kg.m^{-3}$)	1 750
$k_{MCP}(T)$ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	-0,079T + 151,4
k_c ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	20
h ($W.m^{-2}.K^{-1}$)	80
L ($J.g^{-1}$)	109,88
$c_{MCP}(T)$ ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	0,131T + 366,7
c_c ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	850
T_f (K)	694
T_∞ (K)	296
T_i (K)	750

Les conditions de Dirichlet imposées $T_w(t)$ sur Ω_1 et Ω_3 (voir figure 5.5) sont déterminées à partir des mesures de température des thermocouples T/C 1 et 2 présentées à la figure 5.6. Il est clairement visible que le processus de solidification du zinc suit deux régimes : un régime de diffusion et un régime de solidification. Le premier régime se produit au cours de la première heure de l'expérience. Étant donné que le temps de diffusion τ est faible ($\approx 6,5$ min) comparé à la durée de l'expérience, le gradient de température mesuré par les deux thermocouples T/C 1 et 2 est constant. À titre d'information, le temps de diffusion

a été évalué à l'aide de la relation suivante :

$$\tau \approx \frac{\rho c_{MCP} H_{MCP}^2}{k_{MCP_i}} \quad (5.31)$$

Durant le régime de diffusion, $T_w(t)$ a été extrapolée sur la frontière Ω_1 (figure 5.5) et considérée égale à :

$$T_w(t)|_{t=0}^{t=1h} = T_{T/C_1}(t)|_{t=0}^{t=1h} + 17K \quad (5.32)$$

Cette équation a été déterminée à partir des données expérimentales et des hypothèses listées ci-après :

- la distance entre la frontière Ω_1 et le thermocouple T/C₁ est connue ;
- le MCP est en phase solide et sa conductivité thermique $k_{MCP}(T)$ peut être calculée empiriquement *via* l'équation indiquée dans le tableau 5.2 ;
- le gradient de température entre Ω_1 et T/C 1 est constant.

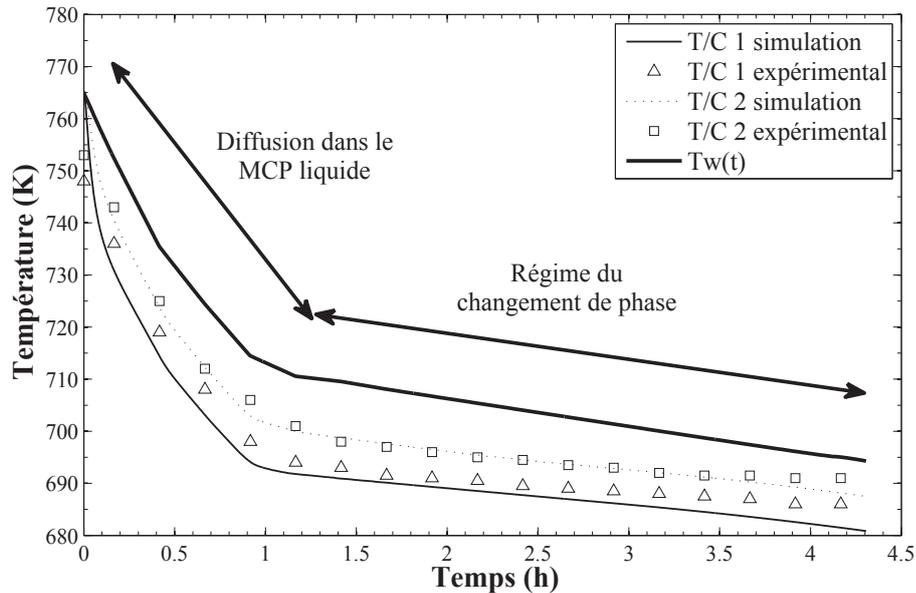


Figure 5.6 Historique de température [22].

Au cours du régime de changement de phase liquide-solide, observé à la figure 5.6, il est considéré que la température $T_w(t)$ diminue linéairement avec le temps. Puisque le MCP est quasiment solidifié à la fin de l'expérience (voir figure 5.8), il est supposé que $T_w|_{t=4 h} = T_f + 1K$.

Le même profil de température $T_w(t)$ est appliqué sur la frontière Ω_3 par souci de simplification. Ces conditions de Dirichlet sont considérées comme de bonnes approximations,

si l'on compare les résultats numériques et expérimentaux de la figure 5.6 malgré une déviation à la fin du test. Le profil de température $T_w(t)$ aurait pu être mieux représenté si un degré plus élevé à l'expression avait été choisi entre $t \in [1, 4]$ h.

5.4.5 Validation expérimentale du modèle

L'application directe du modèle numérique à l'étude, sur un cas expérimental, représente la dernière phase de validation. Le modèle respecte les hypothèses et caractéristiques décrites dans les sections précédentes. Les résultats expérimentaux ont servi de référence pour les données issues des simulations. Plusieurs tests ont ensuite été réalisés pour valider ce modèle direct.

Les profils de solidification mesurés aux points P_i (voir section 5.4.2) ont été moyennés et comparés aux fronts de solidification moyens simulés à la figure 5.7 afin de visualiser le comportement transitoire 1D du processus de solidification. Il est de nouveau observable que la solidification du zinc suit deux régimes et que les données issues de la simulation sont cohérentes avec les mesures issues du LVDT. Le régime de diffusion est d'une heure et la vitesse de solidification moyenne est de $0,022 \text{ m.h}^{-1}$ dans les deux cas.

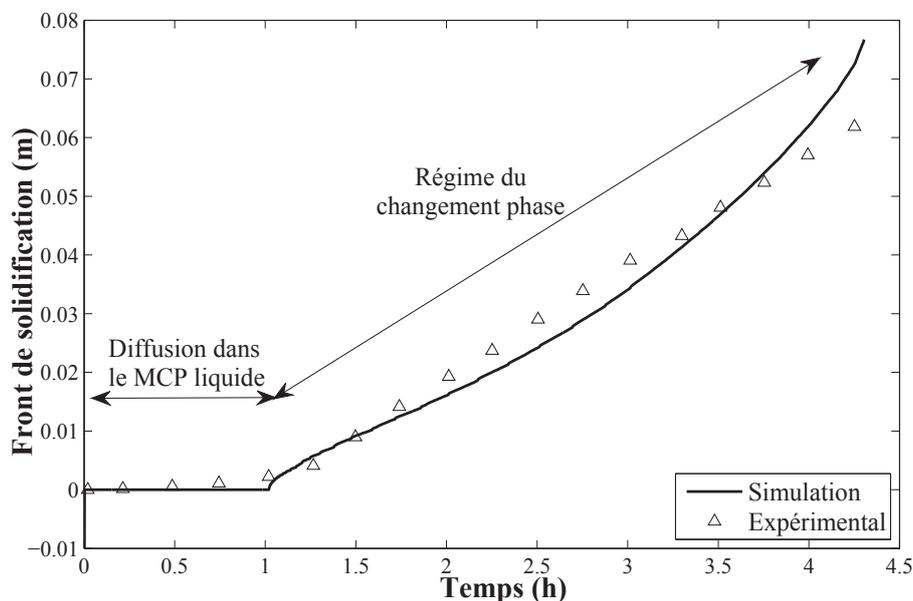


Figure 5.7 Fronts de solidification moyennés [22].

La modélisation du changement de phase en 2D a également fait l'objet d'une validation. A la figure 5.8 les profils de solidification simulés du zinc ont été confrontés à ceux mesurés expérimentalement. Le modèle numérique est en concordance avec les mesures

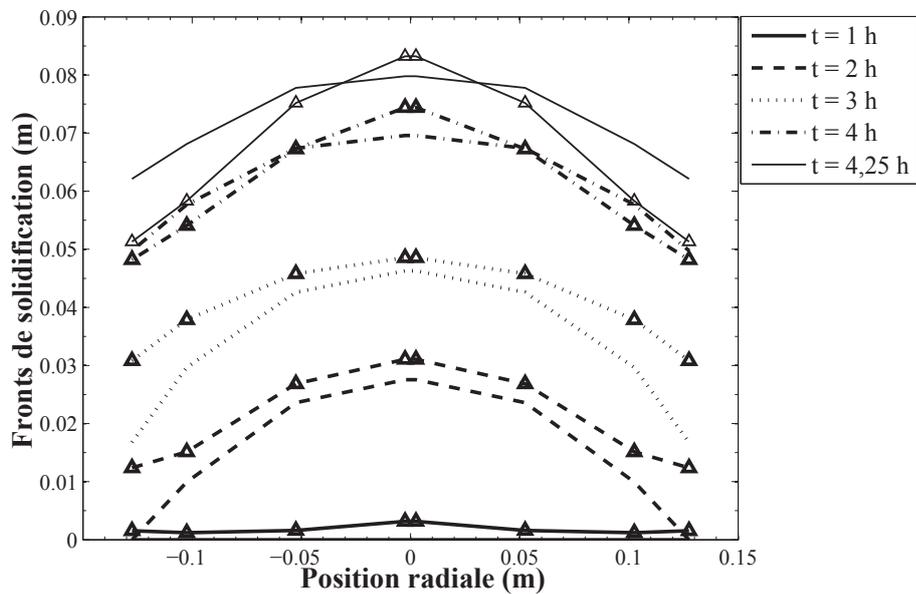


Figure 5.8 Historique des profils de solidification mesurés et simulés avec un coefficient de convection moyenné [22]. Les données expérimentales sont représentées par des lignes avec marqueurs.

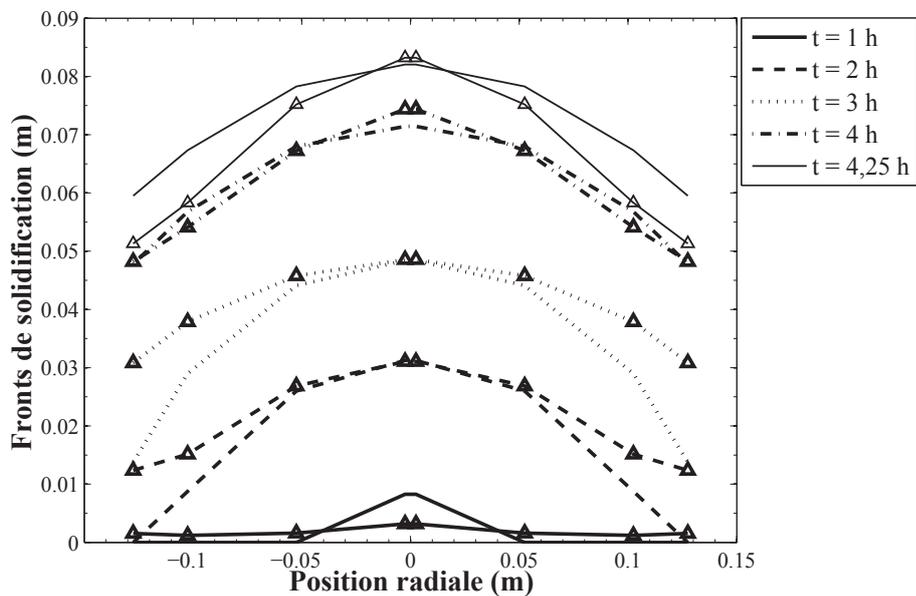


Figure 5.9 Historique des profils de solidification mesurés et simulés avec un coefficient de convection linéaire. Les données expérimentales sont représentées par des lignes avec marqueurs.

expérimentales pendant les 4h du test en dépit du fait que le changement de phase est rapide et influencé par une conductivité thermique du zinc élevée. Le modèle surestime cependant les fronts de solidification notamment près des frontières du domaine. Cela est la conséquence des hypothèses considérées pour le modèle numérique.

Les conditions de Dirichlet imposées aux frontières Ω_1 et Ω_3 font que la solidification est sous-estimée pour les points du maillage près de ces frontières. Une convection forcée constante selon le rayon du creuset a été considérée. Or la buse servant au refroidissement, est placée au centre du creuset. Le coefficient de convection devrait alors diminuer selon le rayon réduisant ainsi la courbure des profils de solidification. La figure 5.9 valide cette conclusion lorsqu'une variation linéaire du coefficient de convection, de $90 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ au centre du creuset à $20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ au bord du creuset, est appliquée sur la frontière Ω_2 .

5.5 Conclusion

Le problème de changement de phase solide-liquide représentatif des phénomènes thermiques présents sur le côté d'un four métallurgique a été formulé et mis en équation. L'algorithme de résolution du modèle direct a été expliqué. Les paramètres de discrétisation $(\Delta x, \Delta y, \Delta t)$ et la consistance de la méthode directe ont également été définis et vérifiés suite à une étude numérique menée sur un modèle représentant un creuset cylindrique soumis aux mêmes conditions que celles présentes dans le four métallurgique. Pour finir, le modèle direct a été vérifié analytiquement et expérimentalement. A la vue de ce chapitre, les conclusions sur le modèle numérique direct développé sont les suivantes :

- La dynamique des échanges de chaleur dans le four métallurgique (avec la cryolithe) est bien représentée avec un maillage de $(\Delta x, \Delta y) = 0,005 \text{ m}$.
- Le pas de temps permettant d'assurer la stabilité numérique est alors défini à 10 s.
- Les simulations ont montré que le modèle permet non seulement de résoudre les problèmes de changement de phase pour des matériaux eutectiques soumis à un flux convectif mais aussi de suivre l'évolution du front de solidification dans le temps pour des géométries 2D soumis à un refroidissement convectif sur une des conditions frontières.
- Les données issues du modèle sont comparables aux fronts de solidification mesurés et sont représentatives des phénomènes thermiques existants dans le montage expérimental développé dans cet ouvrage.
- Le modèle direct peut alors être utilisé pour résoudre des problèmes inverses.

Tous les résultats numériques présentés dans ce document ont été obtenus en utilisant ce modèle direct. Notamment, une nouvelle méthode inverse impliquant l'utilisation de ce modèle a été validée expérimentalement dans le chapitre 6.

CHAPITRE 6

VALIDATION DU MODÈLE INVERSE

Avant-Propos

Auteurs et affiliation :

C. Bertrand : Étudiant au doctorat, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie mécanique.

M-A. Marois : PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie mécanique.

M. Désilets : Professeur, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique.

G. Soucy : Professeur, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique.

M. Lacroix : Professeur, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie mécanique.

Date d'acceptation : 3 décembre 2012

État de l'acceptation : Version finale acceptée

Revue : International Journal of Heat and Mass Transfer

Référence : [23]

Contribution au document : Cet article démontre la possibilité d'utiliser un nouveau capteur de mesure composé d'une caméra infrarouge couplée à un modèle numérique inverse quasi-2D pour évaluer le changement de phase de la cryolithe dans un réacteur métallurgique cylindrique.

Titre en français : Analyse expérimentale et prédictions numériques inverses 2D de la formation d'un gel au sein d'un réacteur métallurgique.

Résumé en français : Cet article présente une comparaison entre les mesures directes et les prédictions inverses de la solidification d'un sel fondu à l'intérieur d'un dispositif expérimental représentatif d'un réacteur métallurgique réel. Cette nouvelle méthode inverse repose sur une approche virtuelle quasi-2D basée sur le problème adjoint et sur la méthode du gradient conjugué. Un dispositif expérimental spécifique a été mis au point pour supporter des expériences menées à haute température nécessitant l'utilisation de sels fondus corrosifs. Des mesures de température non-intrusives ont été prises, au moyen d'une caméra infrarouge, pour alimenter la procédure inverse. Des mesures directes des fronts de solidification ont été réalisées afin de valider la méthode inverse. Les difficultés habituellement rencontrées dans la mise en œuvre et l'implémentation des méthodes inverses sur un cas réel sont mises en évidence. Il a été constaté que, dans les conditions expérimentales considérées, la méthode de simulation inverse simulant le transfert de chaleur conduit à des prédictions transitoires précises du changement de phase solide-liquide du sel fondu. Cette précision est inférieure à 5 mm (taille du domaine : [0-35 mm]). Les résultats indiquent cependant que la mesure directe du flux de chaleur libéré par la partie inférieure du domaine géométrique étudié (partie inférieure du creuset) est impérative afin de garantir l'efficacité de la méthode inverse.

6.1 Introduction

The continuous increase in energy cost represents an important financial impact for the energy intensive metallurgical industry. Incidentally, the optimization of production processes has become a priority. One may observe however that the control of processes involving phase change phenomena, such as those found in casting of alloys or occurring inside aluminum electrolysis cell, can be a complex task. On one hand, the behavior of the phase change phenomenon is not well understood. On the other hand, intrusive experimental measurements should be avoided in order to limit the perturbations created by the measurement itself. In the case of smelting industries, the solidification of the electrolytic bath, a complex multi-component mixture of industrial chemicals, occurs when it comes into contact with the cooled reactor wall thus generating a frozen layer. This bank protects the wall against the corrosive action of the electrolytic bath. Moreover, it greatly influences the energy efficiency of the process [80]. Unfortunately, the measurement of the position of such solidification front is time-consuming and even represents a technological issue.

Many studies are dedicated to the design of measurement techniques in order to improve the understanding of the phase change processes and to validate numerical model studies [60, 96, 108, 150, 163, 178, 190, 239, 240]. All the developed measurement techniques can be classified into two categories :

- Intrusive techniques : The measurement system penetrates inside the phase change material (PCM).
- Indirect or non-intrusive techniques : The measurement system is located at the external surface of the studied PCM, farther from the solidification front location.

A common intrusive measurement technique reported in the literature consists in using a mechanical probe to measure directly the solidification front locations relative to a known reference point [108, 199]. Many other papers are concerned with the use of an arrangement of thermocouples precisely distributed inside the liquid PCM. In this case, the cooling curves of the thermal sensors lead to the location of the solid-liquid interface as long as the melting temperature of the studied PCM is known [178, 204]. The main problem with this technique is that the temperature field inside the enclosure is disturbed by the measurement system. Consequently, the dynamics of the solidification front may be altered.

Non-intrusive techniques such as X-rays tracking systems [141, 239, 240], optical instruments [5, 150, 169, 190] and ultrasound probes [60, 96, 158, 163, 193] aim at recovering the solid/liquid interface at the expense of a fastidious data processing. Furthermore, the range of application of these non-intrusive techniques is generally non applicable to high melting temperature and/or highly corrosive PCMs. In addition, despite the fact that X-rays allow the study of a large variety of PCMs (pure, alloy, multi-component) with a very good accuracy, the instrument is limited by the size of the sample. In the same order of idea, although optical instruments are useful for transparent PCMs, a measurement technique based on this technology is not realistic for the present application. Ultrasound techniques are sensitive to the quality of the contact between the piezoelectric sensor and the surface studied as well as to the acoustic impedance of the tested material. In order to remedy these difficulties, it is proposed to use another technique that consists in predicting the time-varying location of the solid/liquid interface based on transient temperature readings and by resolving an inverse heat transfer problem.

Many studies found in the open literature tackle the solution of such tracking inverse Stefan problem [38, 103, 135, 136, 198, 224]. Although these various approaches allow the determination of the time-varying bank, they are rarely effective in term of CPU time. For example, the phase change problem investigated by Marois *et al.* required a CPU time that exceeds 40 h which is hardly amenable to industrial applications [135]. In order to reduce the important computer resources required by the inverse procedure, some recent studies proposed innovative strategies [38, 123, 135, 137, 145]. A common feature of all of these investigations is that the temperature measurements that are fed to the inverse procedure are obtained by direct simulation. Although this is a common approach, the associate set of randomly scattered data does not represent realistic cases. Indeed, the measurement errors rarely correspond to the statistical description presented by Beck *et al.*, *i.e.* additive, zero mean, constant variance, uncorrelated and Gaussian distribution [17, 161].

Few studies have been devoted to implement an inverse method using experimental data. Among these experimental studies, one should mention the work of Samai *et al.* [180] and Chun *et al.* [45]. One may observe however that these studies handle a one-dimensional experimental setup. A more realistic case would require a two-dimensional analysis. This far more challenging problem is investigated in this paper.

The main objective of the present work is to show that the developed inverse numerical procedure is efficient in simulating the thermal behavior of large quantity of molten salts in

a realistic experimental setup. Firstly, a description of the setup is done. The experimental procedure used to get the transient thermal data is detailed followed by an explanation of the inverse numerical procedure. Then, a comparison between experimental and numerical results shows that the proposed non-intrusive method leads to an accurate prediction of the time-varying front location.

6.2 Experimental setup

One of the main challenges of the present work was to develop an experimental bench that allows the study of corrosive and high temperature PCMs. The measurement techniques were selected to limit as much as possible the perturbations of the thermal field inside the PCM.

The experimental setup, illustrated in figure 6.1, rests on a 20 kW cylindrical oven, designed by Pyradia Inc. The heating elements, directly inserted inside ceramic plates, are placed on a two-layer bottom specially designed to increase the thermal and mechanical resistances of the setup.

The base of the oven has a 0,31 m opening to get a direct access to the carbon crucible where the cooling process and the non-intrusive measurements are taking place. The oven is elevated at 1,28 m above the ground level so as to provide sufficient space for the cooling system and the thermal measurement equipments. A cylindrical graphite crucible, containing the PCM, is placed at the center of the oven using a crucible holder specially designed for the injection of argon, an inert gas used to ensure a protective atmosphere within and around the crucible. Indeed, the crucible deteriorates rapidly when it is exposed to oxygen at temperatures exceeding 500 °C. This configuration allows a preferential heat flow in the downward direction. The heat flow and gravity directions being aligned, the convective phenomena within the liquid PCM are minimized [21]. The geometric parameters used for the inverse method are listed in table 6.1. The control of the furnace temperature is done using an E5CK Omron Controller coupled with a type K thermocouple, T/C 5 (figure 6.1). The cooling system is composed of a mass flow controller (Omega model FMA 2612A) coupled with a brass straight nozzle (0,006 m internal diameter).

Four type K thermocouples (accuracy $\pm 0,75$ %), T/C 1 - 4, are placed inside the carbon crucible at specific locations (see figure 6.1). T/C 1 and 3 are placed at 12.4 cm from the center of the crucible with a distance of 7,5 and 2,5 cm from the bottom of the crucible.

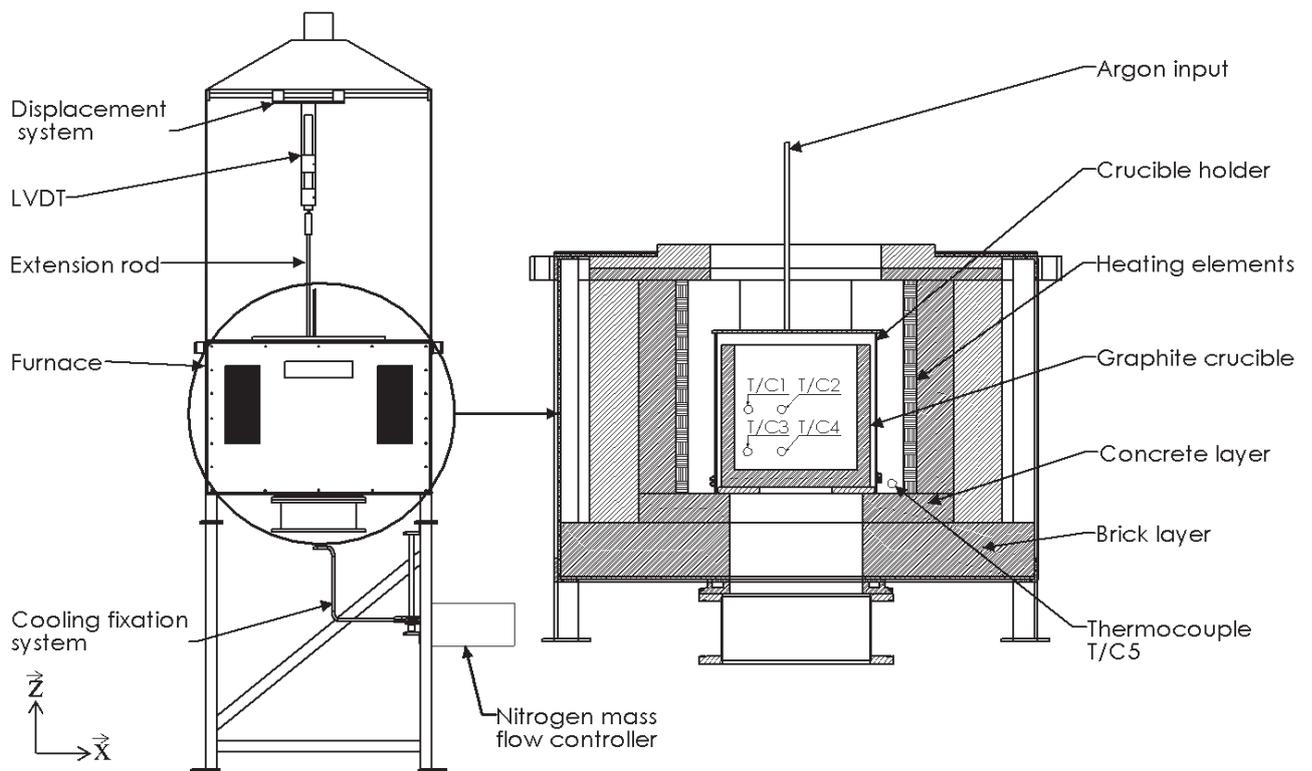


Figure 6.1 Schematic representations of the experimental setup (dimensions are omitted due to confidentiality agreement).

T/C 2 and 4 are fixed at a distance of 6,7 cm from the center of the crucible and are disposed vertically at the same elevation as T/C 1 and 3.

A linear variable displacement transducer (LVDT) coupled with a 0,76 m long extension rod (0,0125 m OD) is used to measure the position of the solid/liquid interface. The front location measurements are only done along the crucible diameter since the temperature field inside the oven is mainly axisymmetric [22]. The front measurement errors σ is about ± 1 mm, based on the repetitiveness of the measurements at each sampling location. Indeed, several LVDT measurements were done to improve the statistical treatment of the data since the presence of a mushy zone can have an important impact on the accuracy of the front measurement [22]. Note that the instrument uncertainties can be neglected in comparison to the accuracy due to the manual handling and to thermal expansion effects. An infrared camera, serving as an indirect measurement system, is placed under the reactor to record the temperature distribution under the carbon crucible during the cooling process. An accuracy of ± 4 % is achieved with the temperature profile measurements.

Tableau 6.1 Geometric parameters.

Parameters	Magnitude
Crucible height (cm)	26,7
Crucible external diameter (cm)	33,7
Crucible internal diameter (cm)	28,6
Crucible thickness (cm)	4,4
Crucible holder thickness (cm)	1,30
Crucible holder opening (cm)	19,0
Concrete layer thickness (cm)	6,4
Insulation brick thickness (cm)	11,4
Oven opening (cm)	31,0
Nozzle-crucible distance (cm)	12,2

The furnace controller and the cooling gas mass flow rate controller are operated by a LabVIEW application on a Dell Precision T3400 (Intel Core 2 Quad Q6600, 2,40 Ghz). A two 16-bit analog input board (NI PXI-6221), within a five-slot PXI data acquisition instrument from National Instruments (model NI PXI-1033), is used to acquire DC voltage coming from the LVDT. Finally, the inert gas flows are manually controlled with Omega variable area rotameters.

6.3 Experimental procedure

The experimental PCM is a molten salt composed of 80,5 wt.% of cryolite (Na_3AlF_6) and three additives (11,5 wt.% AlF_3 , 5,45 wt.% CaF_2 and 2,5 wt.% Al_2O_3). The PCM is initially in the solid state. The adopted experimental procedure is summarized below :

1. The furnace temperature is fixed to 1 000 °C with a heating speed of 4 °C.min⁻¹. An argon volumetric flow rate of 34 L.min⁻¹ (3,45 bar) is set inside the crucible holder to maintain an inert atmosphere inside the furnace in order to avoid any crucible oxidation.
2. During the heating process, an insulation block is installed inside the bottom furnace opening to reduce heat losses and to limit the oxidation of the exposed surface of the graphite crucible. A nitrogen flow rate of 16 L.min⁻¹ (3,45 bar) is also injected between the insulation block and the crucible to flush away any air at this critical location.
3. Once the furnace temperature reaches 1 000 °C, the steady-state is obtained after approximately 4 hours. At this time, the PCM is completely melted.

4. During the cooling process, the insulation block is first removed. The brass nozzle is then maintained at a fixed relative position with respect to the graphite crucible. To avoid any thermal shock, the forced nitrogen flow is gradually increased up to $150 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ with $20 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ increments.
5. The infrared camera is installed under the furnace.
6. Thermocouples readings are manually taken at a sampling interval of 10 min.
7. Three measurements are done with the LVDT system, at the following prescribed point : $r_{P_i} = \{0, 4, 75 \text{ and } 9, 5\}$ cm from the center of the crucible. Seven repetitive LVDT measurements are done at each location.

6.4 Numerical procedure

The numerical procedure developed here aims at predicting the formation of the time-varying bank thickness that takes place inside the experimental setup described in section 6.2. As mentioned earlier, it is proposed to infer the time-varying phase change front from measurements taken at the outside surface of the reactor. The overall inverse approach is detailed in this section.

6.4.1 Presentation of the quasi-2D model

In order to implement the inverse procedure, a quasi-2D axisymmetric numerical model describing the phase change phenomena has been developed. A schematic of the phase change problem occurring inside the experimental setup is presented in figure 6.2. A cylindrical enclosure, filled with a phase change material (molten salt), is initially in a liquid state. It is supposed that the system is initially in steady-state. A heat flux $q_{in}(r, t)$ mimicking the reactor heat load is imposed on the Ω_4 boundary over the time interval $t = [0, t_f]$.

A convection heat transfer boundary condition is imposed at the outer surface of the furnace (Ω_3 boundary). Due to the complex cooling system, the global heat transfer coefficient is estimated experimentally. This procedure is detailed in section 6.5. The initial temperature field across the control volume is estimated using local temperature measurements.

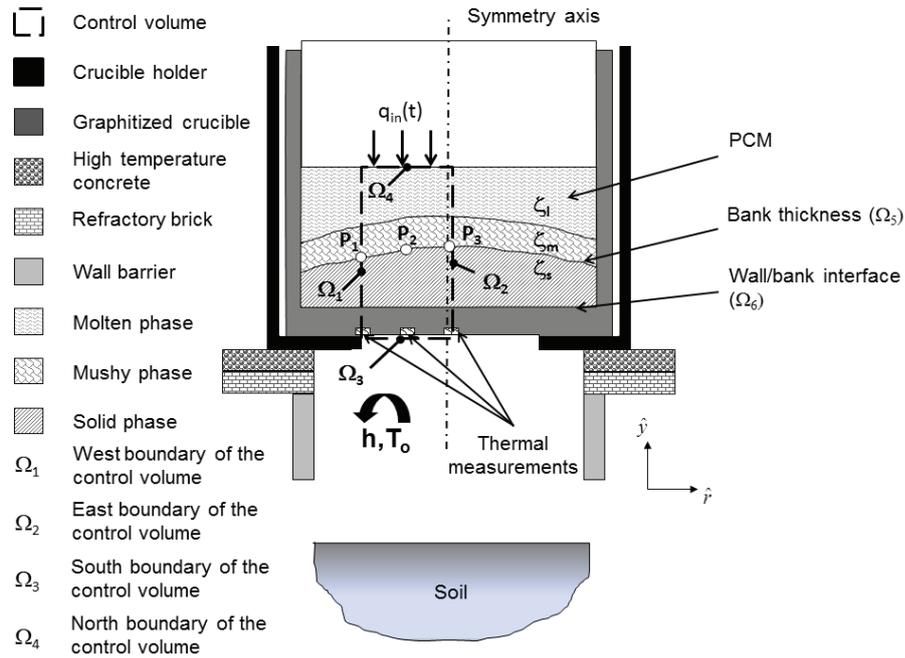


Figure 6.2 Schematic representation of the phase change process.

The mathematical model described below aims at estimating the outer surface temperature of the crucible required by the inverse procedure. Therefore, the following assumptions are made regarding the modeling of the phase change problem :

1. Heat transfer inside the liquid phase of the PCM is conduction-dominated.
2. The temperature field in the reactor is assumed to be axisymmetric. This assumption reduces the problem to a 2D cylindrical geometry (r, y) .
3. The temperature gradients in the y -direction are much larger than that in the r -direction and as a result a quasi-2D analysis is applied [135].
4. The phase change is non-isothermal, *i.e.*, melting and solidification occur over a temperature range.
5. The latent heat effect is neglected [137].
6. The thermal contact resistance between the crucible and the molten salt is ignored.
7. The thermal properties of the molten salt as well as the carbon crucible are temperature independent.
8. The thermal conductivity and the heat capacity vary linearly with the liquid fraction in the two-phase mushy zone [218].

9. The global heat transfer coefficient varies linearly with the temperature at the outer surface of the crucible.

In spite of assumption 1, the present diffusion model takes into account convection heat transfer inside the melt. Indeed, the effect of the flow circulation is mimicked with an enhanced thermal conductivity [32, 135, 198]. Although the convection heat transfer coefficient within the liquid phase has an important impact on the predicted temperature field, the limited area of interest according to the considered tracking inverse Stefan problem corresponds to the solid PCM and the crucible. The transient heat flux on the upper surface of the PCM is predicted in such a way as to match the boundary conditions on the other surfaces as well as the corresponding solidification front. As explained in [137], as long as the diffusion time is negligible in the liquid phase, the considered physical properties of the liquid PCM do not affect the inverse predictions and the energy released during the phase change can also be neglected without deteriorating the inverse predictions (assumption 5). According to assumption 3, the 2D heat conduction problem can be split into simpler 1D problem for M vertical slices of the metallurgical reactor [135].

Based on the foregoing assumptions, the governing heat diffusion equation, the initial and boundary conditions for the metallurgical reactor may be expressed as follows :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial y} \left(k \frac{\partial T}{\partial y} \right) \quad (6.1)$$

$$k \frac{\partial T}{\partial y} \Big|_{\Omega_3} = h(t) (T_{y=0} - T_\infty) \quad (6.2)$$

$$k \frac{\partial T}{\partial y} \Big|_{\Omega_4} = q_{in}(t) \quad (6.3)$$

$$T(r_j, y, t = 0) = T_0(r_j, y) \mid j \in \{1, 2, \dots, M\} \quad (6.4)$$

One may observe that with the quasi-2D approach, the boundary conditions Ω_1 and Ω_2 become irrelevant. The initial temperature field for the system comes from the linear interpolation of the temperature measurements (see table 6.3) [22]. According to assumption 9, the time-varying heat transfer coefficient is estimated from experimental measurements collected at the beginning and at the end of the experiment (see section 6.5) since no correlation is available in the open literature to evaluate precisely the convective heat transfer coefficient for a jet impingement inside a heated cylindrical enclosure. Also, it should be mentioned that the linearity of the relationship between the global heat transfer coefficient and the surface temperature (assumption 9) can be limited to the lower temperature

range. In fact, such a combined heat transfer coefficient shows a non-linear behavior as the radiation effect gets dominant over the forced convection component.

Equations 6.1-6.4 are discretized and solved using a finite volume method that has been proposed and validated by Marois *et al.* [135, 218]. The physical properties, the boundary conditions and the initial conditions for this test case are reported in table 6.2 [136].

Tableau 6.2 Physical properties, boundary conditions and initial conditions for the test case [136].

Parameters	Magnitude
T_{∞} (K)	300
T_{liq} (K)	1 215
T_{sol} (K)	1 205
k_c ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	10
k_{PCM_l} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	30
k_{PCM_s} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	1,17
ρ_w ($kg.m^{-3}$)	2 200
ρ_{PCM} ($kg.m^{-3}$)	2 250
$c_{p,c}$ ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	720
$c_{p,PCM}$ ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	1 850

6.4.2 The inverse procedure

The direct model outlined above is concerned with the prediction of the temperature field of the system $T(r, y, t)$ and the time-varying bank thickness when the physical properties, the boundary conditions as well as the initial conditions are known. For the experiment detailed in section 6.3, the incident heat flux $q_{in}(r, t)$ on Ω_4 boundary is unknown. It follows that the solid/liquid interface $s(r, y, t)$ is sought using an inverse procedure. The inverse heat transfer problem (IHTP) consists in estimating the time-varying heat flux that minimizes the following least square function for each of the M vertical slices, defined as the cost function [84] :

$$S(\bar{q}) = \sum_{i=1}^I S_i(\bar{q}) \quad (6.5)$$

$$S_i(\bar{q}) = |Y(r_j, y = 0, t_i) - T(r_j, y = 0, t_i; \bar{q})|^2 \Delta t_m \quad j \in \{1, 2, \dots, M\}$$

where Δt_m and I are the sampling time step and the total number of sampling instants, respectively. $T(r_j, y, t_i; \bar{q})$ is the temperature field calculated from equations 6.1 - 6.4. $Y(r_j, y = 0, t_i)$ represents the transient temperature readings recorded at the outside sur-

face of the reactor using the infrared camera. The superscript "-" denotes an estimated function.

The IHTP, proposed in this paper, rests on a quasi-2D virtual approach based on the conjugate gradient method of minimization with adjoint problem detailed in [136]. The adjoint problem, based on a Lagrange multiplier analysis, appears in such a way as to obtain an exact result for $\vec{\nabla} S(y, t; \bar{q})$. On the other side, the conjugate gradient algorithm dictates the following iterative procedure used to minimize the cost function displayed in equation 6.5.

$$\bar{q}^{k+1}(t) = \bar{q}^k(t) - \beta^k d^k(t) \quad (6.6)$$

where β^k is the search step size, d^k is the direction of descent and k is the number of iterations. The basic steps in the application of this minimization technique for each of the selected slices are described below :

1. An initial guess for $\bar{q}^{k=0}(t)$ is chosen.
2. The direct problem $\bar{T}^{k+1}(r, y, t; \bar{q})$ is solved and $S(\bar{q}^{k+1})$ is computed from equation 6.5.
3. The value of $\bar{s}(r, t)$ is estimated using the direct model.
4. If $S(\bar{q}^{k+1}) < \sigma^2 I \Delta t_m$, stop. Otherwise, go to step 5 [136].
5. The adjoint problem is solved in order to estimate $\vec{\nabla} S(y, t; \bar{q})$.
6. The direction of descent d^k is computed from the Polak-Ribiere version of the conjugate gradient method [103].
7. The sensitivity problem $\Delta T(r, y = 0, t; \bar{q})$ is solved in order to estimate β^k .
8. The new estimate for $\bar{q}^{k+1}(t)$ is determined from equation 6.5. Return to step 2.

The performance of the inverse method was measured in terms of a relative discrepancy between the bank thickness predicted by the inverse model, $\bar{s}(r, t)$, and that measured directly using the LVDT system, $s(r, t)$ [135]. It is given by

$$ER_s = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^M \sum_{i=1}^{I_m} (\bar{s}(r_j, t_i) - s(r_j, t_i))^2}{\sum_{j=1}^M \sum_{i=1}^I s(r_j, t_i)^2}} \quad (6.7)$$

where I_m and M are the total number of LVDT sampling and sensors, respectively.

The quasi-2D approach proposed in this paper slightly differs from the one detailed in [135]. Indeed, the incident heat fluxes obtained for each of the 1D problems $\bar{q}_m(t)$ are not integrated in order to generate a full 2D solution. The solid/liquid interface is simply interpolated from the solutions of each of the 1D problem, *i.e.*, the time-varying bank thickness predicted for the considered slice. This new quasi-2D approach takes advantage of the limited area of interest, *i.e.*, the solid PCM and the crucible. Indeed, since the full 2D problem is never solved, this approach is not affected by the 2D effects occurring in the liquid region.

6.5 Results and discussion

Numerical simulations were first performed to evaluate the mesh and time step independences. A time-step $\Delta t = 10 \text{ s}$ and uniform space steps of $\Delta r = 0,005 \text{ m}$ and $\Delta y = 0,005 \text{ m}$ were chosen for the numerical model [134]. Each slice of the quasi-2D model consists in a uniform grid of 22 control volumes distributed inside the crucible and 38 control volumes distributed inside the PCM. Note that under these numerical parameters, the proposed quasi-2D virtual approach implemented on a 616 Intel Xeon quad core 2,8 Ghz computer requires an acceptable CPU time that doesn't exceed 15 min.

The inverse procedure described above was then validated with the experimental setup. The local temperature measurements used to extrapolate the initial temperature distribution are gathered in table 6.3.

Tableau 6.3 Local temperature measurements made at the beginning of the experiment.

Coordinates		Initial temperature (K)
r (cm)	y (cm)	T(r,y)
	0,0	1 059,0
0,5	4,4	1 242,0
	9,6	1 260,0
	12,0	1 265,0
	0,0	1 111,0
9,5	4,4	1 246,5
	9,6	1 262,5
	12,0	1 267,5

With the aid of table 6.3, the initial global heat transfer coefficient is given by

$$h_{max}(r, t = 0) = \frac{k_c}{y_c} \left[\frac{T(r, y_c) - T(r, y = 0)}{T(r, y = 0) - T_\infty} \right]_{t=0} \quad (6.8)$$

where $y_c = 0,044 \text{ m}$ is the thickness of the crucible.

The final global heat transfer coefficient is determined using the measurements of the front thickness gathered in table 6.4, *i.e.* :

$$h_{min}(r, t = t_f) = \left[\frac{T_{sol} - T(r, y = 0)}{T(r, y = 0) - T_\infty} \right] \left[\frac{s(r)}{k_{PCM_s}} + \frac{y_c}{k_c} \right]_{t=t_f}^{-1} \quad (6.9)$$

Tableau 6.4 Solidification front measurements. The LVDT measurements were done for three different radial positions from the center of the crucible, *i.e.* at $r_i = \{r_{P_1} = 9,5; r_{P_2} = 4,75; r_{P_3} = 0\} \text{ cm}$.

Time (hours)	Measurements (cm)		
	s_{P_1}	s_{P_2}	s_{P_3}
0,47	0,76	1,02	0,95
0,90	1,67	2,05	1,79
1,24	2,25	2,55	2,38
1,56	2,71	2,92	2,69
2,06	3,32	3,21	3,26

The time-varying heat transfer coefficient $h(t)$, presented in figure 6.3, is inferred from h_{min} and h_{max} . For convenience, it is assumed that $h(t)$ is proportional to the outer surface temperature of the crucible.

Raw experimental data provided by the infrared camera were processed using an averaging method in such a way as to filter the deviation signal [45]. The temperature measurements used for the inverse procedure were deduced from a fit to power function models [21].

Figure 6.4 compares the transient temperature measurements made at the outer surface of the crucible to the numerical values predicted with the inverse procedure. Note that P_i represents the sensors located at $r_M = \{r_{P_1} = 9,5; r_{P_2} = 4,75; r_{P_3} = 0\} \text{ cm}$ (see figure 6.2). Examination of figure 6.4 reveals that the inverse procedure gives accurate temperature predictions, *i.e.*, that the inverse method has converged. It must be pointed out however that, due to the ill-posed nature of the problem, the accuracy of this parameter does not guarantee the accuracy of the inverse prediction. Indeed, the function being sought, *i.e.*, the

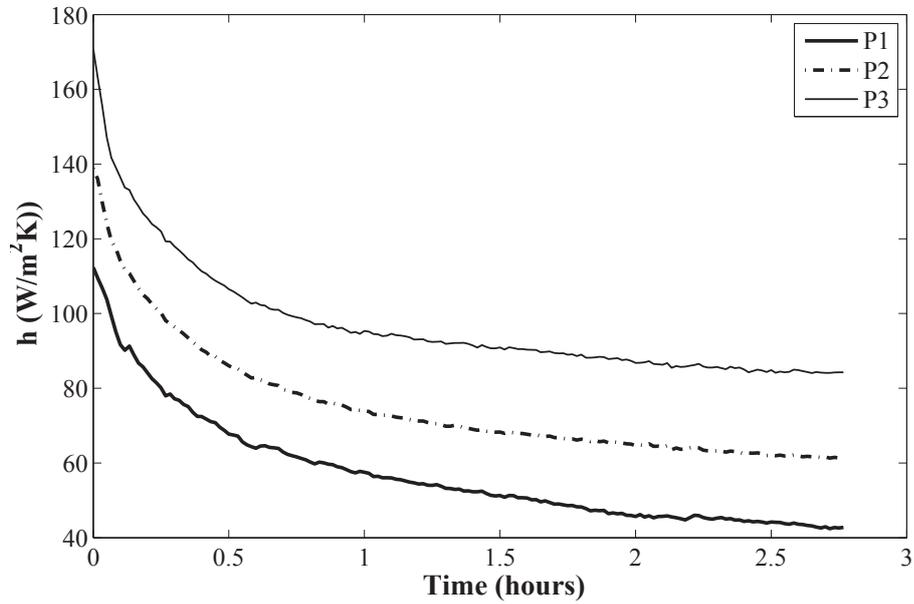


Figure 6.3 Extrapolated time-varying heat transfer coefficient.

solidification front is very sensitive to the measurement errors as well as to the considered physical properties, boundary conditions and initial conditions. Thus, even with existence and convergence, uniqueness is not guaranteed.

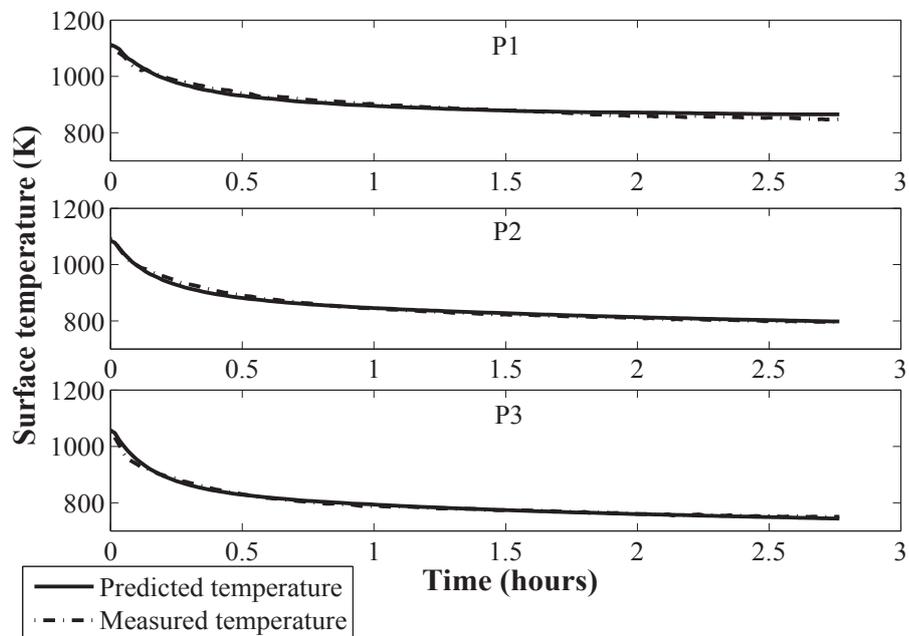


Figure 6.4 Temperature history at the outer surface of the crucible.

The time-varying thickness of the molten salt bank predicted by the inverse procedure is presented in figure 6.5. These results agree very well with the experimental data provided

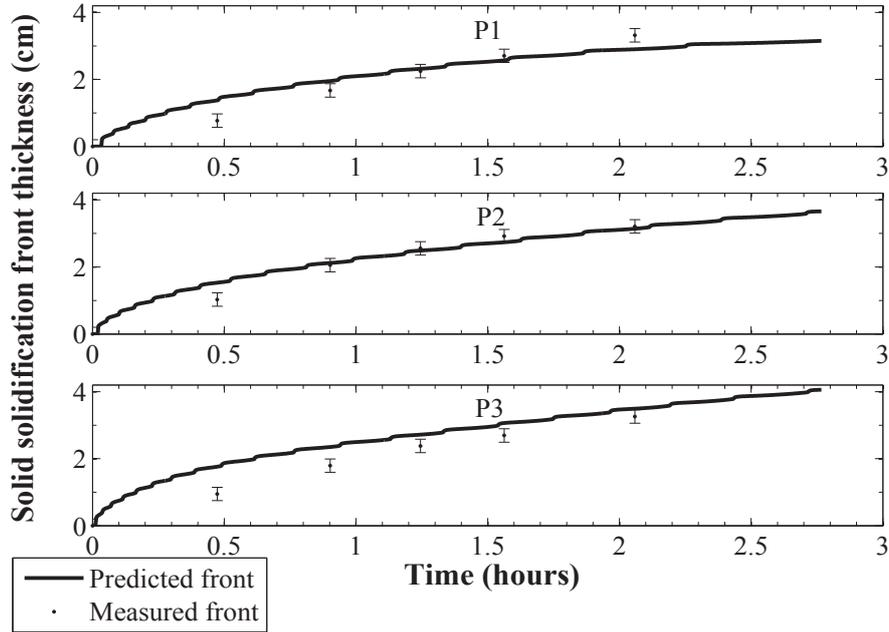


Figure 6.5 Prediction of the time-varying thickness of molten salt bank.

by the LVDT instrument (see table 6.4). As expected, a slight discrepancy appears at the early stage of the bank formation. The high temperatures, recorded at the outer surface of the crucible, give rise to an important radiative heat flux component that invalidates the linear approximation made in assumption 9. This is especially true in the first minutes after the beginning of the convective cooling where the contribution of radiation to the global heat transfer coefficient can be as important as 73,5 %. This value was calculated using the following equation :

$$\overline{h_{rad}}(t=0) = \frac{\sum_{j=1}^M \frac{\epsilon \sigma (T_{r_j, y=0}^2 + T_\infty^2)(T_{r_j, y=0} + T_\infty)}{h_{max}(r_j, t=0)}}{M} \quad (6.10)$$

where $\epsilon = 0,98$ (for a graphite crucible), $\sigma = 5,67e^{-8} W.m^{-2}.K^{-4}$ and $T_\infty = 300 K$.

One may observe however that both curves are in good agreement for the rest of the experiment. In particular, it is seen that the freezing rate predicted by the inverse procedure at the end of the experiment matches with the experimental results.

A closer inspection of figure 6.5 reveals that the front thickness predicted at the end of the experiment is overestimated in the center of the crucible while this tendency reverses as the radial position increases. This trend is illustrated in figure 6.6 that depicts the solidification front profile history. Once again, one may observe that the molten salt bank thickness is

overestimated at the early stage of the bank formation. On the other side, it is seen that the solidification front predictions rapidly gets very close to measured values, inside the measurement errors on the recorded experimental data. The relative discrepancy ER_s , which expresses the global error between the predicted and the measured front thickness, is approximately 16 % (see equation 6.7).

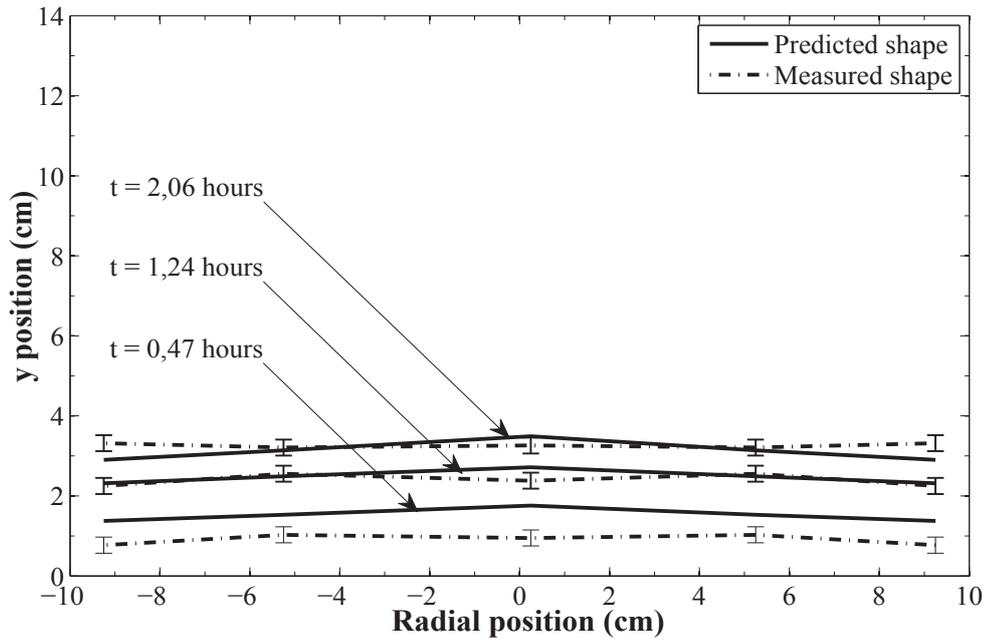


Figure 6.6 Solidification front profile history.

Although the inverse method leads to accurate predictions, one may observe that the shape of the molten salt bank is not recovered (see figure 6.6). It is interesting to note that this discrepancy is not introduced by the quasi-2D approximation (assumption 3). Indeed, one may observe that, in practice, an incident heat flux comes from the lateral wall of the crucible since the temperature is distributed uniformly inside the reactor. Therefore, the predicted front thickness should be always overestimated and this 2D effects should increase with the radial position, *i.e.*, nearer to the lateral wall. Results indicate however that the time-varying discrepancy between the measured and the predicted fronts is maximal in the center of the crucible. Incidentally, it is suspected that the shape discrepancy stems from the lack of information on the cooling flux on the Ω_3 boundary, data being difficult to obtain here due to the complexity of the cooling fluid flow. As a matter of fact, the design features of this system, like the cooling chamber formed by the cavity underneath the crucible, have been intentionally chosen to tackle specific safety problems and to minimize oxidation of the crucible. Although a direct measurement of the heat flux

released at the bottom of the crucible would have increased the accuracy of the inverse prediction, it represents a challenging measurement.

6.6 Conclusions

A comparison between direct measurements and inverse predictions of a molten salt bank formation inside a metallurgical reactor has been presented. The inverse method developed relies on real experimental data obtained with a system mimicking real industrial conditions. The 2D inverse method rests on the adjoint problem and the conjugate gradient method and uses non-intrusive temperature measurements taken by an infrared camera. A LVDT coupled to an extension rod was used to provide the experimental solidification front data needed to validate the inverse procedure. It was found that the inverse heat transfer method led to accurate predictions of the time-varying shape of a molten salt bank, *i.e.* $ER_s \approx 16\%$. Results indicate however that, despite it represents a challenging measurement, it is imperative to evaluate the heat flux released by the crucible on the Ω_3 boundary. It was shown that this measurement guarantees the effectiveness of the inverse procedure.

CHAPITRE 7

CONCLUSION

7.1 Problématique étudiée

Certains procédés industriels tels que l'électrolyse de l'aluminium sont très énergivores. Les contraintes environnementales actuelles renforcent le besoin de réduire la consommation énergétique du procédé de fabrication *via* un meilleur contrôle du système. Au niveau thermique, d'énormes pertes de chaleur sont constatées au niveau des parois latérales de la cellule d'électrolyse. Sur ces parois se forment une gelée à base de cryolithe solidifiée dont l'épaisseur est tributaire des conditions de fonctionnement de la cuve. Cette gelée joue un rôle important dans le rendement énergétique de la cuve et sur sa durée de vie.

Le contrôle de procédés industriels impliquant le changement de phase repose principalement sur trois facteurs clés : le choix d'une méthode de contrôle appropriée, une méthode numérique simulant les phénomènes physiques présents dans le système et surtout sur une mesure rapide et précise des grandeurs physiques nécessaires au contrôle du procédé. Dans le développement de cuves d'électrolyse d'aluminium se rajoutent des problèmes de mesure car les outils et les techniques actuels ne sont toujours pas adaptés à l'environnement de mesure corrosif et à haute température. De plus, les modèles numériques nécessaires à la prédiction du front de solidification de la gelée, bien que largement abordés dans la littérature, manquent de données expérimentales nécessaires à leur validation. Ceci est dû au fait que la gelée est difficilement accessible dans une cuve d'électrolyse d'aluminium.

Le projet de recherche présenté ici vise à détailler la conception et la réalisation d'un montage expérimental représentatif des phénomènes de changement de phase à haute température où les paramètres nécessaires à la caractérisation du processus de solidification sont contrôlés. Ce montage a permis de déterminer que la mesure de l'évolution temporelle d'un front de solidification d'un gel est possible dans un réacteur métallurgique en couplant des mesures indirectes et une méthode inverse adaptée.

7.2 Travaux réalisés et contributions

Le travail détaillé dans cette thèse fournit les outils numériques et expérimentaux nécessaires pour l'étude et le suivi de fronts de solidification de matériaux à changement de phase dans des environnements hostiles et apporte une contribution spécifique à la connaissance et à la mesure du régime de solidification de la cryolithe utilisée dans les cuves d'électrolyse d'aluminium.

Un banc d'essais a été développé pour à la fois étudier le phénomène de changement de phase jusqu'à $\approx 1\ 000\ ^\circ\text{C}$ sous atmosphère contrôlée et permettre la conception et l'évaluation de diverses techniques de mesure. Ce montage expérimental a notamment permis de valider un système de mesure qui associe une mesure non-intrusive avec un modèle numérique inverse pour la prédiction de l'interface diphasique et du comportement thermique d'un gel sur une surface refroidie. Le principal avantage de ce montage expérimental est sa modularité puisqu'il permet d'évaluer différents instruments de mesure pour la détermination du front de solidification d'une quantité de matériau à changement de phase atteignant les $0,012\ \text{m}^3$.

La mesure non-intrusive utilisée repose sur l'utilisation d'une caméra infrarouge permettant de cartographier les températures externes du système à l'étude. Ces profils de température intégrés dans une méthode inverse pseudo 2D ont permis de prédire les profils de solidification de la cryolithe dans des conditions similaires à celles présentes dans les cuves d'électrolyse. Les résultats numériques concordent avec les mesures directes du front de solidification issues d'un instrument de mesure spécifiquement conçu couplant un capteur inductif de déplacement (LVDT) avec une tige d'extension en céramique.

Le problème inverse de transfert de chaleur proposé ici est une approche pseudo 2D basée sur la méthode de minimisation des gradients conjugués avec problème adjoint. Ce modèle mathématique réduit le temps de calcul et le temps associé à la mise en œuvre d'une méthode inverse classique. En effet, le problème thermique dans la région pâteuse et liquide a été modifié pour réduire l'inertie thermique du système de manière à diminuer le délai temporel associé à la propagation de la chaleur dans le système. Avec cette méthode, les effets 2D dans la région liquide qui se situent à l'extérieur du domaine d'intérêt sont négligés. Le domaine à l'étude a notamment été divisé en tranches unidimensionnelles pour lesquelles une méthode inverse 1D est appliquée pour estimer l'épaisseur de gelée à partir de la température de surface externe du creuset contenant le matériau à changement de phase. L'ensemble des solutions est alors recombinaison pour mener à la prédiction du profil de

gelée. La performance de la méthode inverse a été évaluée *via* la détermination de l'erreur relative entre l'épaisseur de gelée estimée par la méthode inverse et celle mesurée par le LVDT.

Cette méthode inverse repose, quant à elle, sur un modèle direct permettant de déterminer l'interface de changement de phase solide-liquide se produisant à l'intérieur du creuset. La modélisation directe du changement de phase proposée dans cette thèse repose sur la formulation enthalpique de l'équation de la conservation de l'énergie afin de pouvoir être utilisée malgré la présence d'une zone pâteuse. La résolution numérique est basée sur la méthode des volumes finis. Le modèle a été comparé à celui généralement utilisé dans l'industrie de l'aluminium. Les résultats numériques ont mis en évidence la présence d'un délai temporel entre la variation soudaine du flux de chaleur surfacique et la fluctuation de la température de la surface externe de la paroi du four. Cette inertie est similaire à celle que l'on retrouve dans les réacteurs métallurgiques et rend difficile la mise en œuvre des méthodes inverses.

Ce modèle direct a également été validé expérimentalement avec le montage expérimental développé en utilisant du zinc comme matériau à changement de phase. Ce matériau eutectique a été soumis à un refroidissement convectif sur une des conditions frontières du contenant en graphite. La comparaison des mesures issues du LVDT et les prédictions du modèle directe du front de solidification ont mis en évidence la présence de deux régimes thermiques et a permis de quantifier le taux de refroidissement du MCP considéré.

7.3 Perspectives

Ce projet de recherche peut servir comme référence dans le développement d'instrumentation dédiée à la mesure du front de solidification à l'intérieur de fours à haute température et donne les preuves de la pertinence ainsi que de la possibilité de coupler une caméra thermique avec une méthode inverse pour l'estimation de l'épaisseur de gelée dans des cuves d'électrolyse. Ce travail permet maintenant de commencer à penser à appliquer ce prototype dans le cadre de campagnes de mesure en industrie. Le système développé répond bien aux trois critères majeurs à considérer lors de mesures dans un contexte de production : minimisation de l'espace d'intervention, limitation de la perturbation de la mesure et réduction des ressources matérielles, financières et humaines.

L'utilisation de cette technique de mesure ne se limite d'ailleurs pas à l'industrie de l'aluminium mais à la détection de paraffines sur la surface interne des pipelines, à la caractérisation des systèmes de stockage de chaleur, à l'évaluation de la solidification de métal liquide etc.

Bien évidemment l'intégration de ce dispositif de mesure en milieu industriel implique de modifier la géométrie du système dans le modèle numérique pour s'adapter à celle de cuves d'électrolyse réelles et de modifier les conditions limites posées dans ce document. Il se peut également que le modèle pseudo 2D ne soit pas adapté dans le cas des cuves d'électrolyse car des effet 2D apparaissent au niveau de la partie supérieure de la cuve (pertes de chaleur au niveau de la croûte) et la base de la cuve (pertes de chaleur au niveau de la cathode).

Outre l'application industrielle, le montage développé a de l'avenir puisqu'il serait pertinent de l'exploiter pour :

- Valider l'utilisation de système à ultrasons basé sur la technique de mesure par émission-réception pour la détection de la gelée et mesurer les propriétés acoustiques à haute température du graphite et de la cryolithe.
- Tester le modèle sur d'autres matériaux à changement de phase pour montrer la robustesse du modèle numérique développé.
- Réaliser une étude paramétrique de la vitesse de solidification en fonction du MCP considéré et de type de refroidissement.
- Améliorer le montage pour automatiser la mesure ultrasons et la mesure LVDT.
- Tester des équipements de mesure de flux à haute température. Ceci implique de modifier le type de porte-créuset ou le type de créuset pour permettre la fixation de la sonde de flux.
- Étudier et estimer empiriquement le coefficient de convection forcée en fonction du type de buse choisi. Cette donnée n'étant pas disponible dans la littérature pour des enceintes cylindriques soumises à un transfert de chaleur par impact de jets.

ANNEXE A

DIMENSIONS CARACTÉRISTIQUES DU CREUSET

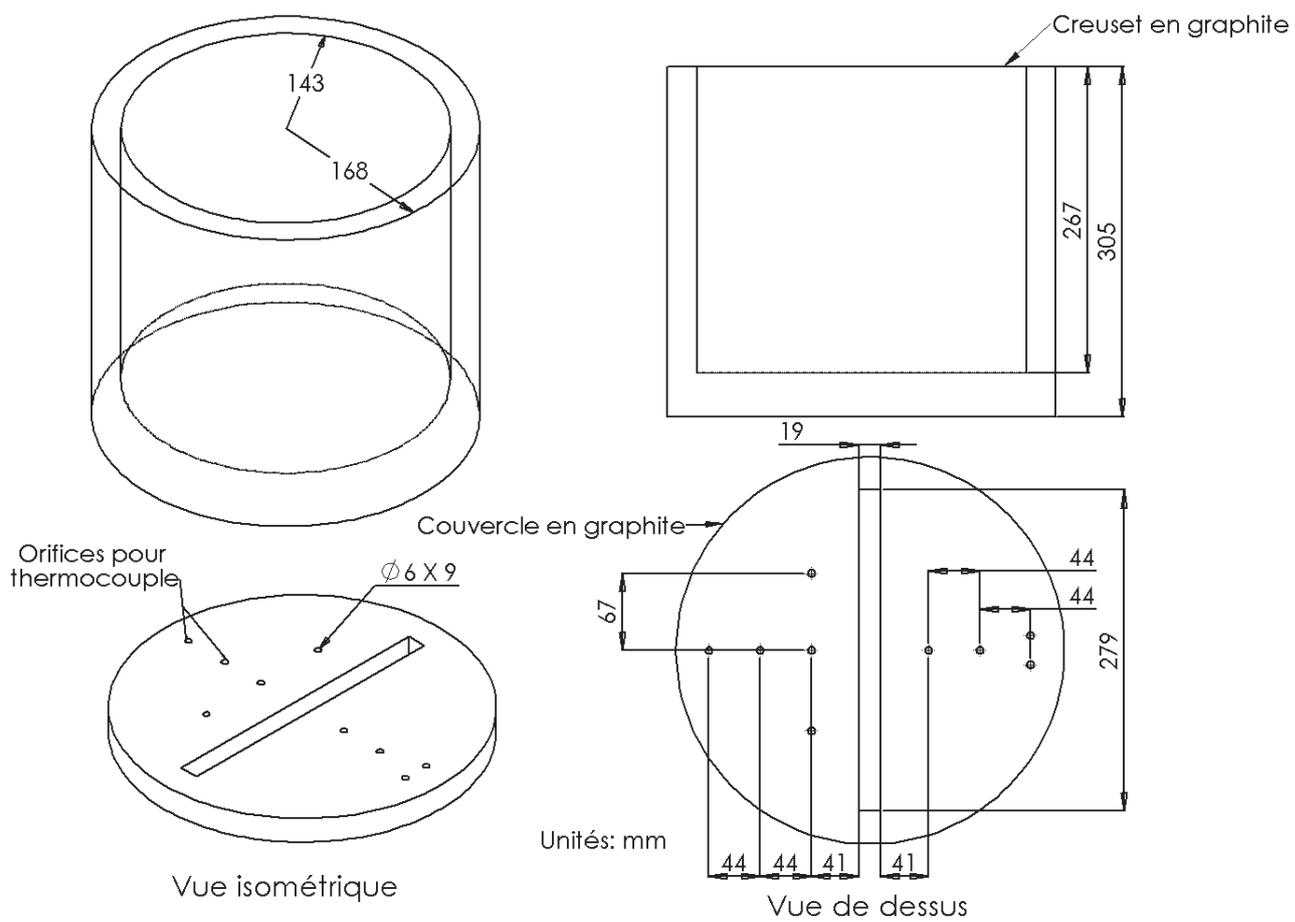


Figure A.1 Représentations du creuset en graphite et de son couvercle.

ANNEXE B

DIMENSIONS DU PORTE-CREUSET

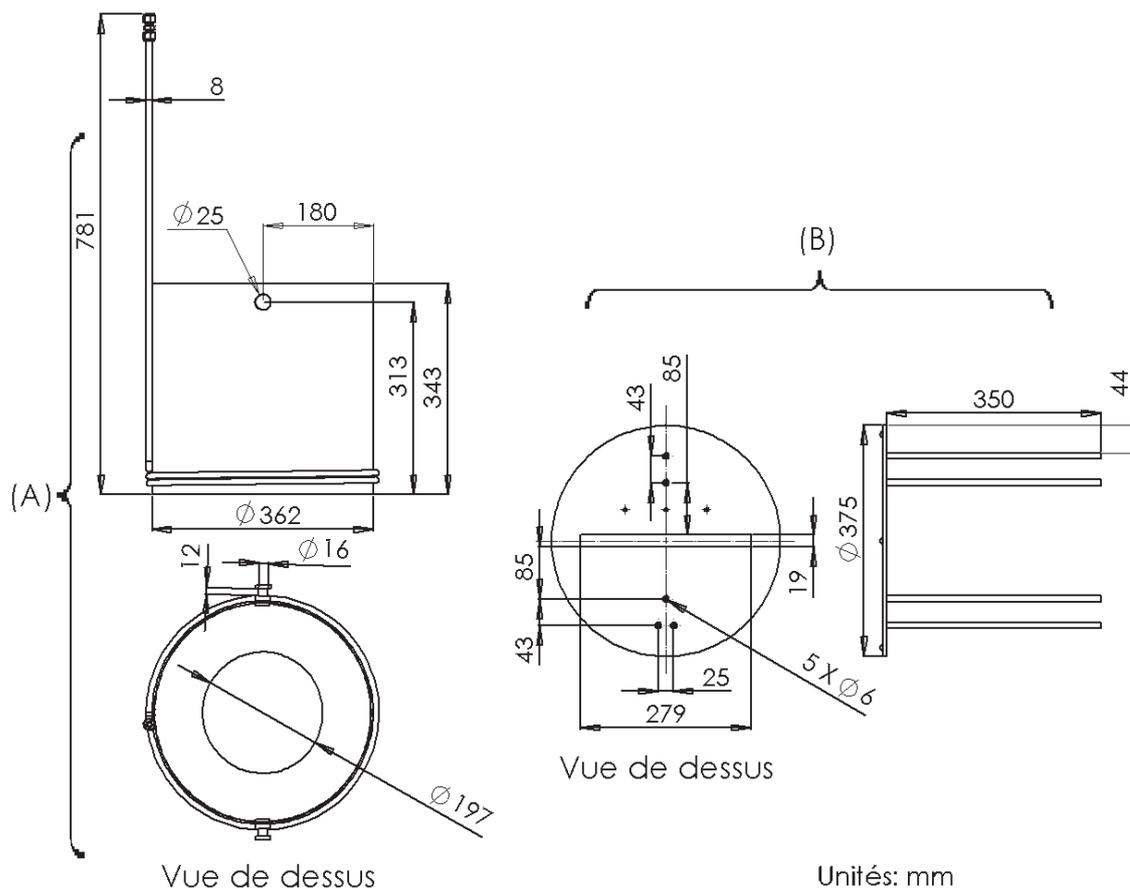


Figure B.1 Représentations du porte-creuset (A) et du couvercle en Inconel (B).

ANNEXE C

DIMENSIONS DU BOUCHON THERMIQUE

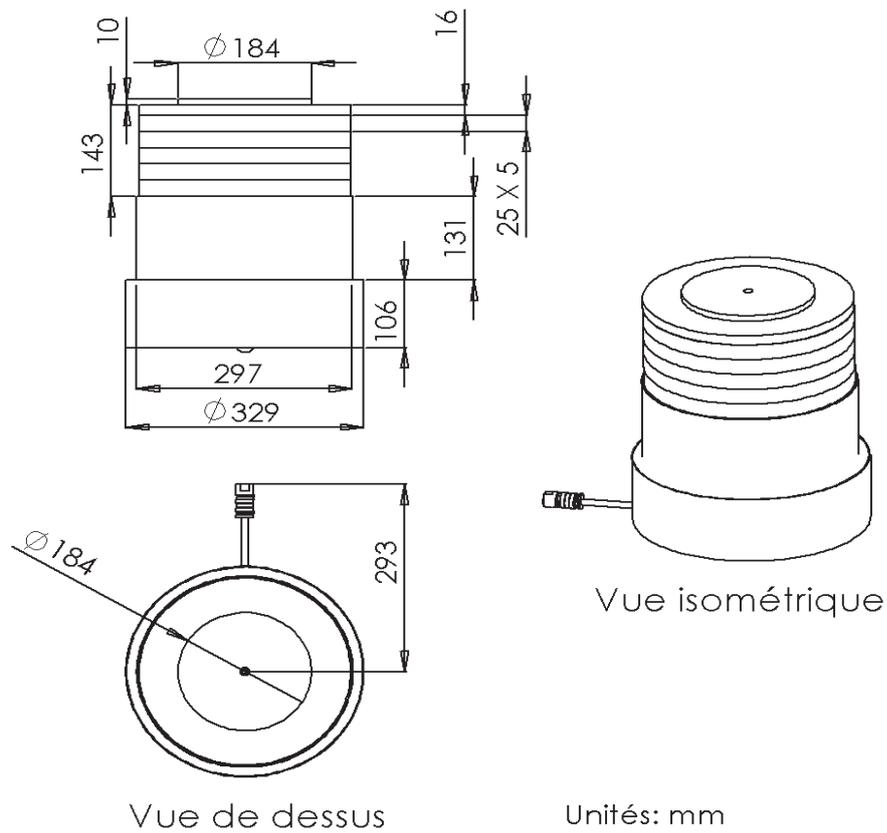


Figure C.1 Schématisations du bouchon thermique servant lors de la chauffe du four industriel.

LISTE DES RÉFÉRENCES

- [1] Abbas, H., Taylor, M. P., Farid, M. et Chen, J. J. J. (2009). The impact of cell ventilation on the top heat losses and fugitive emissions in an aluminium smelting cell. Dans *Light Metals*. TMS, Warrendale, PA, USA, p. 433–438.
- [2] Afshari, A. (1990). *Identification de l'évolution d'un front de fusion/solidification par résolution inverse de l'équation de la chaleur dans le domaine solide*. Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud Centre d'Orsay, Paris, France, 138 p.
- [3] Agence Internationale de l'Énergie (2012). *Energy Prices and Taxes*. http://www.oecd-ilibrary.org/fr/energy/energy-prices-and-taxes_16096835 (page consultée le 1 mars 2012).
- [4] Alexiades, V. et Solomon, D. (1992). *Mathematical modeling of melting and freezing processes*, 1^{re} édition. Hemisphere Pub. Corp., Washington, USA, 336 p.
- [5] Alkemper, J., Sous, S., Stocker, C. et Ratke, L. (1998). Directional solidification in an aerogel furnace with high resolution optical temperature measurements. *Journal of Crystal Growth*, volume 191, numéro 1-2, p. 252–260.
- [6] Aluminum Association of Canada (2012). Canadian primary aluminum production. *The Aluminium Association*. <http://www.aluminum.org/Content/NavigationMenu/NewsStatistics/StatisticsReports/PrimaryProduction/CanadianPrimary201202.pdf> (page consultée le 28 février 2012).
- [7] Andersen, D. et Zhang, Z. L. (2011). Study on the anode-to-cathode distance in an aluminum reduction cell. *Metallurgical and Materials Transactions B*, volume 42B, numéro 2, p. 424–433.
- [8] Anderson, R. et Lauriat, G. (1986). The horizontal natural convection boundary layer regime in a closed cavity. Dans *Proceedings of the 8th International Heat Transfer Conference*. volume 4. p. 1453–1458.
- [9] Arkhipov, G. (2004). Mathematical modeling of aluminum reduction cells in "russian aluminum" company. Dans *Light Metals*. TMS, p. 473–478.
- [10] Association de l'Aluminium du Canada (2004). L'aluminium et l'électricité. *Dialogue sur l'aluminium - Comprendre l'aluminium et ses applications*. <http://www.ledialoguesurlaluminium.com/publications-de-laac> (page consultée le 28 février 2012).
- [11] Association de l'Aluminium du Canada (2006). L'aluminium primaire au Québec : une classe mondiale, un effet de levier régional. Dans E & B Data, *L'information économique et d'affaires au Canada*. <http://fr.ebdata.com/wp-content/uploads/2012/04/Association-de-laluminium-du-Canada1.pdf> (page consultée le 23 avril 2014).

- [12] Aune, F., Bugge, M., Kvande, H., Ringstad, T. et Rolseth, S. (1996). Thermal effects by anode changing in prebake reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 429–435.
- [13] Baines, M. J., Hubbard, M. E., Jimack, P. K. et Mahmood, R. (2009). A moving-mesh finite element method and its application to the numerical solution of phase-change problems. *Communications in Computational Physics*, volume 6, p. 594–624.
- [14] Batsale, J.-C., Hay, B., B. et Filtz, J.-R. (2014). *Mesure de la diffusivité thermique par la méthode flash* (article de base documentaire : TIB586DUO ref. article : r2955). Techniques de l'ingénieur, 12 p.
- [15] Bearne, G., Jenkins, A., Knapp, L. et Saeed, I. (1995). The Impact of cell geometry on cell performance. Dans *Light Metals*. TMS, p. 375–380.
- [16] Bearne, G. et Whitfield, D. (2005). Improving reduction cell metal level measurement and control. Dans *Light Metals*. TMS, p. 413–418.
- [17] Beck, J. V., Blackwell, B. et St-Clair, C. R. (1985). *Inverse Heat Conduction : Ill-posed Problems*, 1^{re} édition. John Wiley & Sons, New-York, USA, 308 p.
- [18] Beckett, G., Mackenzie, J. A. et Robertson, M. L. (2001). A moving mesh finite element method for the solution of two-dimensional Stefan problems. *Journal of Computational Physics*, volume 168, numéro 2, p. 500–518.
- [19] Benkhala, B., Martin, O. et Tomasino, T. (2009). AP50 performances and new development. Dans *Light Metals*. TMS, p. 365–370.
- [20] Bergsdal, H., Strømman, A. H. et Hertwich, E. G. (2004). *The Aluminium Industry - Environment, Technology and Production* (Rapport technique). NTNU and IndEcol, 56 p.
- [21] Bertrand, C., Désilets, M. et Soucy, G. (2011). Experimental measurements within a phase change metallurgical reactor. *Review of Scientific Instruments*, volume 82, p. 123902.1–123902.8.
- [22] Bertrand, C., Marois, M.-A., Désilets, M. et Soucy, G. (2011). Measurement of the solidification front inside a metallurgical reactor. Dans *Sensors, Sampling and Simulation for Process Control*. TMS, p. 85–93.
- [23] Bertrand, C., Marois, M.-A., Désilets, M., Soucy, G. et Lacroix, M. (2013). A combined 2D inverse predictions and experimental analysis for the bank formation inside a metallurgical reactor. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 59, p. 58–65.
- [24] Bianchi, A. M., Fautrelle, Y. et Etay, J. (2004). *Transferts thermiques*, 1^{re} édition. Collection de l'Agence universitaire de la Francophonie, Presses polytechniques et universitaires romandes, 550 p.
- [25] Boily, P. (2001). *Applications des capteurs thermiques implantés pour la détection du profil de gelée dans la cuve d'électrolyse*. Mémoire de maîtrise, Université de Québec à Chicoutimi, Chicoutimi, Québec, Canada, 136 p.

- [26] Boily, P., Kiss, L. I., Bui, R. T. et Desclaux, P. (2001). Sensitivity analysis of the thermal detection of the freeze profile in an aluminum electrolysis cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 1209–1218.
- [27] Bojarevics, V. et Pericleous, K. (2006). Comparison of MHD models for aluminium reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 347–352.
- [28] Bojarevics, V. et Pericleous, K. (2009). Solutions for the metal-bath interface in aluminium electrolysis cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 569–574.
- [29] Bonnardel, O. P. et Homsy, P. (1999). The pechiney semi-continuous & automatic measurement device (CMD), a new tool for automatic measurements. Dans *Light Metals*. TMS, p. 303–310.
- [30] Bouzoubaa, N. (1991). *Coefficient de dilatation thermique du béton : influence de la nature des granulats*. Thèse de doctorat, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Canada, 103 p.
- [31] Bray, E. L. (2012). Aluminum. Dans Survey, U. G., *Aluminum Statistics and Information*. <http://minerals.usgs.gov/minerals/pubs/commodity/aluminum/mcs-2012-alumi.pdf> (page consultée le 28 février 2012).
- [32] Bruggeman, J. N. et Danka, D. J. (1990). Two-dimensional thermal modeling of the Hall-Héroult cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 203–209.
- [33] Bruggeman, J. N. (1998). Pot heat balance fundamentals. Dans *Proceedings of the 6th Australian Aluminium Smelting Workshop*. p. 167–189.
- [34] Bruncko, M., Anzel, I. et Krizman, A. (2003). Monitoring of directional solidification with simultaneous measurements of electrical resistance and temperature. *Materials Characterization*, volume 51, numéro 2-3, p. 185–199.
- [35] Carnahan, B., Luther, H. A. et Wilkes, J. O. (1969). *Applied numerical methods*, 1^{re} édition. Wiley, 621 p.
- [36] Casano, G. et Piva, S. (2002). Experimental and numerical investigation of the steady periodic solid-liquid phase-change heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 45, numéro 20, p. 4181–4190.
- [37] Cavalcanti, F. C. (2006). *Caractérisation thermique de produits de l'état liquide à l'état solide*. Thèse de doctorat, Institut national des sciences appliquées de Lyon, Lyon, France, 242 p.
- [38] Chen, C.-K. et Su, C.-R. (2008). Inverse estimation for temperatures of outer surface and geometry of inner surface of furnace with two layer walls. *Energy Conversion and Management*, volume 49, numéro 2, p. 301–310.
- [39] Chen, J. J. J., Wei, C. C., Thomson, S., Welch, B. J. et Taylor, M. P. (1994). A study of cell ledge heat transfer using an analogue ice-water model. Dans *Light Metals*. TMS, p. 285–293.

- [40] Chessa, J., Smolinski, P. et Belytschko, T. (2002). The extended finite element method (XFEM) for solidification problems. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, volume 53, numéro 8, p. 1959–1977.
- [41] Chiffolleau, G. J. C., Steinberg, T. A. et Veidt, M. (2003). Reflection of structural waves at a solid/liquid interface. *Ultrasonics*, volume 41, numéro 5, p. 347–356.
- [42] Choudhary, G. (1973). Electrical conductivity for aluminum cell electrolyte between 950 °C - 1025 °C by regression equation. *J. Electrochem. Soc.*, volume 120, numéro 3, p. 381–383.
- [43] Chrenková, M., Danek, V., Silný, A. et Utigard, T. (1996). Density, electrical conductivity and viscosity of low melting baths for aluminium electrolysis. Dans *Light Metals*. TMS, p. 227–232.
- [44] Chun, J. H., Lanza, R. C., Saka, N., Hytros, M. M. et Suh, N. P. (1995). Online monitoring of the solidification front in metal casting. *CIRP Ann*, volume 44, numéro 1, p. 181–184.
- [45] Chun, M. H., Choi, H. O., Jun, H. G. et Kim, Y. S. (1987). Phase-change front prediction by measuring the wall temperature on which solidification occurs. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 30, numéro 12, p. 2641–2650.
- [46] Chung, T. J. (2002). *Computational Fluid Dynamics*, 1^{re} édition. Cambridge University Press, 1012 p.
- [47] Comini, G., Nonino, C. et Saro, O. (1990). Performance of enthalpy-based algorithms for isothermal phase change. Dans *Phase Change and Combustion Simulation*. volume 3. p. 3–13.
- [48] Crank, J. (1984). *Free and moving boundary problems*, 1^{re} édition. Oxford University Press, New York, USA, 425 p.
- [49] Cross, M., Pericleous, K., Leboucher, L., Croft, T. N., Bojarevics, V. et Williams, A. (2000). Multi-physics modelling of aluminium reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 285–289.
- [50] Dassylva-Raymond, V. (2009). *Prédiction de l'efficacité de courant du procédé Hall-Héroult*. Mémoire de maîtrise, Université du Québec à Chicoutimi, Chicoutimi, Québec, Canada, 180 p.
- [51] Davey, K. et Mondragon, R. (2010). A non-physical enthalpy method for the numerical solution of isothermal solidification. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, volume 84, numéro 2, p. 214–252.
- [52] Degiovanni, A. (1977). Diffusivité et méthode flash. *Revue Générale de Thermique*, volume 16, numéro 185, p. 420–441.
- [53] Degiovanni, A. et Laurent, M. (1986). Une nouvelle technique d'identification de la diffusivité thermique pour la méthode flash. *Rev. Phys. Appl.*, volume 21, numéro 3, p. 229–237.

- [54] Dewing, E. W. (1991). Loss of current efficiency in aluminum electrolysis cells. *Metallurgical Transactions B*, volume 22, numéro 2, p. 177–182.
- [55] Dialogue sur l’Aluminium (2012). *Le Québec et l’aluminium dans le monde*. <http://www.ledialoguesurlaluminium.com/d%C3%A9veloppement-durable/impact-%C3%A9conomique/une-industrie-vigoureuse-%C3%A0-fort-accent-qu%C3%A9bécois> (page consultée le 28 février 2012).
- [56] Dialogue sur l’Aluminium (2012). *Un métal unique*. <http://ledialoguesurlaluminium.com/laluminium/un-m%C3%A9tal-unique> (page consultée le 28 février 2014).
- [57] Dorin, R., Frazer, E. J. et Vechio-Sadus, A. M. (1994). Current efficiency, mass transfer bubble evolution characteristics in a laboratory-scale alumina reduction cell with optional sleeved anode. Dans *Light Metals*. TMS, p. 205–210.
- [58] Doumanidis, C. C. et Hardt, D. E. (1989). A model for in-process control of thermal properties during welding. *Transactions of the ASME. Journal of Dynamic Systems, Measurement and Control*, volume 111, numéro 1, p. 40–50.
- [59] Drevermann, A., Pickmann, C., Sturz, L. et Zimmermann, G. (2004). Observation and control of solidification processes by ultrasonic pulse-echo technique. Dans *Ultrasonics Symposium, 2004 IEEE*. volume 1. p. 537–540.
- [60] Drevermann, A., Pickmann, C., Tiefers, R. et Zimmermann, G. (2004). Online process control for directional solidification by ultrasonic pulse echo technique. *Ultrasonics*, volume 42, numéro 1-9, p. 105–108.
- [61] Dupuis, M. (2010). Mathematical modelling of aluminum reduction cell potshell deformation. Dans *Light Metals*. TMS, p. 417–422.
- [62] Dupuis, M., Bojarevics, V. et Freibergs, J. (2004). Demonstration thermo-electric and MHD mathematical models of a 500 kA aluminum electrolysis cell : part 2. Dans *Light Metals*. TMS, p. 453–459.
- [63] Dutil, Y., Rousse, D. R., Salah, N. B., Lassue, S. et Zalewski, L. (2011). A review on phase-change materials : mathematical modeling and simulations. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, volume 15, numéro 1, p. 112–130.
- [64] Eick, I. et Vogelsang, D. (1999). Dimensioning of cooling fins for high-amperage reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 339–345.
- [65] Eika, K. et Skjeggstad, R. (1993). Heat recovery and dynamic process studies. Dans *Light Metals*. TMS, p. 277–284.
- [66] Elgafy, A., Mesalhy, O. et Lafdi, K. (2004). Numerical and experimental investigations of melting and solidification processes of high melting point PCM in a cylindrical enclosure. *Transactions of the ASME. Journal of Heat Transfer*, volume 126, numéro 5, p. 869–875.

- [67] Entner, P. M. (1995). Control of bath temperature. Dans *Light Metals*. TMS, p. 227–230.
- [68] Environnement Canada (17 février 2012). *Lois, règlements et accords*. <http://www.ec.gc.ca/default.asp?lang=Fr&n=48D356C1-1> (page consultée le 28 février 2012).
- [69] Équipe du CRDT de l'UQAC (2010). *Dossier stratégique sur l'aluminium - Chapitre 3* (Rapport technique). Étude commanditée par Promotion Saguenay, 129 p.
- [70] Eyer, A., Haas, F., Schatzle, P., Rauber, A. et Knobel, R. M. (1991). A pulse-echo ultrasonic technique for the localization of the solid-liquid interface during directional solidification of silicon ingots. Dans *Photovoltaic Specialists Conference*. volume 2. Conference Record of the Twenty Second IEEE, p. 982–985.
- [71] Feng, N., Qi, X., Peng, J., Duan, X. et Wu, J. (2006). Electrolysis test of 1 350 A drained cathode reduction cell with TiB₂-coated cathode. Dans *Light Metals*. TMS, p. 505–510.
- [72] Ferziger, J. H. et Peric, M. (1996). *Computational methods for fluid dynamics*, 3^e édition. Springer-Verlag, New-York, USA, 423 p.
- [73] Fic, A., Nowak, A. J. et Bialecki, R. (2000). Heat transfer analysis of the continuous casting process by the front tracking BEM. *Engineering Analysis with Boundary Elements*, volume 24, numéro 3, p. 215 – 223.
- [74] Floquet, J., Désilets, M., Quaegebeur, N. et Micheau, P. (2013). Development of non destructive thickness measurement of solidification fronts in metallurgical reactors using ultrasonic waves. Dans *Congrès International sur l'Ingénierie des Risques Industriels - En cours d'acceptation*.
- [75] Gadd, M. D., Welch, B. J. et Ackland, A. D. (2000). The effect of process operations on smelter cell top heat losses. Dans *Light Metals*. TMS, p. 231–238.
- [76] Gan, Y. R. et Thonstad, J. (1990). Heat transfer between molten and solid cryolite bath. Dans *Light Metals*. TMS, p. 421–427.
- [77] Gong, Z. X. (1996). *Time-dependent Melting and Freezing Heat Transfer in Multiple Phase Change Materials*. Thèse de doctorat, McGill University, Montréal, Canada, 207 p.
- [78] Gouvernement du Canada (19 décembre 2011). *L'action du Canada sur les changements climatiques*. <http://www.changementsclimatiques.gc.ca/default.asp?lang=Fr&n=E18C8F2D-1> (page consultée le 28 avril 2014).
- [79] Green, J. A. S. (2007). *Aluminum recycling and processing for energy conservation and sustainability*. ASM International, 267 p.
- [80] Grjotheim, K. et Kvande, H. (1993). *Introduction to Aluminium Electrolysis, Understanding the Hall-Héroult Process*, 2^e édition. Aluminium-Verlag, Düsseldorf, Germany, 260 p.

- [81] Grjotheim, K. et Welch, B. J. (1988). *Aluminium smelter technology : a pure and applied approach*, 2^e édition. Aluminium-Verlag, Düsseldorf, Germany, 146 p.
- [82] Gupta, A., Chulliparambil, M., Namboothiri, S., Mani, S., Basu, B. et Janardhanan, J. (2012). Electromagnetic and MHD study to improve cell performance of an end-to-end 86 kA potline. Dans *Light Metals*. TMS, p. 853–858.
- [83] Gusberti, V., Severo, D. S., Welch, B. J. et Skyllas-Kazacos, M. (2012). Modeling the mass and energy balance of different aluminium smelting cell technologies. Dans *Light Metals*. TMS, p. 929–934.
- [84] Haghghi, M. R. G., Eghtesad, M., Malekzadeh, P. et Neculescu, D. S. (2008). Two-dimensional inverse heat transfer analysis of functionally graded materials in estimating time-dependent surface heat flux. *Numerical Heat Transfer; Part A : Applications*, volume 54, numéro 7, p. 744–762.
- [85] Hasnaoui, M., Bilgen, E. et Vasseur, P. (1992). Natural convection heat transfer in rectangular cavities partially heated from below. *Journal of thermophysics and heat transfer*, volume 6, numéro 2, p. 255–264.
- [86] Haugland, E., Borset, H., Gikling, H. et Hoie, H. (2003). Effects of ambient temperature and ventilation on shell temperature, heat balance and side ledge of an alumina reduction cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 269–276.
- [87] Haupin, W. E. (1971). Calculating thickness of containing walls frozen from melt. Dans *Light Metals*. TMS, p. 188–194.
- [88] Haupin, W. E. (1998). Interpreting the components of cell voltage. Dans *Light Metals*. TMS Annual Meeting, p. 531–537.
- [89] Haupin, W. E. et Kvande, H. (2000). Thermodynamics of electrochemical reduction of alumina. Dans *Light Metals*. TMS, p. 379–384.
- [90] Hay, B., Filtz, J.-R., Hameury, J. et Rongione, L. (2008). Estimation de l'incertitude de mesure de la diffusivité thermique par méthode flash - application à cinq matériaux homogènes. *Revue Française de Métrologie*, volume 14, numéro 2, p. 1–11.
- [91] Haywood, R., Sarvinis, J., Monaghan, A. et Baker, P. (2003). Intensive sidewall cooling in Hall-Héroult cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 77–90.
- [92] Hogenboom, M. et Spreij, M. (2004). Refractories for aluminium melting and holding furnaces : the importance of materials testing. Dans *Light Metals*. TMS, p. 637–640.
- [93] Holman, J. P. (2011). *Experimental Methods for Engineers*, 8^e édition. McGraw-Hill Series in Mechanical Engineering, McGraw-Hill Education, 698 p.
- [94] Holt, N. J., Anderson, N. M., Karlsen, M. et Foosnaes, T. (1999). Ventilation of potrooms in aluminium production. Dans *Light Metals*. TMS, p. 263–268.
- [95] Homsî, P., Peyneau, J.-M. et Reverdy, M. (2000). Overview of process control in reduction cells and potlines. Dans *Light Metals*. TMS, p. 223–230.

- [96] Hong, F. J. et Qiu, H.-H. (2005). Experimental study on rapid solidification process using a novel ultrasound technique. *Experimental Thermal and Fluid Science*, volume 30, numéro 1, p. 17–26.
- [97] Huchet, G. (2010). *Propriétés thermomécaniques de cermets à base de ferrite spinelle : influence de l'oxydation*. Thèse de doctorat, École nationale supérieure des Mines de Paris, Paris, France, 226 p.
- [98] Hytros, M. M., Jureidini, I. M., Chun, J.-H., Lanza, R. C. et Saka, N. (1999). High-energy X-ray computed tomography of the progression of the solidification front in pure aluminum. *Metallurgical and Materials Transactions A*, volume 30, numéro 5, p. 1403–1409.
- [99] Ihara, I., Burhan, D. et Seda, Y. (2005). In situ monitoring of solid-liquid interface of aluminum alloy using high-temperature ultrasonic sensor. *Japanese Journal of Applied Physics*, volume 44, numéro 6B, p. 4370–4373.
- [100] International Aluminium Institute (2002). *The aluminium industry's sustainable development report* (Rapport technique). International Aluminium Institute, 27 p.
- [101] International Energy Agency's Directorate of Sustainable Energy Policy and Technology (2010). *Energy Technology Pers 2010 - Scenarios & Strategies to 2050* (Rapport technique). International Energy Agency, 706 p.
- [102] Jae, M. H. (1984). Transient process of thermally stratifying an initially homogeneous fluid in an enclosure. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 27, numéro 10, p. 1936–1938.
- [103] Jarny, Y., Özisik, M. N. et Bardon, J. P. (1991). A general optimization method using adjoint equation for solving multidimensional inverse heat conduction. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 34, numéro 11, p. 2911–2919.
- [104] Jen, C.-K., Legoux, J.-G. et Parent, L. (2000). Experimental evaluation of clad metallic buffer rods for high temperature ultrasonic measurements. *NDT and E International*, volume 33, numéro 3, p. 145–153.
- [105] Ji, H., Chopp, D. et Dolbow, J. E. (2002). A hybrid extended finite element/level set method for modeling phase transformations. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, volume 54, numéro 8, p. 1209–1233.
- [106] Jo, J. C., Shin, W. K. et Choi, C. Y. (1999). Multidimensional phase change problems by the dual-reciprocity boundary element method. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, volume 36, numéro 1, p. 95–113.
- [107] Johnson, J. A., Carlson, N. M. et Lott, L. A. (1987). Ultrasonic wave propagation in temperature gradients. *Journal of Nondestructive Evaluation*, volume 6, numéro 3, p. 147–157.
- [108] Jones, B. J., Sun, D., Krishnan, S. et Garimella, S. V. (2006). Experimental and numerical study of melting in a cylinder. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 49, numéro 15-16, p. 2724–2738.

- [109] Kalaiselvam, S., Veerappan, M., Aaron, A. A. et Iniyar, S. (2008). Experimental and analytical investigation of solidification and melting characteristics of PCMs inside cylindrical encapsulation. *International Journal of Thermal Sciences*, volume 47, numéro 7, p. 858–874.
- [110] Kasherman, D. et Skyllas-Kazacos, M. (1988). Effects of anode-cathode distance on the cell potential and electrical bath resistivity in an aluminium electrolysis cell with a sloping TiB_2 composite cathode. *Journal of Applied Electrochemistry*, volume 18, numéro 6, p. 863–868.
- [111] Kermarrec, M. (2004). *Application industrielles des sels fondus* (Rapport technique). Agence Rhône-Alpes pour la maîtrise des matériaux, 90 p.
- [112] Khatun, A. (2010). *Évaluation de l'impact de la précision de mesure des propriétés thermiques des matériaux sur la prédiction de leur comportement thermique*. Mémoire de maîtrise, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, Canada, 162 p.
- [113] Kiss, L. I. et Charette, A. (1992). Potentials and limitations of using thermometers and heat flux sensors as diagnostic tools. Dans *Temperature, its measurement and control in science and industry*. volume 6. American Institute of Physics, p. 1201–1206.
- [114] Kiss, L. I. et Dassylva-Raymond, V. (2008). Freeze thickness in the aluminum electrolysis cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 431–436.
- [115] Kiss, L. I., Poncsák, S. et Antille, J. (2005). Simulation on the bubble layer in aluminum electrolysis cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 559–564.
- [116] Kulkarni, D., Rovas, D. V. et Tortorelli, D. A. (2007). Discontinuous Galerkin framework for adaptive solution of parabolic problems. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, volume 70, numéro 1, p. 1–24.
- [117] Kvande, H., Chen, J. J. J. et Haupin, W. E. (1994). Minimizing energy consumption through optimizing alumina concentration in the bath of Hall-Héroult cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 429–439.
- [118] Kvande, H. et Haupin, W. E. (2000). Cell voltage in aluminum electrolysis : a practical approach. *JOM*, volume 52, numéro 2, p. 31–37.
- [119] Kvande, H. et Haupin, W. E. (2001). Inert anodes for Al smelters : energy balances and environmental impact. *JOM*, volume 53, numéro 5, p. 29–33.
- [120] Laouadi, A. (1996). *Transfert de chaleur dans un matériau à changement de phase : application au stockage cyclique d'énergie électrique*. Thèse de doctorat, Université de Sherbrooke (Canada), Sherbrooke, Canada, 139 p.
- [121] Lavoie, P., Namboothiri, S., Dorreen, M., Chen, J. J. J., Zeigler, D. et Taylor, M. P. (2011). Increasing the power modulation window of aluminium smelter pots with shell heat exchanger technology. Dans *Light Metals*. TMS, p. 369–374.

- [122] Le Niliot, C. et Gallet, P. (1998). Infrared thermography applied to the resolution of inverse heat conduction problems : recovery of heat line sources and boundary conditions. *Revue Générale de Thermique*, volume 37, numéro 8, p. 629–643.
- [123] Lebreux, M., Désilets, M. et Lacroix, M. (2010). Fast inverse prediction of phase change banks in high temperature furnaces with a kalman filter coupled with a recursive least-square estimator. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 53, numéro 23-24, p. 5250–5260.
- [124] Lee, S. L. et Tzong, R. Y. (1991). An enthalpy formulation for phase change problems with a large thermal diffusivity jump across the interface. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 34, numéro 6, p. 1491–1502.
- [125] Lemembre, A. et Petit, J.-P. (1998). Laminar natural convection in a laterally heated and upper cooled vertical cylindrical enclosure. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 41, numéro 16, p. 2437–2454.
- [126] Li, J., Xiao-jun, L., Lai, Y.-Q., Li, Q.-Y. et Liu, Y.-X. (2008). Research progress in TiB₂ wettable cathode for aluminum reduction. *JOM*, volume 60, numéro 8, p. 32–37.
- [127] Lin, W. et Armfield, S. W. (1999). Direct simulation of natural convection cooling in a vertical circular cylinder. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 42, numéro 22, p. 4117–4130.
- [128] Liu, X., Purdie, J. M., Taylor, M. P. et Welch, B. J. (1991). Measurement and modelling of alumina mixing and dissolution for varying electrolyte heat and mass transfer conditions. Dans *Light Metals*. TMS, p. 289–298.
- [129] Loßmann, G. (1992). Utilization of various combined measurements in reduction cells for operational improvement. Dans *Light Metals*. TMS, p. 441–447.
- [130] Mackenzie, J. A. et Robertson, M. L. (2000). The numerical solution of one-dimensional phase change problems using an adaptive moving mesh method. *Journal of Computational Physics*, volume 161, numéro 2, p. 537–557.
- [131] Madsen, D. J. (1992). Temperature measurement and control in reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 453–456.
- [132] Maillet, D., Jarny, Y. et Petit, D. (2010). *Problèmes inverses en diffusion thermique - Modèles diffusifs, mesures, sensibilités* (article de base documentaire : TIB214DUO ref. article : be8265). Techniques de l'ingénieur, 27 p.
- [133] Marois, M.-A. (2012). *Prédiction inverse d'un front de solidification dans un four de transformation à haute température*. Thèse de doctorat, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Canada, 161 p.
- [134] Marois, M.-A., Bertrand, C., Désilets, M., Coulombe, M.-M. et Lacroix, M. (2009). Comparison of two different numerical methods for predicting the formation of the side ledge in an aluminium electrolysis cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 563–568.

- [135] Marois, M.-A., Désilets, M. et Lacroix, M. (2011). Prediction of a 2-D solidification front in high temperature furnaces by an inverse analysis. *Numerical Heat Transfer, Part A : Applications*, volume 59, numéro 3, p. 151–166.
- [136] Marois, M.-A., Désilets, M. et Lacroix, M. (2011). Prediction of the bank formation in high temperature furnaces by a sequential inverse analysis with overlaps. *Numerical Heat Transfer, Part A : Applications*, volume 60, numéro 7, p. 561–579.
- [137] Marois, M.-A., Désilets, M. et Lacroix, M. (2012). What is the most suitable fixed grid phase change method for handling time-varying inverse problems? *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 55, numéro 21-22, p. 5471–5478.
- [138] Meghlaoui, A., Bui, R. T., Tikasz, L., Thibault, J. et Santerre, R. (1997). Intelligent control of the feeding of aluminum electrolytic cells using neural networks. *Metallurgical and Materials Transactions B*, volume 28, numéro 2, p. 215–221.
- [139] Merle, R. et Dolbow, J. (2002). Solving thermal and phase change problems with the extended finite element method. *Computational Mechanics*, volume 28, numéro 5, p. 339–350.
- [140] MetalPrices (2012). *Metal Prices & News on the Internet*. <http://www.metalprices.com/#> (page consultée le 1 mars 2012).
- [141] Miller, E. W. J., Stephenson, M. P. et Beech, J. (1975/01). A technique for the direct observation of alloy solidification. *Journal of Physics E : Scientific Instruments*, volume 8, numéro 1, p. 33–37.
- [142] Ministère des Ressources Naturelles et de la Faune du Québec (2012). *Statistiques énergétiques*. <http://www.mrnf.gouv.qc.ca/energie/statistiques/index.jsp> (page consultée le 28 février 2012).
- [143] Ministère de l'Économie, de l'Innovation et des Exportations du Québec (2005). L'industrie québécoise de la métallurgie. *Ministère de l'Économie, de l'Innovation et des Exportations du Québec*. https://www.economie.gouv.qc.ca/objectifs/informer/par-secteur-dactivite/metallurgie/page/profils-industriels-11049/?tx_igaffichagepages_pi1%5Bmode%5D=single&tx_igaffichagepages_pi1%5BbackPid%5D=12526&tx_igaffichagepages_pi1%5BcurrentCat%5D=&cHash=3060e1ca27d155d57d16c4c60925d220 (page consultée le 23 avril 2014).
- [144] Minkowycz, W. J., Sparrow, E. M. et Murthy, J. Y. (2006). *Handbook of Numerical Heat Transfer*, 2^e édition. Wiley, 984 p.
- [145] Momose, K., Yamakawa, T. et Kimoto, H. (1998). An inverse analysis of two-phase Stefan problems using imaginary heat sources. *Heat Transfer - Japanese Research*, volume 27, numéro 3, p. 179–181.
- [146] Mondragon, R. et Davey, K. (2011). Weak discontinuity annihilation in solidification modelling. *Computers & Structures*, volume 89, numéro 7-8, p. 681–701.

- [147] Moxnes, B., Solheim, A., Liane, M., Halkjelsvik, A. et Svinsås, E. (2009). Improved cell operation by redistribution of the alumina feeding. Dans *Light Metals*. TMS, p. 461–466.
- [148] Muhieddine, M., Canot, É. et March, R. (2008). Various approach for solving problems in heat conduction with phase change. *International Journal of finite volume method*, volume 6, numéro 1, p. 1–20.
- [149] Namboothiri, S., Lavoie, P., Cotton, D. et Taylor, M. P. (2009). Controlled cooling of aluminium smelting cell sidewalls using heat exchangers supplied with air. Dans *Light Metals*. TMS, p. 317–322.
- [150] Naterer, G. F. (2001). Applying heat-entropy analogies with experimental study of interface tracking in phase change heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 44, numéro 15, p. 2917–2932.
- [151] Nomura, T., Okinaka, N. et Akiyama, T. (2010). Technology of latent heat storage for high temperature application : a review. *ISIJ International*, volume 50, numéro 9, p. 1229–1239.
- [152] Nowak, I., Nowak, A. J. et Wrobel, L. C. (2002). Identification of phase change fronts by Bezier splines and BEM. *International Journal of Thermal Sciences*, volume 41, numéro 6, p. 492–499.
- [153] Office de l'efficacité énergétique (2006). *État de l'efficacité énergétique au Canada* (Rapport technique). Ressources Naturelles Canada, 32 p.
- [154] Office de l'efficacité énergétique (2010). *Évolution de l'efficacité énergétique au Canada de 1990 à 2008* (Rapport technique). Ressources Naturelles Canada, 58 p.
- [155] Office de l'efficacité énergétique (2011). *Guide de données sur la consommation d'énergie, 1990-2008* (Rapport technique). Ressources Naturelles Canada, 176 p.
- [156] Office de l'efficacité énergétique (4 janvier 2012). *Ressources Naturelles Canada*. http://oeo.nrcan.gc.ca/organisme/statistiques/bnce/apd/guide_tableaux.cfm?attr=00 (page consultée le 23 avril 2014).
- [157] Office des publications (2006). Règlement (CE) 842/2006 du Parlement européen et du Conseil du 17 mai 2006 relatif à certains gaz à effet de serre fluorés. *Eur-Lex : L'accès au droit de l'Union européenne*. <http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=CELEX:32006R0842:FR:HTML> (page consultée le 23 juillet 2013).
- [158] Ono, Y., Moisan, J.-F. et Jen, C.-K. (2004). Ultrasonic imaging in molten magnesium. *Measurement Science and Technology*, volume 15, numéro 2, p. 25–29.
- [159] Orriols, A. (2006). *Algorithmes d'optimisation et de contrôle d'interface libre*. Thèse de doctorat, École Nationale des Ponts et Chaussées, Marne La Vallée, France, 152 p.
- [160] Özisik, M. N. (1993). *Heat conduction*, 2^e édition. John Wiley and Sons, New York, USA, 692 p.

- [161] Özisik, M. N. et Orlande, H. R. B. (2000). *Inverse heat transfer : fundamentals and applications*, 1^{re} édition. Taylor & Francis, New York, USA, 352 p.
- [162] Parker, R. L. et Manning, J. R. (1986). Application of pulse-echo ultrasonics to locate the solid/liquid interface during solidification and melting. *Journal of Crystal Growth*, volume 79, numéro 1-3, p. 341–353.
- [163] Parker, R. L., Manning, J. R. et Peterson, N. C. (1985). Application of pulse-echo ultrasonics to locate the solid/liquid interface during solidification and melting of steel and other metals. *Journal of Applied Physics*, volume 58, numéro 11, p. 4150–4164.
- [164] Parker, W. J., Jenkins, R. J., Butler, C. P. et Abbott, G. L. (1961). Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity. *Journal of Applied Physics*, volume 32, numéro 9, p. 1679–1684.
- [165] Paszynski, M. et Matuszyk, P. (2010). Different mesh management strategies for non-stationary self-adaptive hp finite element method. *Computer Methods in Materials Science*, volume 10, p. 42–51.
- [166] Patankar, S. V. (1980). *Numerical heat transfer and fluid flow*, 1^{re} édition. Hemisphere Pub. Corp., New-York, USA, 197 p.
- [167] Peng, J.-P., Feng, N.-X., Jiang, Y.-L., Wang, Y.-W. et You, J. (2008). Test of drained aluminum electrolysis cell with TiB₂/G graphitized cathode at high current density. *Chinese Journal of Nonferrous Metals*, volume 18, numéro 4, p. 738–744.
- [168] Perron, A. (2006). *Transfert de quantité de mouvement et augmentation de la résistance électrique causés par la présence des bulles dans une cuve Hall-Héroult*. Thèse de doctorat, Université du Québec à Chicoutimi, Chicoutimi, Canada, 282 p.
- [169] Queheillalt, D. T. et Wadley, H. N. G. (2001). Laser ultrasonic sensing of the melting and solidification of cadmium telluride. *Journal of Crystal Growth*, volume 225, numéro 1, p. 34–44.
- [170] Rădulescu, C., Ciobanu, G. et Panait, N. (2012). Method of automatic signaling of the critical Al₂O₃ minimum concentration in the electrolyte. *U.P.B. Sci. Bull., Series B*, volume 74, numéro 2, p. 231–238.
- [171] Rahman, M. M., Hino, T., Morita, K., Matsumoto, T., Nakagawa, K., Fukuda, K. et Maschek, W. (2007). Experimental investigation of molten metal freezing on to a structure. *Experimental Thermal and Fluid Science*, volume 32, numéro 1, p. 198–213.
- [172] Rainieri, S., Bozzoli, F. et Pagliarini, G. (2008). Characterization of an uncooled infrared thermographic system suitable for the solution of the 2-D inverse heat conduction problem. *Experimental Thermal and Fluid Science*, volume 32, numéro 8, p. 1492–1498.
- [173] Rathjen, K. R. et Jiji, L. M. (1971). Heat conduction with melting or freezing in a corner. *Journal of Heat Transfer*, volume 93, numéro 1, p. 101–109.

- [174] Reboul, M. (2005). *Corrosion des alliages d'aluminium* (article de base documentaire : TIB373DUO ref. article : COR325). Techniques de l'ingénieur, 19 p.
- [175] Renaudier, S., Bardet, B., Steiner, G., Pedcenko, A., Rappaz, J., Molokov, S. et Masserey, A. (2013). Unsteady MHD modeling applied to cell stability. Dans *Light Metals*. TMS, p. 579–584.
- [176] Réseau Trans-Al Inc. et NRC's Aluminium Technology Centre (2006). *Canadian Aluminium Transformation Technology Roadmap* (Rapport technique). National Research Council Canada, 124 p.
- [177] Rose, J. L. (1999). *Ultrasonic Waves in Solid Media*, 1^{re} édition. Cambridge University Press, Cambridge, Royaume-Uni, 472 p.
- [178] Rye, K. A., Eidet, T. et Tørklep, K. (1999). Dynamic ledge response in Hall-Héroult cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 347–352.
- [179] Safa, Y. (2005). *Simulation numérique des phénomènes thermiques et magnétohydrodynamiques dans une cellule de Hall-Héroult*. Thèse de doctorat, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne, Suisse, 105 p.
- [180] Samai, M., Jarny, Y. et Delaunay, D. (1993). An optimization method using an adjoint equation to identify solidification front location. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, volume 23, numéro 1, p. 67–89.
- [181] Schmachtl, M., Schievenbusch, A., Zimmermann, G. et Grill, W. (1998). Crystallization process control during directional solidification in a high-temperature-gradient furnace by guided ultrasonic waves and real-time signal evaluation. *Ultrasonics*, volume 36, numéro 1-5, p. 291–295.
- [182] Severo, D. S., Gusberti, V., Schneider, A., Pinto, E. et Potocnik, V. (2008). Comparison of various methods for modeling the metal-bath interface. Dans *Light Metals*. TMS, p. 413–418.
- [183] Shukla, A. K., Dmitry, R., Volkova, O., Scheller, P. R. et Deo, B. (2011). Cold model investigations of melting of ice in a gas-stirred vessel. *Metallurgical and Materials Transactions B*, volume 42, numéro 1, p. 224–235.
- [184] Sides, P. J. et Prentice, G. A. (1988). The effect of electrode shape on the cell voltage of Hall cells-II : Inert anodes. *Electrochimica Acta*, volume 33, numéro 8, p. 1043–1046.
- [185] Skrzypczak, T. et Węgrzyn-Skrzypczak, E. (2012). Mathematical and numerical model of solidification process of pure metals. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 55, numéro 15-16, p. 4276–4284.
- [186] Skybakmoen, E., Kvello, J., Darell, O. et Gudbrandsen, H. (2008). Test and analysis of nitride bonded SiC sidelining materials : typical properties analysed 1997-2007. Dans *Light Metals*. TMS, p. 943–948.

- [187] Société Éditions Larousse (28 février 2013). *Larousse : Dictionnaires*. <http://www.larousse.fr/> (page consultée le 28 février 2013).
- [188] Solheim, A. (2000). The density of molten NaF-LiF-AlF₃-CaF₂-Al₂O₃ in aluminium electrolysis. *Aluminum Transactions*, volume 2, numéro 1, p. 161–168.
- [189] Solheim, A. (2011). Some aspects of heat transfer between bath and sideledge in aluminium reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 381–386.
- [190] Steinbach, S. et Ratke, L. (2004). In situ optical determination of fraction solid. *Scripta Materialia*, volume 50, numéro 8, p. 1135–1138.
- [191] Stevens McFadden, F. J., Welch, B. J., Whitfield, D. et Skyllas-Kazacos, M. (2001). Control of temperature in aluminum reduction cells - challenges in measurements and variability. Dans *Light Metals*. TMS, p. 1171–1178.
- [192] Stevens McFadden J. S. (1998). Energy balance and cell dynamics : considerations for cell design, operations and process control. Dans *Proc. 6th Aust. Al. Smelting Workshop*. p. 289–320.
- [193] Suzuki, K., Hikata, A. et Elbaum, C. (1987). Study of solid-liquid interfaces during solidification, using ultrasonic waves. *Physical Review Letters*, volume 59, numéro 23, p. 2686–2689.
- [194] Swaminathan, C. R. et Voller, V. R. (1992). A general enthalpy method for modeling solidification processes. *Metallurgical Transactions B*, volume 23, numéro 5, p. 651–664.
- [195] Swaminathan, C. R. et Voller, V. R. (1992). Streamline upwind scheme for control volume finite elements, part I : formulations. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, volume 22, numéro 1, p. 95–107.
- [196] Swaminathan, C. R. et Voller, V. R. (1992). Streamline upwind scheme for control-volume finite elements, part II : implementation and comparison with the SUPG finite element scheme. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, volume 22, numéro 1, p. 109–124.
- [197] Tabereaux, A. (2000). Prebake cell technology : a global review. *JOM*, volume 52, numéro 2, p. 22–28.
- [198] Tadrari, O. et Lacroix, M. (2006). Prediction of protective banks in high temperature smelting furnaces by inverse heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 49, numéro 13-14, p. 2180–2189.
- [199] Tan, F. L. et Leong, K. C. (1999). An experimental investigation of solidification in a rectangular enclosure under constant heat rate condition. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, volume 26, numéro 7, p. 925–934.
- [200] Taylor, M. P. (1984). *The influence of process dynamics on the heat balance and cell operation in the electrowinning of aluminium*. Thèse de doctorat, University of Auckland, Auckland, New Zealand, 402 p.

- [201] Taylor, M. P. et Chen, J. J. J. (2007). Advances in process control for aluminium smelters. *Materials and Manufacturing Processes*, volume 22, numéro 7-8, p. 947–957.
- [202] Taylor, M. P. et Welch, B. J. (1985). Bath/freeze heat transfer coefficients : experimental determination and industrial application. Dans *Light Metals*. TMS, p. 781–789.
- [203] Taylor, M. P. et Welch, B. J. (1987). Melt/freeze heat transfer measurements in cryolite-based electrolytes. *Metallurgical Transactions B*, volume 18, numéro 2, p. 391–398.
- [204] Taylor, M. P., Welch, B. J. et Keniry, J. T. (1983). Influence of changing process conditions on the heat transfer during the early life of an operating cell. Dans *Light Metals*. TMS, p. 437–447.
- [205] Taylor, M. P., Welch, B. J. et O’Sullivan, M. J. (1983). Sidewall ledge dynamics in cells used for electrowinning aluminium. Dans *Proc. of the 11th Australian Con. Chem. Eng.* p. 493–500.
- [206] Taylor, M. P., Zhang, W. D., Wills, V. et Schmid, S. (1996). A dynamic model for the energy balance of an electrolysis cell. *Chemical Engineering Research and Design*, volume 74, numéro 8, p. 913–933.
- [207] Thonstad, J., Fellner, P., Haarberg, G. M., Híveš, J. et Kvande, H. Sterten, Å. (2001). *Aluminium electrolysis : Fundamentals of the Hall-Héroult Process*, 3^e édition. Aluminium-Verlag, 372 p.
- [208] Thonstad, J. et Rolseth, S. (1983). Equilibrium between bath and side ledge in aluminum cells. basic principles. Dans *Light Metals*. TMS, p. 415–424.
- [209] U.S Geological Survey (2012). *Aluminum Statistics and Information*. <http://minerals.usgs.gov/minerals/pubs/commodity/aluminum/> (page consultée le 1 mars 2012).
- [210] U.S Geological Survey (2012). *Aluminum Statistics and Information*. <http://minerals.usgs.gov/minerals/pubs/commodity/aluminum/mcs-2012-alumi.pdf> (page consultée le 28 février 2012).
- [211] Valencia, A. et Frederick, R. L. (1989). Heat transfer in square cavities with partially active vertical walls. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 32, numéro 8, p. 1567–1574.
- [212] Vargas, M., Sierra, F. Z., Ramos, E. et Avramenko, A. A. (2002). Steady natural convection in a cylindrical cavity. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, volume 29, numéro 2, p. 213–221.
- [213] Vargel, C. (2005). *Propriétés générales de l’aluminium et de ses alliages* (article de base documentaire : TIB357DUO ref. article : M4661). *Techniques de l’ingénieur*, 16 p.

- [214] Verreault, J., Desgroseilliers, B., Gariépy, R., Simard, C., Simard, S., Delcorde, X., Turpain, C. et Déry, S.-P. (2011). Retrofit of a combined breaker feeder with a chisel bath contact detection system to reduce anode effect frequency in a potroom. Dans *Light Metals*. TMS, p. 467–470.
- [215] Versteeg, H. K. et Malalasekera, W. (1995). *An Introduction to Computational Fluid Dynamics : The Finite Volume Method*, 2^e édition. Pearson Education, 503 p.
- [216] Voisin, P. (1992). *Métallurgie extractive de l'aluminium* (article de base documentaire : TIP554DUO ref. article : M2340). Techniques de l'ingénieur, 27 p.
- [217] Voller, V. R. et Cross, M. (1981). Accurate solutions of moving boundary problems using the enthalpy method. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 24, numéro 3, p. 545–556.
- [218] Voller, V. R. et Swaminathan, C. R. (1991). General source-based method for solidification phase change. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, volume 19, numéro 2, p. 175–189.
- [219] Voller, V. R., Swaminathan, C. R. et Thomas, B. G. (1990). Fixed grid techniques for phase change problems : a review. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, volume 30, numéro 4, p. 875–898.
- [220] Šarler, B. et Kuhn, G. (1998). Dual reciprocity boundary element method for convective-diffusive solid-liquid phase change problems, part 1 : formulation. *Engineering Analysis with Boundary Elements*, volume 21, numéro 1, p. 53–63.
- [221] Wai-Poi, N., Haverkamp, R. G., Kubler, S., Muller-Steinhagen, H. et Welch, B. J. (1994). Thermal effects associated with alumina feeding in aluminium reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 219–225.
- [222] Wallace, R. J., Taylor, M. P., Chen, J. J. J. et Farid, M. M. (2007). Efficient operation of compressed air jets for sidewall cooling. Dans *Light Metals*. TMS, p. 445–450.
- [223] Wang, X. F., Liang, H. S., Li, Q. et Deng, Y. L. (2000). Tracking of a moving interface during a 2D melting or solidification process from measurements on the solid part only. *Proceedings of the 3rd World Congress on Intelligent Control and Automation*, volume 3, p. 2240–2243.
- [224] Wang, X. F., Rosset-Louërat, M. M. et Bénard, C. (1992). Identification of a moving interface from solid phase boundary measurements. Dans *Second International Conference on Advanced Computational Methods in Heat Transfer*. WIT Press, UK, p. 433–446.
- [225] Wang, Y., Amiri, A. et Vafai, K. (1999). An experimental investigation of the melting process in a rectangular enclosure. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 42, numéro 19, p. 3659–3672.
- [226] Wang, Y.-C., Li, D.-Y., Peng, Y.-H. et Zhu, L.-G. (2007). Computational modeling and control system of continuous casting process. *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, volume 33, numéro 1-2, p. 1–6.

- [227] Wei, C. C. (1996). *Modelling of bath/ledge heat transfer in Hall-Héroult cells*. Thèse de doctorat, The University of Auckland, Auckland, New Zealand, 304 p.
- [228] Wei, C. C., Chen, J. J. J., Welch, B. J. et Voller, V. R. (1997). Modelling of dynamic ledge heat transfer. Dans *Light Metals*. TMS, p. 309–316.
- [229] Welch, B. J. et Alzaroni, A. (2010). Combining industrial engineering with fundamentals to improve operating and control practices for cells with increased operating amperage. Dans *Part VI - Aluminium Reduction Technology*. The Second International Congress Non-Ferrous Metals, p. 307–315.
- [230] Welch, B. J. (1998). The impact of changes in cell heat balance and operations on the electrolyte composition. Dans *Proceedings of the 6th Australian Aluminum Smelting Workshop*. p. 191–204.
- [231] Welch, B. J. (1999). Aluminum production paths in the new millennium. *JOM*, volume 51, numéro 5, p. 24–28.
- [232] Wikipedia Foundation, Inc. (1 octobre 2012). *Wikipédia : L'encyclopédie libre*. http://fr.wikipedia.org/wiki/Wikip%C3%A9dia:Accueil_principal (page consultée le 28 février 2013).
- [233] Worster, M. G. (1991). Natural convection in a mushy layer. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 224, p. 335–359.
- [234] Wrobel, L. C. (2002). *The Boundary element method : applications in thermo-fluids and acoustics*, 1^{re} édition. Wiley, Hoboken, USA, 468 p.
- [235] Xifeng, C., Hongliang, Z., Zhong, Z., Jie, L., Yanqing, L., Yujie, X., Hehui, Z. et Xiajun, L. (2010). 3D freeze shape study of the aluminum electrolysis cells using finite element method. Dans *Light Metals*. TMS, p. 447–452.
- [236] Xifeng, C., Yiwen, Z. et Jianhong, Y. (2014). An improved finite element model for thermal balance analysis of aluminum electrolysis cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 661–666.
- [237] Yang, X., Pergüleyüz, M. O. et Bouchard, M. (2000). Modelling of solidification of Al alloys in a laboratory scale DC-simulator. Dans *Light Metals*. TMS, p. 591–596.
- [238] Yang, Y., Yao, S. et Yi, X. (2014). Analysis of the MHD instabilities in reduction cells with Lyapunov method. Dans *Light Metals*. TMS, p. 703–708.
- [239] Yasuda, H., Ohnaka, I., Kawasaki, K., Sugiyama, A., Ohmichi, T., Iwane, J. et Umetani, K. (2004). Direct observation of stray crystal formation in unidirectional solidification of Sn-Bi alloy by X-ray imaging. *Journal of Crystal Growth*, volume 262, numéro 1-4, p. 645–652.
- [240] Yin, H. et Koster, J. N. (1999). *In situ* observation of concentrational stratification and solid-liquid interface morphology during Ga-5 % in alloy melt solidification. *Journal of Crystal Growth*, volume 205, numéro 4, p. 590–606.

- [241] Yinfu, T. et Hang, W. (2011). Study of ACD model and energy consumption in aluminum reduction cells. Dans *Light Metals*. TMS, p. 567–568.
- [242] Zarouni, A., Mishra, L., Bastaki, M., A. Al Jasmi, Arkhipov, A. et Potocnik, V. (2013). Mathematical model validation of aluminium electrolysis cells at Dubal. Dans *Light Metals*. TMS, p. 597–602.
- [243] Zhuxian, Q., Jingjiang, L., Xiaoli, C., Grjotheim, K., Kvande, H. et Øye, H. A. (1994). Continuous bath temperature measurements in Al feed electrolysis cells. *JOM*, volume 46, numéro 8, p. 28–30.
- [244] Zivkovic, B. et Fujii, I. (2001). An analysis of isothermal phase change of phase change material within rectangular and cylindrical containers. *Solar Energy*, volume 70, numéro 1, p. 51–61.

