



Cristallisation du silicium photovoltaïque sous induction électromagnétique : étude d'une vanne de rétention et de la ségrégation sous brassage

Fatoumata Bintou Santara

► To cite this version:

Fatoumata Bintou Santara. Cristallisation du silicium photovoltaïque sous induction électromagnétique : étude d'une vanne de rétention et de la ségrégation sous brassage. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2010. Français. NNT: . tel-00526496v2

HAL Id: tel-00526496

<https://theses.hal.science/tel-00526496v2>

Submitted on 28 Jan 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**UNIVERSITE DE GRENOBLE
INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

N° attribué par la bibliothèque

|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|

THESE

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'Université de Grenoble
délivré par l'Institut polytechnique de Grenoble**

Spécialité : « *Mécanique des Fluides, Procédés, Energétique* »

préparée au laboratoire Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés

dans le cadre de l'**Ecole Doctorale** « *Ingénierie-Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés,
Production* »

présentée et soutenue publiquement

par

Fatoumata Bintou SANTARA

le 6 Juillet 2010

TITRE

***Cristallisation du silicium photovoltaïque sous induction électromagnétique : étude d'une vanne de
rétention et de la ségrégation sous brassage***

**DIRECTEUR DE THESE
*Pr. Yves Delannoy***

JURY

M. BULTEL Yann	, Président
M. COMBEAU Hervé	, Rapporteur
Mme. PERICHAUD Isabelle	, Rapporteur
M. DELANNOY Yves	, Directeur de thèse
M. EINHAUS Roland	, Examineur

*A mes parents, mes sœurs
et mon petit frère*

Remerciements

Mes remerciements s'adressent tout d'abord à mon directeur de thèse, Yves Delannoy, qui m'a encadré toutes ces années dans la bonne humeur, avec patience et disponibilité. Merci Yves !

Je remercie Mr Hervé Combeau et Mme Isabelle Périchaud qui ont accepté d'être les rapporteurs de mon jury de thèse, ainsi que Mr Yann Bultel, président du jury et enfin Mr Roland Einhaus qui a bien voulu examiner ce travail.

Les travaux de cette thèse ont été réalisés en partenariat avec les entreprises Apollon Solar et Cyberstar, et aussi l'Institut Carnot Energies du futur. Je remercie Mr François Lissalde ainsi que les autres interlocuteurs.

Un grand merci au gouvernement du Mali qui m'a accordé une bourse d'étude à travers le « Programme 300 Jeunes » ainsi qu'à toutes les bonnes volontés qui œuvrent pour la réussite de cette initiative.

Je remercie également mon collègue et ami Antoine Autruffe avec qui j'ai travaillé pendant un an et demi et qui m'a beaucoup aidé sur les aspects techniques et les expérimentations.

Je n'oublie pas l'ensemble du personnel d'EPM-Madylam : permanents, doctorants et post docs, pour l'environnement convivial au sein duquel je me trouvais parmi eux et aussi pour les échanges constructives que j'ai eu avec la plupart d'entre eux sur différents sujets scientifiques. J'ai beaucoup de gratitude envers Christian Garnier et toute l'équipe technique, pour l'aide qu'ils m'ont apporté et également envers Pascale Esteoule pour l'aide administrative et Olga Budenkova pour avoir souvent relu mes rédactions en anglais.

Je remercie mes parents, Mamadou et Hawa pour leur amour inconditionnel et leur soutien permanent malgré la distance. J'ai la chance de pouvoir compter sur l'affection et le soutien infaillible de ma famille et de mes amis, merci pour votre présence à mes côtés.

Table des matières

Remerciements	5
Introduction générale	11
Chapitre 1 Du silicium pour le photovoltaïque	13
1.1 Contexte de l'étude	13
1.1.1 Introduction.....	13
1.1.2 L'énergie solaire	15
1.1.3 Cellule, module et système	19
1.2 Purification du silicium métallurgique	21
1.2.1 La purification par voie gazeuse.....	23
1.2.2 La purification en phase liquide	24
1.3 Les technologies de cristallisation de plaque de silicium.....	25
1.3.1 Les cellules en couches minces	25
1.3.2 Les technologies pour silicium massif.....	25
1.4 Les procédés ruban.....	28
1.4.1 Intérêt du ruban.....	28
1.4.2 Les différents procédés rubans	29
1.5 Conclusion.....	34
Chapitre 2 Dispositif expérimental	37
2.1 Conception	37
2.1.1 Le four	38
2.1.2 Les résistors	39
2.1.3 L'inducteur	42
2.1.4 Le creuset.....	43
2.2 Dimensionnement thermique.....	45
2.2.1 Bilan thermique à l'interface	46
2.2.2 Vitesse de croissance et flux à extraire.....	47
2.2.3 Transfert thermique à travers le fond du creuset	48
2.2.4 Conception du système d'extraction thermique	50
2.3 Conclusion.....	52

Chapitre 3	Dimensionnement électromagnétique.....	53
3.1	Le phénomène d'induction, et l'effet de peau électromagnétique.....	53
3.1.1	Histoire	53
3.1.2	Application	54
3.2	Quantification des effets du champ électromagnétique.....	55
3.2.1	Répulsion et brassage	55
3.2.2	Puissance Joule induite	57
3.3	Modélisation des calculs en électromagnétisme.....	58
3.3.1	Les équations de Maxwell	58
3.3.2	Résolution par Comsol et Fluent (module d'induction)	59
3.4	Conditions de modélisation.....	60
3.4.1	Maillage	60
3.4.2	Conditions aux limites	61
3.5	Résultats de dimensionnement.....	62
3.5.1	Chauffage induit	62
3.5.2	Vitesses de brassage	66
3.5.3	Dimensionnement de la fente	67
3.6	Conclusion.....	70
Chapitre 4	Rétention électromagnétique	71
4.1	Etude de faisabilité à l'étain.....	71
4.1.1	Choix de l'étain.....	71
4.1.2	Equivalence charge d'étain – charge de silicium	72
4.1.3	Conditions expérimentales choisies.....	73
4.1.4	Résultats.....	74
4.1.5	Discussion.....	75
4.1.6	Introduction de la configuration carrée.....	76
4.2	Optimisation par modélisation numérique	77
4.2.1	Calculs tridimensionnels.....	77
4.2.2	Configurations étudiées	79
4.2.3	Résultats de modélisation	81
4.3	Validation expérimentale.....	91
4.3.1	Fente de 5cm :.....	91
4.3.2	Fente de 10cm:.....	93
4.4	Conclusion.....	94
Chapitre 5	Brassage électromagnétique et ségrégation des impuretés	95
5.1	Introduction	95
5.2	Expériences	96

5.2.1	Contrôle thermique	96
5.2.2	Cristallisation du silicium sous rétention et brassage électromagnétique	98
5.2.3	Analyse des échantillons.....	109
5.2.4	Conclusion	111
5.3	Brassage électromagnétique.....	112
5.3.1	Turbulence	112
5.3.2	Sens et intensité du brassage axisymétrique	114
5.3.3	Brassage 3D dans le silicium liquide	119
5.4	Modélisation de la ségrégation des impuretés	122
5.4.1	Phénoménologie	122
5.4.2	Calcul du coefficient de transfert de masse	126
5.4.3	Résultats des trois modèles	130
5.4.4	Confrontation des modèles	136
5.4.5	Conclusion	137
Conclusion et perspectives		139
Bibliographie		143
Annexes.....		153
Annexe A. Etude bibliographique sur le mouillage du silicium sur différents substrats et méthode de sustentation par film de gaz ou lévitation aérodynamique.....		155
Annexe B. Estimation du couplage électromagnétique par mesures au décrétement logarithmique		163
Annexe C. Liste complète des tests et expériences.....		167
Annexe D. Etude comparative Module d'induction de Fluent/Comsol		175
Annexe E. Brassage électromagnétique pour différentes fréquences d'induction		181
Annexe F. Puissance induite dans le silicium et le graphite pour les configurations A, B, C, D, et E.....		185
Annexe G. Vitesse moyenne de brassage		187
Annexe H. Brassage au sein du silicium : cas où l'inducteur est décalé par rapport au silicium.....		191

Introduction générale

L'énergie répandue quotidiennement sur terre par le soleil est largement supérieure à nos besoins énergétiques annuels. Ceci nous montre l'importance des réserves énergétiques encore inexploitées de nos jours, malgré l'essor soutenu des énergies solaires et renouvelables. Les procédés de cristallisation de silicium prennent une place importante dans le marché du solaire photovoltaïque, et subviennent aux besoins en approvisionnement grâce à la mise en place de technologies tenant compte des aspects financiers de l'élaboration de silicium de suffisamment bonne qualité, ainsi que des connaissances scientifiques nécessaires à la bonne compréhension de phénomènes spécifiques et leur utilisation à bon escient.

Objectifs de la thèse

Cette thèse se situe dans le cadre du projet ASTERICS, une collaboration entre le groupe EPM du laboratoire SIMaP et des industriels APOLLON SOLAR et CYBERSTAR pour l'aspect tirage de ruban et du projet GENSI de l'Institut Carnot ENERGIES DU FUTUR pour l'étude de la ségrégation sous brassage électromagnétique.

Les objectifs visés par ces travaux sont :

- **La mise au point de la rétention électromagnétique**

Le but est dans un premier temps de pouvoir cristalliser une fine couche de silicium et ensuite d'évacuer le liquide restant dans notre dispositif expérimental de laboratoire, et à terme de cristalliser et tirer le ruban de silicium par la fente sans que le liquide ne coule, dans le dispositif pilote à installer chez l'industriel Cyberstar grâce à un système de vanne électromagnétique ;

- **Le contrôle thermique de la cristallisation**

Mise au point de la régulation thermique par les deux systèmes de chauffages résistifs permettant la fusion et la cristallisation du silicium, en présence et indépendamment du système électromagnétique ;

- **L'étude de la ségrégation**

Il s'agit de créer un fort brassage au sein du silicium liquide grâce à des forces électromagnétiques créées par une bobine, dans le but de favoriser la ségrégation des impuretés lors de la solidification du silicium. Les lingots et plaques de silicium cristallisés dans ces conditions sont ensuite analysés afin d'évaluer la pureté du solide par comparaison avec la concentration en impuretés de la charge de silicium métallurgique utilisée. Les impuretés considérées sont le fer, représentatif de toutes les impuretés qui ségrègent facilement (c'est-à-dire la plupart des éléments métalliques) ; et le phosphore, qui ségrège très difficilement et reste l'une des impuretés les plus difficiles à extraire du silicium métallurgique.

Le système électromagnétique utilisé pour la rétention électromagnétique doit être capable en même temps de créer un brassage suffisant pour la ségrégation, tout en respectant la thermique du four de cristallisation.

Organisation du manuscrit

Les travaux réalisés durant la thèse sont présentés en 5 chapitres :

- **Le Chapitre 1**, où nous présentons le contexte dans lequel se situent les travaux que nous avons mené, ainsi que les différentes technologies de cristallisation de silicium
- **Le Chapitre 2** présente le dispositif expérimental de laboratoire du procédé sans tirage avec les différents éléments constitutifs, ainsi que les calculs de dimensionnement thermique nécessaires aux expérimentations ;
- **Le Chapitre 3** présente le travail de dimensionnement électromagnétique réalisé à travers la modélisation numérique du couplage entre l'induction et les deux charges en présence, à savoir le silicium et le graphite;
- **Au Chapitre 4** nous exposons l'étude et la validation du système de rétention électromagnétique avec différentes configurations : axisymétrique et carrée, et différentes géométries de l'inducteur et du système de chauffage résistif ;
- **Le Chapitre 5** expose les études sur la ségrégation des impuretés durant la cristallisation sous brassage électromagnétique. Il présente les tests de cristallisation de fine couche et de lingot de silicium ; ainsi que l'analyse chimique des impuretés avant et après cristallisation. Il comprend également la modélisation numérique de la ségrégation en configurations axisymétrique et 3D.

Nous terminerons ce mémoire avec les **conclusions** que nous tirons des travaux réalisés et les **perspectives** liées au démarrage du procédé de cristallisation de rubans pour le photovoltaïque. Quelques annexes, citées dans le mémoire sont présentées en fin de manuscrit pour le complément d'informations.

Chapitre 1 Du silicium pour le photovoltaïque

1.1 Contexte de l'étude

1.1.1 Introduction

La forte croissance économique mondiale de ces dernières années s'accompagne de l'augmentation de la consommation d'énergie primaire avec une croissance de plus de 102% sur la dernière décennie (Figure 1–1). L'émergence de nouvelles puissances économiques telles que la Chine et l'Inde compte pour beaucoup dans cette croissance. En effet, d'après les statistiques du département de l'énergie [Department Of Energy, 2008], la consommation de la Chine a augmenté de 107% et celle de l'Inde de 105% entre 1996 et 2006.

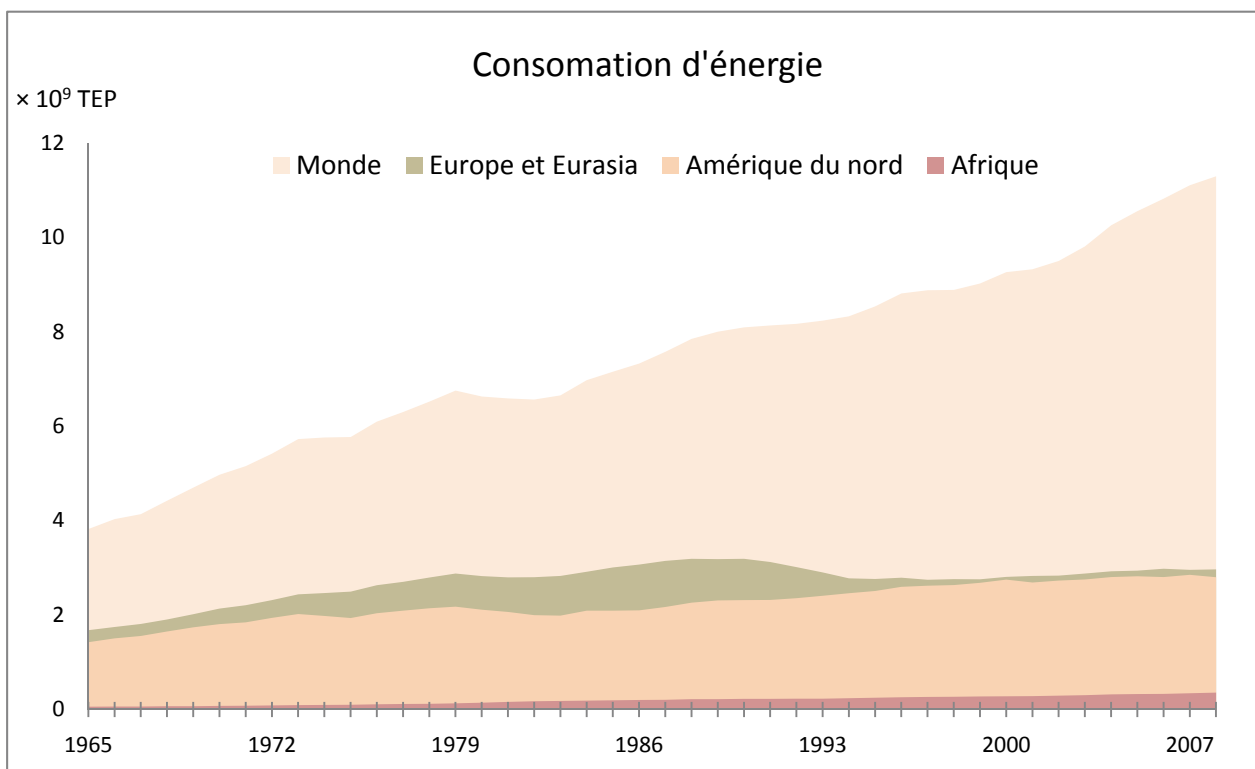


Figure 1–1 : Consommation mondiale d'énergie primaire exprimée TEP¹ [BP, 2009].

Cette croissance nous amène à considérer le problème de l'approvisionnement énergétique des années à venir sachant que les sources d'énergies fossiles exploitées depuis des siècles finiront par s'épuiser [Bobin *et al.*, 2001]. D'autre part les problèmes environnementaux (pollution, effet de serre, réchauffement climatique, ...) résultant de la combustion des hydrocarbures [Chiaro *et al.*, 2008] incitent à privilégier les énergies propres.

Partant de ces considérations, il est nécessaire aujourd'hui de rendre les sources d'énergies renouvelables (solaire, éolienne, ...) plus compétitives parmi les autres sources d'énergie primaire (pétrole, gaz, ...). C'est ainsi que dans le but de préserver l'avenir économique et environnemental de la planète d'une part et d'autre part de subvenir aux besoins énergétiques à l'échelle mondiale, les énergies renouvelables font l'objet d'importantes recherches depuis au moins trois décennies.

¹ Tonne d'Equivalent Pétrole : 1tep=10Gcal, unité correspondant au pouvoir calorifique d'une tonne de pétrole.

D'après les rapports de l'Observatoire de l'Energie [2006] et du Service de l'Observation et des Statistiques [Trégouët, 2009], en France métropolitaine, la part de marché des énergies renouvelables dans la consommation totale d'énergies primaires (électricité, pétrole, gaz, charbon et énergies renouvelables) est passé de 16,1 à 19 Mtep entre 2005 et 2008.

Malgré une belle croissance, la part de marché de l'énergie solaire (thermique et photovoltaïque) est encore marginale comparée à celle des autres énergies renouvelables (Figure 1–2) : 0,05 Mtep en 2005.

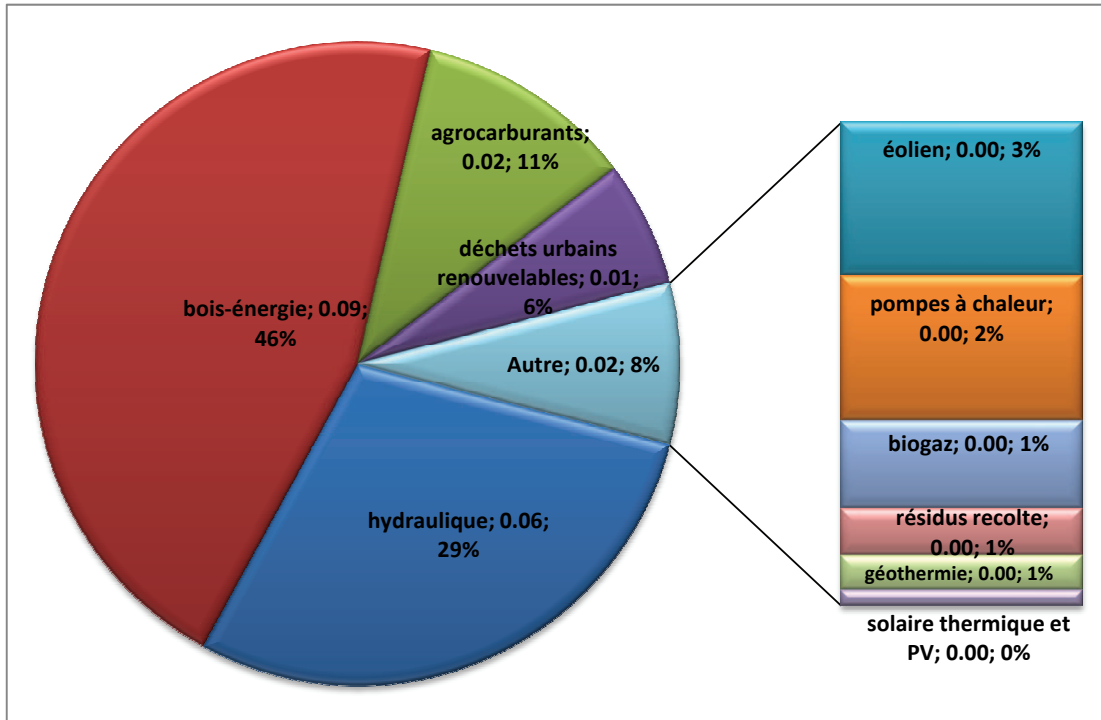


Figure 1–2 : Production d'énergie renouvelable (Mtep) en France (2008) [Trégouët, 2009].

Cette marginalisation s'explique par le fait que l'énergie solaire est produite uniquement quand l'ensoleillement est suffisant créant une dépendance envers la météo et les saisons. De plus, son coût à la production est plus élevé que celui des énergies fossiles. Cependant ces dernières années, les politiques gouvernementales en faveur des énergies propres [Claverie *et al.*, 2008] [Loyen, 2008a], [Zahedi, 2006] ainsi que l'inflation du prix du pétrole ont conduit à une forte croissance du marché du solaire.

La première cellule photovoltaïque vit le jour en 1954 [Chapin *et al.*, 1954]. C'était à l'époque où les Américains s'apprêtaient à conquérir l'espace et il leur fallait trouver un moyen d'alimenter les satellites de façon autonome. Ce nouveau marché du photovoltaïque a commencé à se construire de façon modérée jusqu'au choc pétrolier de 1973 [Luque, 2003], [Green, 2005], qui incita plusieurs pays à s'intéresser aux énergies renouvelables et au photovoltaïque en particulier pour application terrestre.

Ainsi, le développement de l'industrie du photovoltaïque a vraiment commencé au début des années 80 et a connu une croissance assez rapide dans les années 90 [Jester, 2002], croissance qui s'est maintenue depuis. En effet, selon Hirshman *et al.* [2007], la production mondiale de cellules solaires est passée de 0,2 GW en 2000 à 2,53 GW en 2006. Partant donc de l'évolution de ces dernières années, des statistiques plus ambitieuses ([Hirshman *et al.* 2007], [Flynn *et al.* 2006], [Juquois et Chabot, 2007], l'EPIA [2010] et [Loyen, 2008b]) prédisent un futur assez prometteur

pour l'énergie solaire photovoltaïque avec en moyenne une production de plus de 7GW en 2010, la production mondiale de cellule devant augmenter de 50% par an jusqu'à 2010.

La crise financière de 2008 a affecté l'économie mondiale. Il sort cependant de l'enquête menée par le Conseil Français de l'Energie [Moncomble, 2009] que le secteur des énergies renouvelables semble être a priori préservé par rapport aux autres secteurs. Les enjeux énergétiques restent donc inchangés et le secteur des énergies renouvelables pourrait profiter de l'opportunité offerte par cette crise.

1.1.2 L'énergie solaire

Le soleil est la source d'énergie la plus abondante sur. Pour exploiter l'énergie solaire, on utilise des capteurs solaires, qui sont de deux types :

- les capteurs solaires thermiques : permettant soit la production de chaleur à partir de l'énergie solaire, c'est l'énergie solaire thermique ; soit une conversion indirecte de l'énergie solaire en électricité, on parle alors d'énergie solaire thermodynamique ;
- les capteurs (panneaux) solaires photovoltaïques : permettant une conversion directe de l'énergie solaire en électricité, c'est l'énergie solaire photovoltaïque.

a. L'énergie solaire thermique

La production d'énergie solaire thermique est basée sur l'utilisation du rayonnement solaire pour chauffer un fluide caloporteur grâce à un système de capteurs solaires (Figure 1–3) ; on obtient ainsi de l'énergie thermique [Wautelet, 2001] utilisée directement par le consommateur : chauffe-eaux sanitaires, chauffage des maisons, ...).

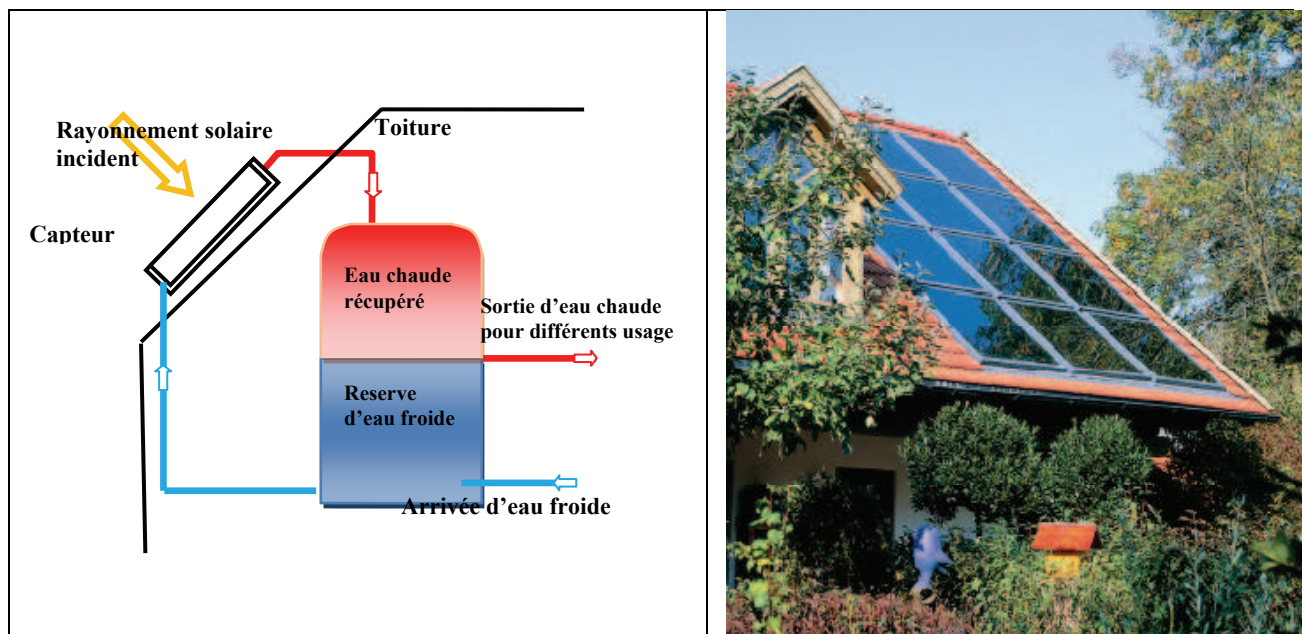


Figure 1–3 : Schéma de principe de l'utilisation de l'énergie solaire thermique (gauche) et photo d'un capteur solaires sur le toit d'une habitation (droite) [Rabensteiner, 2007].

L'énergie solaire dite thermodynamique fonctionne sur le même principe. Cependant, les capteurs utilisés sont de forme parabolique permettant de concentrer les rayons solaires (Figure 1–

4). L'énergie thermique obtenue grâce au fluide caloporteur chauffé à très haute température (jusqu'à 3000°C) est alors transformée en énergie mécanique et électrique par le moyen de turbines et d'un cycle thermodynamique [Bobin *et al.*, 2005].

Ces types de capteurs sont utilisés dans les centrales solaires, dont les plus importants se trouvent en Californie aux états Unis, avec une puissance installée totale de 354MW (source TOTAL [2009]).



Figure 1–4 : Capteur solaire a concentration : four solaire d'Odeillo, puissance thermique 1MW , source PROMES [2010].

D'un point de vue économique, le parc solaire thermique suit une belle évolution avec une croissance 47% dans l'UE et la Suisse en 2006 d'après l'ESTIF (European Solar Thermal Industry Federation) [Rabensteiner, 2007], soit $2,1\text{GW}$ thermiques contre $0,25\text{GW}$ en 1990.

b. L'énergie solaire photovoltaïque

Depuis les années 90, le marché du photovoltaïque s'est développé de façon remarquable avec une croissance exponentielle (Figure 1–5). La puissance cumulée des installations photovoltaïques à l'échelle mondiale est passée de $1,4\text{GWc}^2$ en 2000 à $9,2\text{GWc}$ en 2007 [Loyen, 2008b], avec une part assez importante des installations raccordées au réseau électrique, soit 13GW de puissance installée en 2008 dans le monde [El-Ashry, 2009], et une croissance de plus de 70% de la capacité existante l'année précédente.

Les cellules solaires permettant une conversion directe de l'énergie solaire en électricité, elles sont utilisées à différentes échelles, des petits composants comme les calculettes aux grandes centrales électriques.

² 1Wc (watt crête) est la puissance maximale délivrée par une installation photovoltaïque à 25°C , pour un ensoleillement optimal de $1000\text{W}/\text{m}^2$.

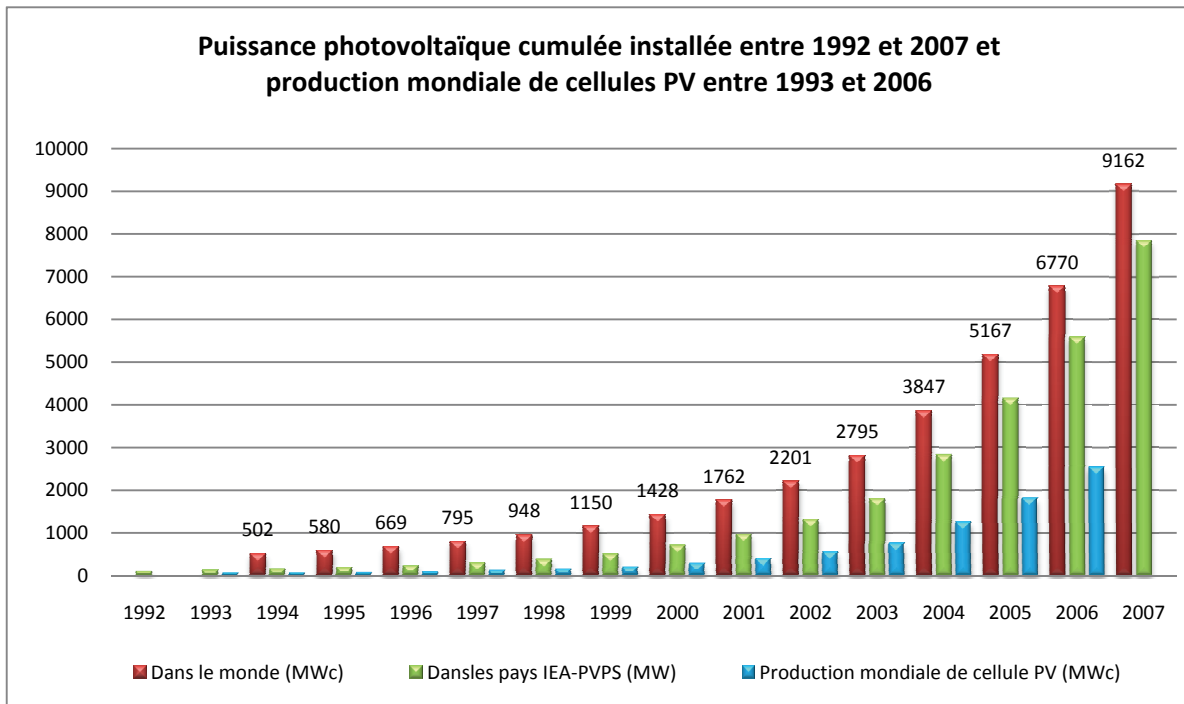


Figure 1–5 : Evolution de la puissance PV installée dans les pays de l'IEA-PVPS [Nowak, 2008] et dans le monde [Loyen, 2008b] et de la production annuelle mondiale de cellules photovoltaïques [EurObserv'ER49, 2007].

La production de l'énergie solaire photovoltaïque nécessite l'utilisation de cellules solaires. Une cellule photovoltaïque est une photopile qui convertit l'énergie du rayonnement électromagnétique incident en électricité. C'est le principe de l'effet photovoltaïque, découvert par Antoine Becquerel en 1839 [Becquerel, 1839].

Actuellement, le matériau le plus utilisé pour l'élaboration de ces cellules est le silicium (Si). C'est un matériau semi-conducteur présent en abondance sur terre (25%), sous différentes formes. Les autres matériaux semi-conducteurs comme le CIGS (pour Cuivre-Indium-Gallium-Sélénium), AsGa (Arséniure de Gallium), CdTE (Tellurure de cadmium) présentent un coût de fabrication plus élevé et/ou des rendements plus faibles avec dans certains cas des problèmes de toxicité.

Les différentes technologies d'élaboration de silicium ont beaucoup évolué depuis les années 70. Cette avancée est visible sur la Figure 1–6, montrant les records d'efficacité de cellules obtenus en laboratoire entre 1975 et 2005 [Surek, 2005], pour différentes technologies : Concentrateurs à multi-jonctions, silicium massif, couches minces et les technologies émergentes de type cellules organiques. Les données présentées sur ce graphique sont intéressantes car elles résument les rendements de toutes les filières de production. Cependant, elles sont à prendre avec précaution car ce sont des valeurs obtenues en laboratoire, généralement bien au dessus de celles qu'on peut trouver sur le marché. A titre comparatif, l'efficacité de la cellule à couches minces la plus performante à ce jour sur le marché européen, CIGS, était entre 10-11% en 2007 [Green, 2009], [Green, 2007], [Siemer, 2007], alors qu'on annonçait déjà près de 16% en laboratoire en 2005 [Surek, 2005].

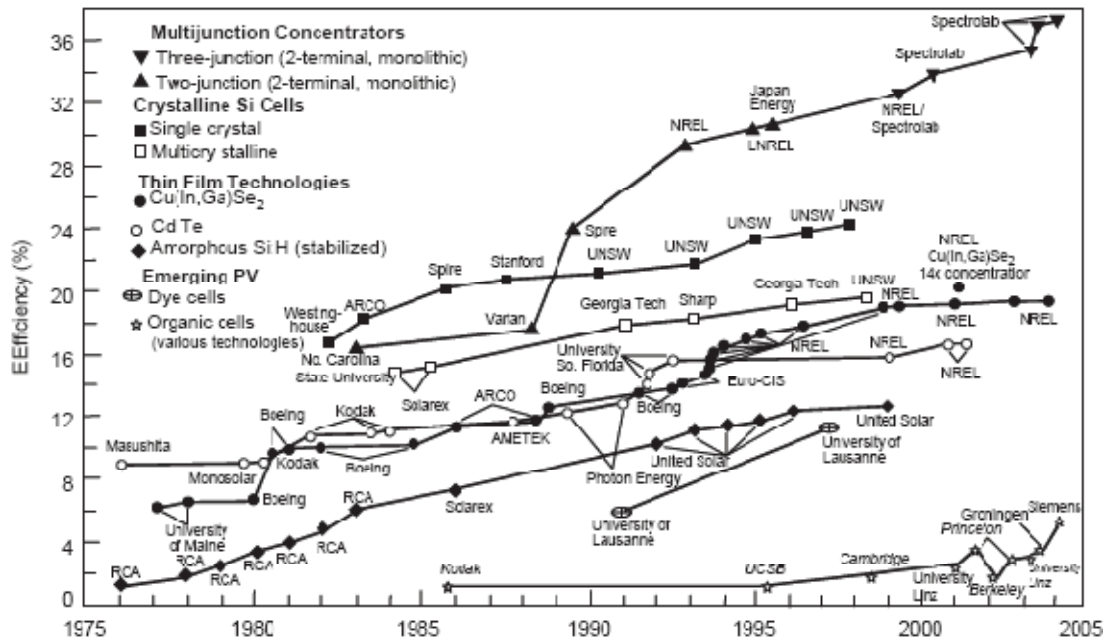


Figure 1-6 : Différents matériaux pour cellule solaire avec leur efficacité [Surek, 2005].

L'objectif du marché industriel étant plus basé sur le coût du *kWh* produit que sur le rendement des cellules, ce sont les filières de silicium massif (monocristallin et multi-cristallin) qui tiennent une bonne majorité de part de marche : plus de 90% des cellules produites (Figure 1-7), malgré une efficacité inférieure à celle des cellules à multi jonctions par exemple (en 1995, l'efficacité d'une cellule à base de silicium cristallin était autour de 20% tandis que celle d'une cellule multi-jonctions était autour de 28% au même moment en laboratoire).

La filière silicium massif est donc la plus intéressante à ce jour et elle devrait la rester encore longtemps [Maycock, 2005] malgré la croissance de la filière couche mince qui devrait passer à près de 25% de part de marché en 2010 (Figure 1-8) et devenir compétitive d'ici une vingtaine d'année [Bagnall *et* Boreland, 2008].

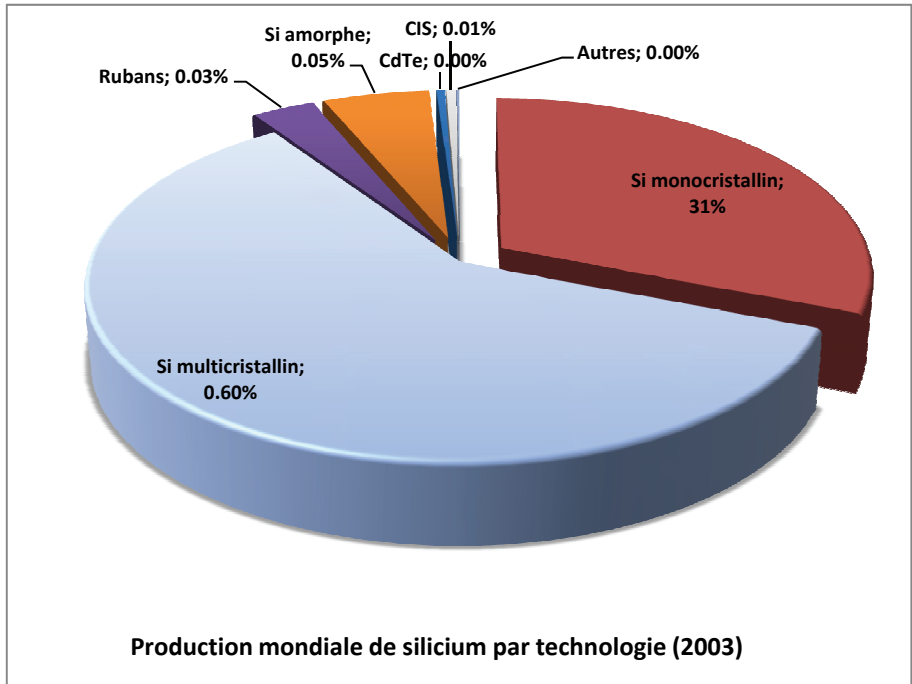


Figure 1-7 : Répartition des différentes technologies Si sur le marché en 2003 [Surek, 2005].

La Figure 1–9 présente les prix et efficacités de cellule selon la filière de production. On remarque que les plus chers correspondent aux plus performants : les cellules à base de silicium monocristallin. Celles à base de silicium multi-cristallin se situent dans un bon rapport qualité/prix. Nous reviendrons sur le coût des différentes technologies dans le paragraphe 1.3.

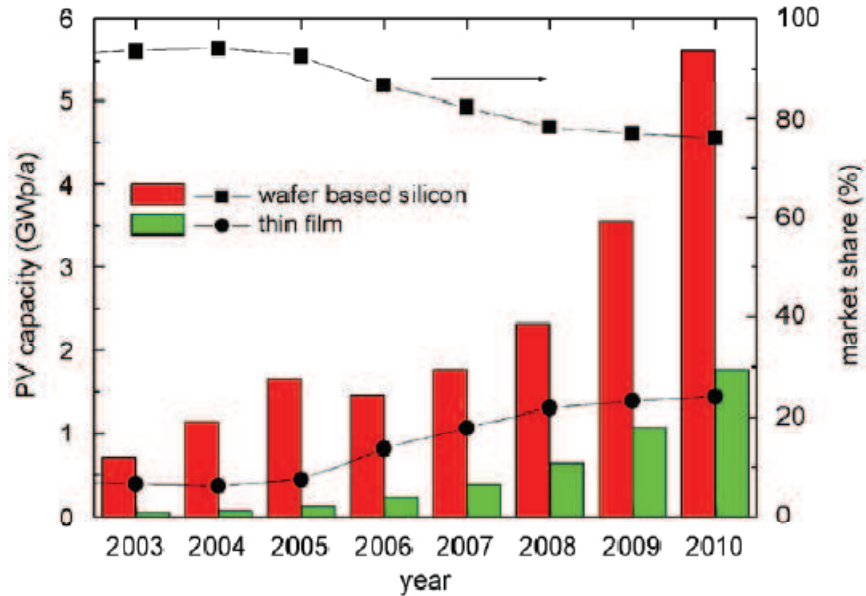


Figure 1–8 : Estimation [Sark *et al.*, 2007] de la capacité de production et part de marché des filières silicium massif et couches minces (silicium amorphe, CdTe et CIGS).

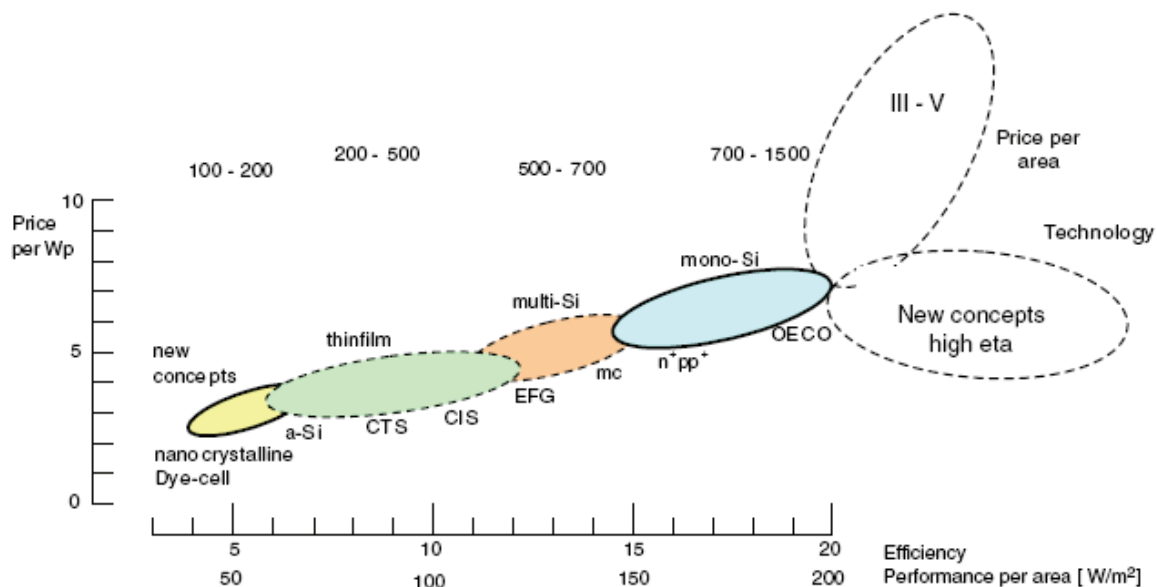


Figure 1–9 : Efficacité, prix et puissance par filière de production de cellule solaire [Hoffmann, 2006a].

1.1.3 Cellule, module et système

Nous allons décrire brièvement les différentes étapes de fabrication des capteurs photovoltaïques, du minéral (matière première) au système utilisé par le consommateur (produit final).

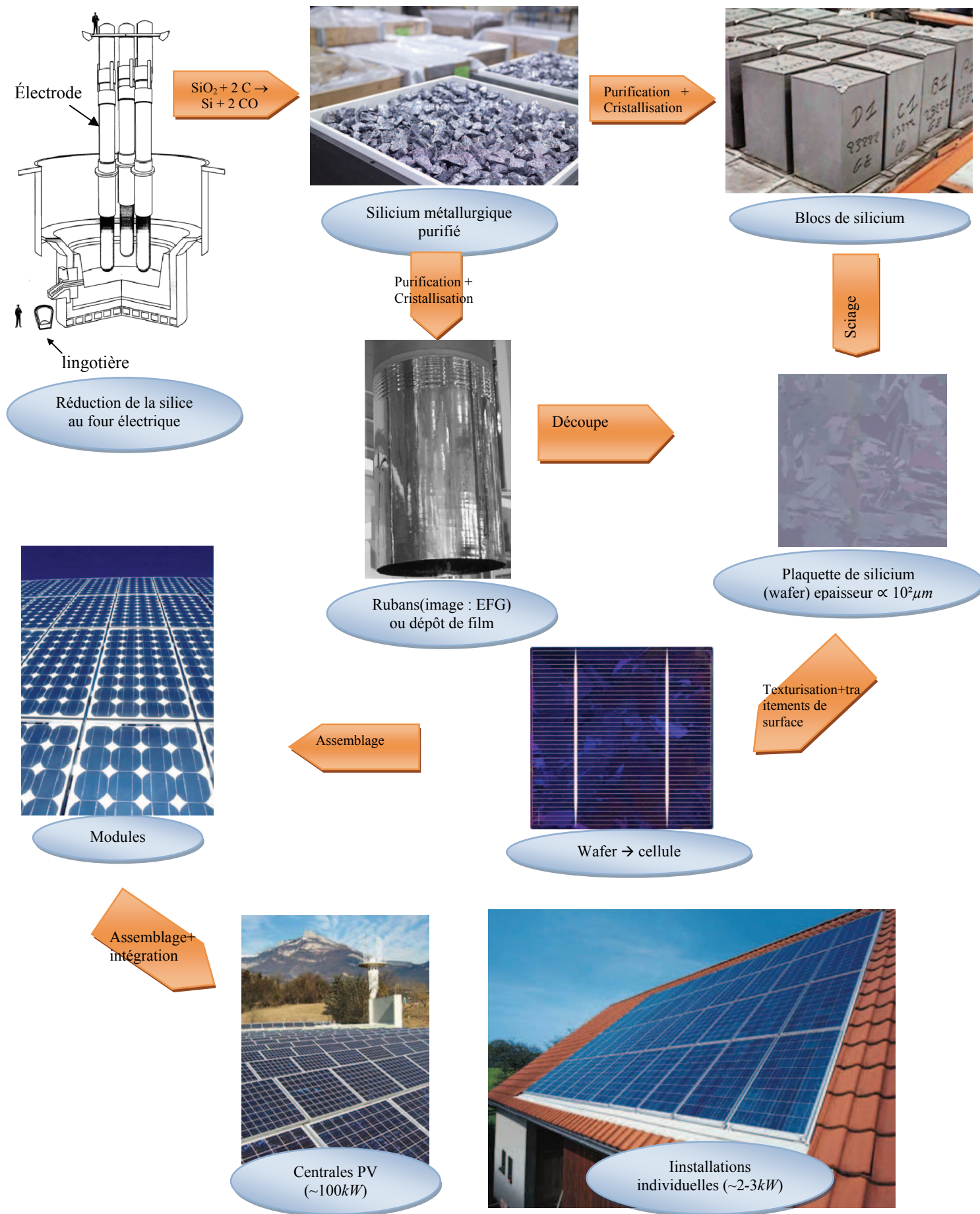


Figure 1–10 : Différentes étapes d'élaboration de la cellule, du silicium brut au système solaire photovoltaïque.

Le processus d'élaboration du minerai au système photovoltaïque est décrit sur la Figure 1–10 :

- Le silicium existe dans la nature sous formes d'oxyde SiO_2 (silice). Afin d'en extraire l'élément silicium, on réduit la silice brute avec du carbone dans un four à arc électrique. Le produit obtenu est appelé 'silicium métallurgique', pur à 98%.
- Le silicium métallurgique est d'abord purifié, puis fondu et recristallisé selon divers procédés pour obtenir des plaquettes de silicium ou wafers de faible épaisseur ($\sim 300\mu\text{m}$) et de dimensions variant entre 101×101 et $150\times 150\text{mm}$. La cellule est obtenue après le processus de dopage, texturisation, revêtement et impression de bandes collecteurs du wafer.
- Plusieurs cellules sont alors connectées entre elles dans un circuit pour constituer un panneau solaire encore appelé module photovoltaïque. Les modules font en général entre 1 et $1,5\text{m}$ de long et $0,46$ et $0,66\text{m}$ de large [Photowatt International, 2007].
- Les modules sont à leur tour assemblés pour former un système capable de fournir une puissance électrique suffisante pour le fonctionnement des applications visées. Le système de panneaux solaires délivre du courant continu qu'on peut soit utiliser sur place (off-grid) soit convertir en courant alternatif grâce à un onduleur afin de l'injecter dans le réseau de distribution d'électricité (grid-connected).

Cette thèse prend place dans l'étape « cristallisation – purification » que nous allons détailler dans les paragraphes qui suivent.

1.2 Purification du silicium métallurgique

Les chutes de l'industrie électronique suffisaient à l'approvisionnement du marché du photovoltaïque jusqu'à son explosion au début du 21^e siècle, ce qui a conduit à une augmentation significative du prix du Silicium brut. Nous allons présenter dans cette partie les principaux procédés de purification de silicium, utilisés tant dans l'électronique que dans le photovoltaïque avec leurs avantages et inconvénients.

La première étape dans l'élaboration du silicium charge est la réduction de la silice dans le four électrique (Figure 1–10), donnant du silicium dit métallurgique, pur à seulement 98-99%. Il contient des impuretés provenant des matériaux et de l'environnement utilisés pour cette réduction [Harada *et al.* 1995] (charbon, quartz, électrodes en graphite, ...). Ce silicium métallurgique ne peut pas être directement utilisé pour la fabrication des cellules solaires. L'utilisation de matériaux et d'un environnement préalablement purifié ou naturellement faibles en impuretés pour l'élaboration du silicium permet d'obtenir de bien meilleurs purités du silicium métallurgique à des prix raisonnables [Amick *et al.*, 1985] [Pizzini, 1982].

Les impuretés contenues dans le silicium sont:

- les impuretés métalliques : dont la concentration est globalement 10^{13} - 10^{16} *atomes/cm³* dans le silicium multi-cristallin (Solar Grade) [Pizzini, 2009], [Istratov *et al.*, 2006], [Istratov *et al.*, 2003].
- les impuretés dopantes : la présence de bore (accepteur) et de phosphore (donneur) en quantités inappropriées réduit le rendement de la cellule. Ils font partie des impuretés les plus difficiles à enlever. D'après Pizzini [2009], une cellule présentant une concentration en bore autour de 10^{18} *atomes/cm³* (20ppma) est inutilisable pour

des applications photovoltaïques. On peut compenser le bore par un dopage en phosphore, d'une concentration seuil de $5 \cdot 10^{16} \text{ atomes/cm}^3$ (d'après les résultats obtenus par [Pizzini et Calligarich, 1984]).

- Le carbone et l'oxygène : dont la concentration dépend des conditions de cristallisation.

Les impuretés présentes dans le silicium diminuent la longueur de diffusion des porteurs, ce qui conduit à des pertes en efficacité de la cellule (car la longueur de diffusion des paires électron-trou, qui doit être idéalement égale à l'épaisseur de la cellule pour éviter la recombinaison des porteurs, dépend fortement de la qualité du silicium utilisé pour sa fabrication [Hopkins et Rohatgi 1986]). [Davis *et al.*, 1980] ont étudié l'effet de différentes impuretés sur la performance des cellules solaires à base de silicium. L'analyse des résultats obtenus à partir de près de 200 lingots de silicium monocristallins dopés en diverses impuretés leur a permis de trouver la relation existant entre l'efficacité d'une cellule et sa concentration en impuretés et de tracer cette évolution (Figure 1-11).

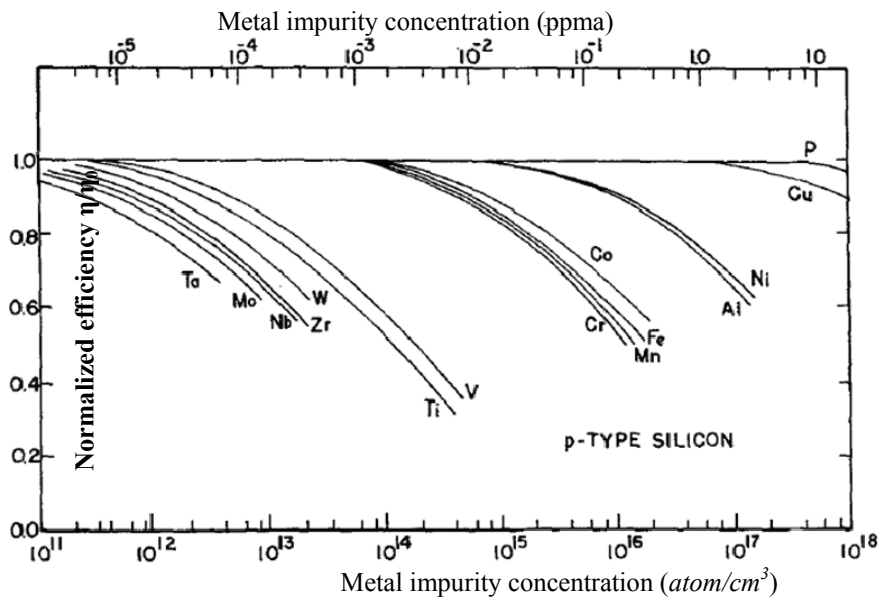


Figure 1-11 : Efficacité de cellules solaires de type p en fonction de la concentration des impuretés [Davis, *et al.*, 1980].

η_0 est l'efficacité d'une cellule test élaborée à partir de silicium monocristallin de qualité électronique.

On peut voir que globalement, plus la concentration en impuretés est grande, plus l'efficacité de la cellule diminue (la même variation est observée pour des cellules de type n, non représentées ici). Ce comportement est également visible sur la Figure 1-12, où on peut voir l'évolution de la longueur de diffusion et de la durée de vie des porteurs dans une cellule à base de silicium monocristallin, en fonction de la concentration en nickel, fer et cuivre. [Istratov *et al.*, 2006], [Istratov *et al.*, 2000], [Sachdeva *et al.*, 2001]. La bande bleue met en évidence la gamme de longueur de diffusion typique des porteurs dans le silicium multi-cristallin.

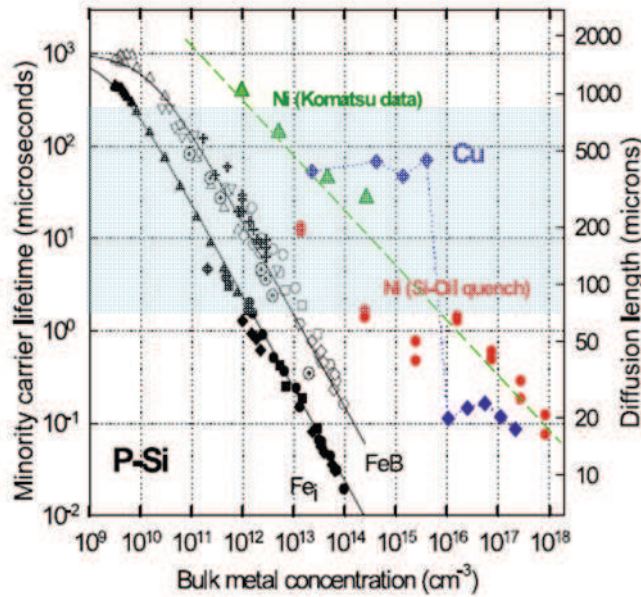


Figure 1-12 : Diminution de la longueur de diffusion et de la durée de vie des porteurs dans du silicium monocristallin [Istratov, et al., 2006].

Les résultats présentés en Figure 1-11 ont été bien améliorés depuis comme on peut le constater sur la Figure 1-13 qui montre la quantité d'impuretés métalliques contenues dans le silicium multicristallin (blocs, rubans et feuilles) commercialisé de nos jours [Pizzini, 2009]. Ces données correspondent globalement aux critères de qualité photovoltaïque (quantité d'impuretés à ne pas dépasser) pour l'élaboration d'une cellule.

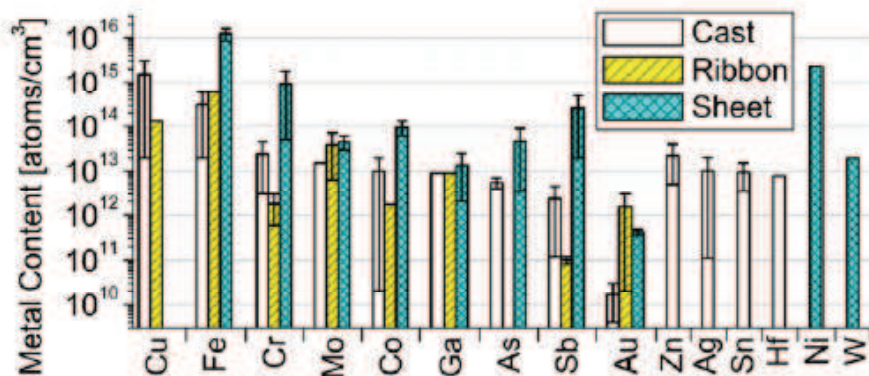


Figure 1-13 : Concentration en impuretés métalliques du silicium multi-cristallin commercialisé actuellement [Pizzini, 2009].

Ces différentes études démontrent donc l'importance des procédés de purification du silicium pour le photovoltaïque dont il existe différentes méthodes [Istratov *et al.*, 2006] que nous classons ici en deux groupes :

1.2.1 La purification par voie gazeuse

Cette purification dite chimique consiste à transformer le silicium en un composé beaucoup plus malléable, en général du trichlorosilane (HSiCl_3), pour la purification. Le trichlorosilane purifié est alors réduit par du dihydrogène permettant d'obtenir du Si pur [Chu *et al.*, 1978]. On

peut répéter cette opération de purification plusieurs fois pour obtenir une meilleure pureté du Si. Le silicium obtenu est pur à 99,99%, contenant moins de 10^{-9} ppm d'impuretés et est en général destiné à l'électronique (EG Silicon). L'inconvénient de ce procédé est son coût : après ce type de purification, le prix du silicium passe de 1–2\$/kg (MG-Si) à 80\$/kg [Ciszek, 1984], [Mauk, 2003] ce qui est trop cher pour l'élaboration de silicium pour le photovoltaïque.

1.2.2 La purification en phase liquide

Ces méthodes sont moins coûteuses et sont généralement utilisées pour purifier le silicium destiné au photovoltaïque. On peut citer :

- **Purification par attaque acide** ; il s'agit de traiter de la poudre de silicium métallurgique avec différents acides (HCl, HF, ...) afin de dissoudre les amas métalliques formés aux joints de grains pendant la réduction au carbone dans le four électrique ;
- **Purification par traitement chimique et purification par plasma réactif** : il s'agit de former des composés volatiles avec des impuretés contenues dans du silicium liquide en le faisant réagir avec des gaz comme le dioxygène, les halogènes, les hydrures, ... [Chu *et al.*, 1978], dans le cas de la purification par traitement chimique, ou avec des gaz comme l'hydrogène, l'oxygène ou l'argon dans le cas de la purification plasma [Alemany *et al.*, 2002] ;
- **Purification par ségrégation** : c'est un phénomène qui survient naturellement lors de la solidification directionnelle d'un matériau contenant des impuretés. Elle s'intègre dans les procédés de solidification en creuset, ou de tirage Czochralski ou encore de zone fondue [Chu *et al.*, 1978] que nous présentons au paragraphe 1.3 ;
- **Purification par laitier**, consistant à mélanger le silicium liquide avec un composé ayant des affinités avec les impuretés (par exemple le calcium et les impuretés fer, titane et phosphore [Morita *et al.*, 2003], ou l'aluminium) afin de former des composés stables, éliminés par filtration ou attaque acide.

Ces procédés de purification permettent d'obtenir du silicium pur à 99,9-99,97% [Istratov *et al.*, 2006]. Elles présentent des inconvénients liés :

- Au fait qu'elles sont parfois sélectives : l'attaque acide ne permet pas d'enlever les impuretés dissoutes en grande quantité entre les grains comme le bore et le phosphore ; la solidification directionnelle élimine surtout les impuretés ayant un faible coefficient de ségrégation, donc les métaux ;
- Au coût : purification par plasma ;
- A des problèmes d'accessibilité : la purification par laitier est efficace quand on a des teneurs élevées en impuretés et est limitée par la lenteur des échanges liquide/liquide.

Nous citerons une dernière méthode que nous n'avons pas classée parmi les précédentes, car il s'agit d'un procédé de purification réalisé directement sur la plaquette de silicium : le « *gettering* », consistant à piéger les impuretés métalliques de manière à les rendre inactives [Ehret *et al.*, 1995], [McHugo *et al.*, 1997].

Les méthodes citées ici ne sont pas exhaustives. D'autres informations sur les procédés de purification de silicium sont disponibles dans la littérature [Pizzini, 2009], [Woditsch *et al.*, 2002] et [Bathey et Cretella, 1982]. Il est généralement nécessaire de combiner plusieurs de ces méthodes de purification et/ou plusieurs étapes pour arriver au produit final (par exemple, nous pouvons citer [Mukashev *et al.*, 2009] qui ont présenté récemment un procédé de purification de silicium combinant diverses méthodes de purification comme l'aluminothermie, le laitier, l'attaque chimique ou la solidification directionnelle, et [Yuge *et al.*, 2001] qui ont combiné entre autres la méthode plasma et la solidification directionnelle) ce qui peut induire des coûts supplémentaires de production.

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à la purification par ségrégation en solidification directionnelle, dont nous avons augmenté l'effet grâce à un système électromagnétique créant un fort brassage au sein du fluide (Chapitre 5). Cette purification permet de passer directement du silicium métallurgique à la plaque de silicium (« *wafer* ») en une seule étape combinant cristallisation et purification.

1.3 Les technologies de cristallisation de plaque de silicium

Il existe de nombreuses technologies de production de silicium. On peut les classer en deux grandes catégories : les technologies pour silicium en couches minces et les technologies pour silicium massif.

1.3.1 Les cellules en couches minces

Dans la filière des couches minces, on peut noter la classe des cellules à base de silicium amorphe (a-Si). Ces cellules sont produites par dépôt en phase vapeur CVD (pour Chemical Vapor Deposition, réduction sous très haute température de chlorosilane purifié en silicium poly-cristallin) et présentent l'intérêt d'avoir un coût de fabrication beaucoup plus faible que le silicium cristallin. Le silicium amorphe peut être déposé sur tout type de substrat : rigide ou flexible avec une vitesse de dépôt de 0.1-0.3nm/s [Surek, 2005]. Son efficacité est plus faible que celle du silicium cristallin.

Les cellules en couches minces existent avec d'autres matériaux comme le CdTe et le CuInSe₂ (CIS). Leur efficacité est encore inférieure à celle des cellules à base de silicium amorphe. De plus le CdTe pose des problèmes de sécurités liés à sa toxicité et nécessite des mesures particulières pour le recyclage du Cadmium et du Tellure.

1.3.2 Les technologies pour silicium massif

On entend par silicium massif le silicium solide obtenu par cristallisation. Comme silicium massif, on a le silicium monocristallin, le silicium multi-cristallin et les rubans.

a. Le silicium monocristallin

Etant les plus anciennes (car utilisées pour l'approvisionnement de l'industrie de la micro électronique bien avant le photovoltaïque), ces techniques de cristallisation se distinguent par le

grand rendement de conversion des cellules obtenues et par leur coût élevé. Elles sont au nombre de deux :

Le procédé Czochralski (CZ) : C'est le tout premier procédé de cristallisation de lingots de silicium, puis qu'il date de 1950 [Ciszek, 1984]. Il consiste à plonger un germe froid de silicium monocristallin dans un bain de silicium (purifié) faiblement surchauffé, contenu dans un creuset en quartz [Dash, 1959]. Le premier morceau solidifié s'accroche au germe en reproduisant sa structure monocristalline. Le cristal est alors tiré verticalement vers le haut avec une rotation simultanée du lingot par rapport au creuset (Figure 1–14). La vitesse de tirage dépend du diamètre du lingot, et varie entre 40 et 10cm/h pour des diamètres de 20 à 140mm [Rea, 1981].

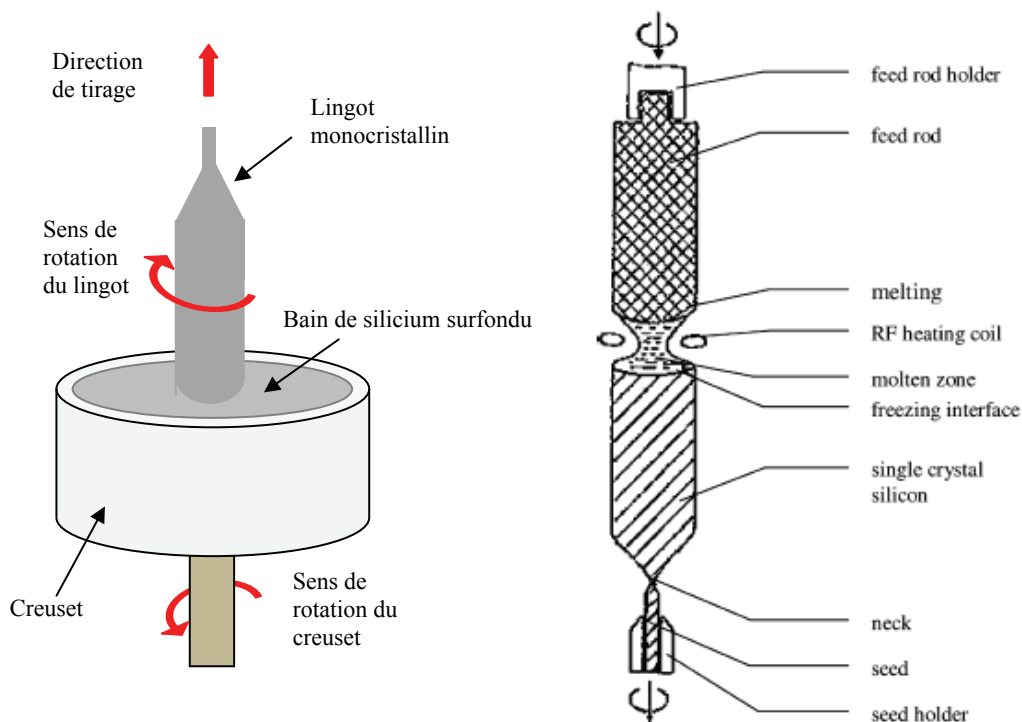


Figure 1–14 : Schema de principe des procédés Czochralski (à gauche) et de fusion de zone (FZ) à droite [Goetzberger *et al.*, 2003].

La fusion de zone (ou « Float Zone » FZ) : C'est le deuxième procédé de cristallisation de silicium, créé 2 ans après le procédé CZ [Ciszek, 1984]. Son principe est le suivant : on fait fondre localement un lingot cylindrique de silicium multi-cristallin et très pur à l'aide d'un chauffage par induction et on tire un monocristal à partir de la zone fondue (Figure 1–14). L'intérêt de ce procédé est qu'on n'utilise pas de creuset : il n'y a donc pas de contamination en oxygène contrairement au procédé CZ [Goetzberger *et al.*, 2003], mais son coût reste trop élevé pour la production industrielle de cellules solaires à grande échelle.

b. Le silicium multi-cristallin

La majeure partie de la production de cellules à base de silicium massif est d'origine multi-cristalline [Shirasawa, 2001], [Wu *et al.*, 2008]. Parmi les procédés de cristallisation de silicium multi-cristallin, on peut citer :

La coulée continue : C'est un procédé de cristallisation en masse utilisé dans la métallurgie. Le liquide est versé à débit constant dans la lingotière via un répartiteur et se refroidit avant d'être tiré vers le bas de l'installation (grâce à un jeu de rouleaux) ou il est découpé [Duffar, 2009].

La solidification directionnelle en creuset Elle peut se faire de plusieurs manières (Figure 1–15) :

- Le creuset se déplace dans un four à gradient de température (méthode Bridgman) ;
- Le creuset est fixe (silicium fondu par induction) et on établit un gradient de température entre le haut et le fond (POLYX et HEM).

Elle présente l'intérêt d'intégrer le phénomène de ségrégation, conduisant à une accumulation de la plupart des impuretés métalliques en haut du lingot solidifié (partie généralement enlevée).

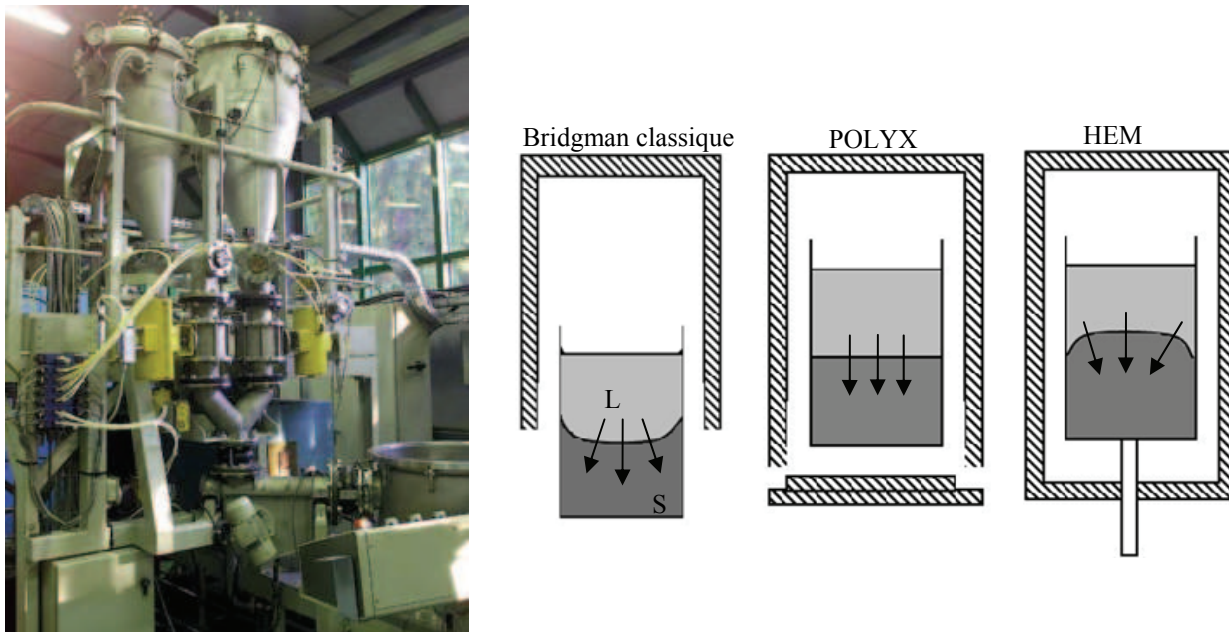


Figure 1–15: Coulée continue (source EPM) et solidification directionnelle (source [Revel et al., 1987]).

Les rubans : La production de plaques de silicium grâce à des procédés rubans (cristallisation de la bonne épaisseur de plaque sur une grande longueur) sera développée au paragraphe 1.4.2 de ce chapitre.

Les technologies d'élaboration de silicium (mono et multi-cristallin) que nous avons citées ci-dessus produisent des plaquettes de silicium de bonne qualité. L'efficacité des cellules photovoltaïques fabriquées à partir de ces plaquettes est en moyenne entre 17 et 24% en laboratoire [Witt et al., 2001] et entre 14 et 17% en pratique [Hoffmann, 2006b]. Les meilleures performances obtenues correspondent à des cellules monocristallines.

Coût de production d'une cellule solaire

L'estimation des coûts est liée essentiellement à deux facteurs : le degré de purification (le coût étant inversement proportionnel à la concentration en impuretés) et la perte de matière lors de la découpe des « wafers » (jusqu'à 50% de matière perdue même si de nouvelles méthodes ont été

développées pour réduire au maximum ces pertes [Jester, 2002]). Pour toutes ces raisons, le prix des cellules à base de silicium monocristallin (les plus performantes) est encore trop élevé pour une vulgarisation des panneaux solaires à très grande échelle. La filière multi-cristalline, constitue une bonne alternative (Figure 1–9) avec une consommation énergétique à la cristallisation inférieure à $10kWh/kg$ contre $60kWh/kg$ pour le monocristallin [Pizzini, 2009], ce qui explique en grande partie le coût de production plus faible de ces cellules.

1.4 Les procédés ruban

Ces procédés de la filière silicium massif ont fait leur apparition au début des années 70 pour les plus anciens, bien après les procédés conventionnels cités plus haut. Ils connaissent également une croissance continue.

1.4.1 Intérêt du ruban

La forte croissance depuis quelques décennies du marché du photovoltaïque fait que les chutes de silicium de la microélectronique qui l'approvisionnaient ne sont plus suffisantes, ce qui pose la question de l'approvisionnement en silicium. Pour répondre à cette question, depuis les années 80, de nouvelles méthodes visant à baisser le coût de la cellule ont été proposées. Pour atteindre cet objectif, il existe plusieurs possibilités [Müller *et al.*, 2006] et [Pizzini *et al.*, 2005] :

- Développer une filière de productivité à faible coût;
- Développer une filière de silicium de qualité solaire (SoG-Si), moins pure que le silicium de qualité électronique (EG-Si), mais suffisamment bonne pour produire des cellules d'efficacité satisfaisante à faible coût ;
- Réduire la quantité de matière première dans les Wafers en diminuant l'épaisseur ;
- Se passer de l'étape de sciage, source de perte.

C'est dans ce contexte qu'on s'intéresse de plus en plus aux procédés de cristallisation de ruban qui permettent d'avoir directement des plaquettes à l'épaisseur désirée ($100-200\mu m$), ainsi l'étape de sciage disparaît (Figure 1–16). Ces procédés se proposent de relever les défis suivants [Kalejs, 2002] :

- Augmenter la productivité ;
- Augmenter la qualité électronique des « *wafers* » tout en baissant le coût des cellules solaires ;
- Et réduire l'épaisseur des plaquettes ce qui permet d'avoir un meilleur rendement et de baisser la consommation de matière première.

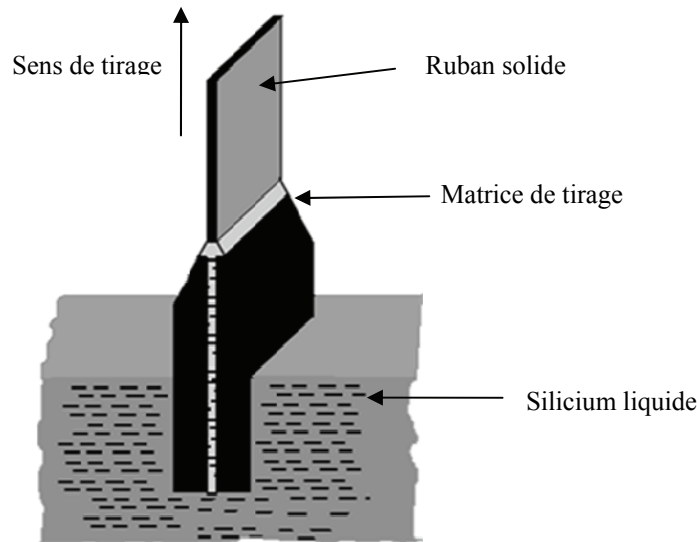


Figure 1-16 : Schéma d'un procédé de tirage de ruban de silicium.

1.4.2 Les différents procédés rubans

Les procédés ruban se divisent en deux grandes catégories selon différents critères : les procédés de tirage vertical et les procédés de tirage horizontal sur substrat.

- La forme du ménisque (selon qu'elle soit formée par une lèvre de tirage, sur surface libre ou contre un support) [Ciszek, 1984] ;
- La direction de croissance du solide par rapport à l'interface (même direction ou directions perpendiculaires) [Hahn et Scöneckner, 2004] ;
- L'extraction de la chaleur durant la solidification (conduction à travers un support ou conduction à travers le ruban qui rayonne la chaleur vers l'atmosphère) [Hahn et Scöneckner, 2004] ;
- La présence ou non d'un support [Hahn et Scöneckner, 2004].

Pour résumer ces différents critères, nous les classerons en procédés de tirage vertical et procédés de tirage horizontal sur substrat.

a. Les procédés de tirage vertical

Ce sont les premiers procédés de cristallisation sous forme de ruban. Ils présentent en général des dimensions et vitesses de cristallisation limitées (quelques centimètres par minute), à cause des contraintes thermiques et de la forme de l'interface par rapport à la section du ruban [Mackintosh *et al.*, 2006].

De la longue liste établie par Ciszek en 1984 [Ciszek, 1984], seul trois procédés sont commercialisés de nos jours :

- **D-W (*Dendritic Web*)**

Il consiste à faire croître le ruban de silicium directement à partir de silicium fondu contenu dans un creuset comme schématisé sur la Figure 1–17.

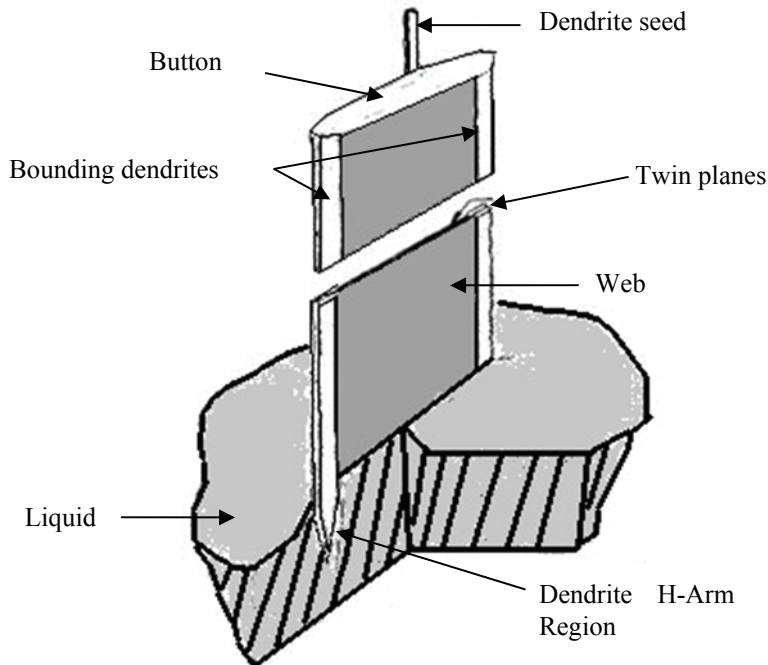


Figure 1–17: Procédé Dendritic Web [Seidenstickers et Hopkins, 1980].

La dendrite est entourée du liquide légèrement surfondu. Quand on baisse la température, le grain se propage latéralement et il se forme une petite plaque qu'on soulève de telle sorte que deux dendrites secondaires se propagent vers le liquide, formant un cadre à l'intérieur duquel croît le ruban [Seidenstickers et hopkins, 1980].

- **EFG (*Edge-defined, Film-fed Growth*)**

C'est le plus productif des procédés rubans actuellement commercialisés, avec une production de 30MW en 2003 [Möller *et al.*, 2005].

Il consiste à faire monter le silicium liquide dans la matrice de tirage par ascension capillaire [Ravi, 1977]. La géométrie du ruban (de 100-400 μm d'épaisseur) dépend de la forme de cette enceinte : actuellement c'est un octogone creux qui permet l'obtention de plaquettes planes tout en évitant les problèmes de bord (Figure 1–18).

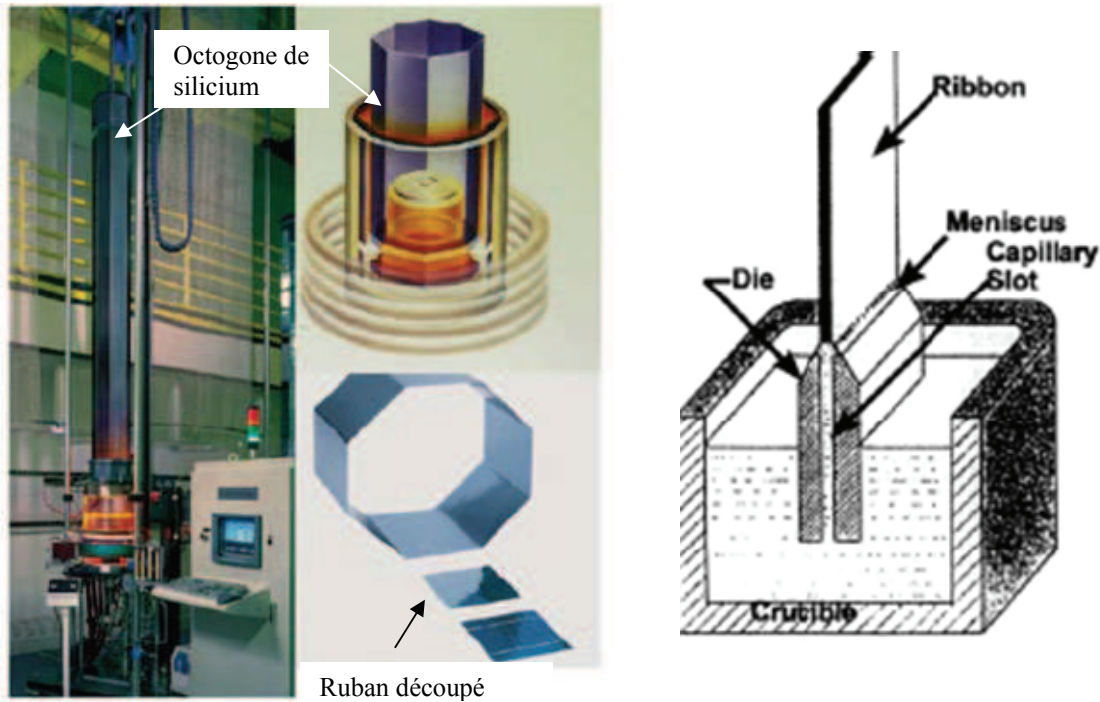


Figure 1-18: Procédé EFG [Hoffmann, 2006a] and [Bell et Kalejs, 1998].

- String Ribbon

Il a connu une phase de développement très rapide entre sa création et sa commercialisation. L'efficacité des cellules avoisinent aujourd'hui les 15-17% [Nakayashiki *et al.*, 2006]. Comme on peut le voir sur la Figure 1-19, il consiste à faire passer deux filaments non conductrices à travers un creuset peu profond en graphite, alimenté en silicium [Surek, 2005]. C'est un procédé qui a la réputation d'être très stable du fait des filaments qui cadrent la croissance du ruban.

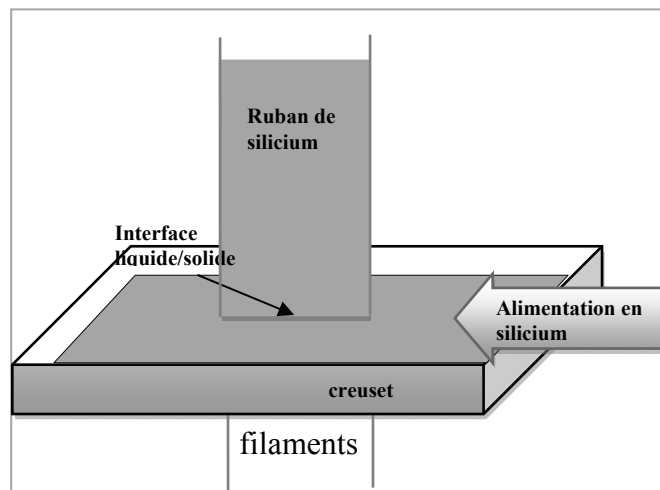


Figure 1-19: Procédé String Ribbon [Hanoka, 2001].

Des recherches sont en cours pour augmenter la capacité de production.

b. Les procédés de tirage horizontal

Ils sont plus récents que les procédés de tirage vertical et présentent des vitesses de tirage plus élevées car les contraintes thermiques sont moins importantes du fait du découplage de la direction d'extraction de la chaleur et de la direction de croissance d'une part, et d'autre par du fait de la présence du substrat. Cependant, leur efficacité tourne autour de seulement 9% [Surek, 2005].

- **RGS (*Ribbon Growth on Substrate*)**

Technologie créée en 1984 [Lange *et al.*, 1990], il consiste à cristalliser un ruban de silicium sur un substrat se déplaçant à la vitesse V_t (Figure 1–20).

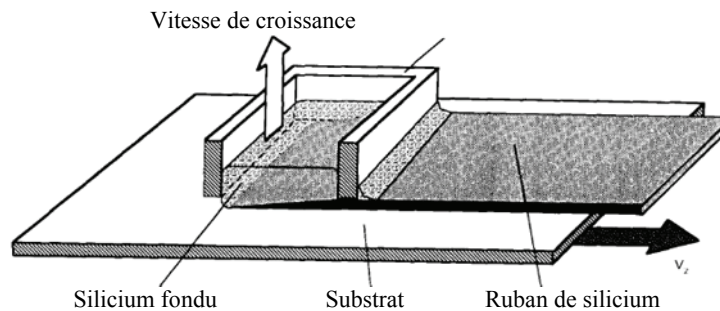


Figure 1–20: Schéma de principe RGS [Lange *et al.*, 1990].

Deux dispositifs ont été développés dans le cadre de la conception en laboratoire et du développement de ce procédé (Figure 1–21) : le premier dispositif (fonctionnement discontinu) fut conçu à l'échelle du laboratoire dans le but de démontrer la faisabilité. Le second, conçu en phase de développement du procédé intègre des améliorations par rapport au premier, comme l'utilisation d'un creuset en graphite avec revêtement antiadhésif à la place du creuset en quartz qui diffusait de l'oxygène et diminuait la qualité des plaques de silicium, ou encore le fonctionnement en continu du dispositif. Dans les deux cas, le substrat est préchauffé avant de recueillir le silicium pour limiter les contraintes thermiques. Un jet de gaz en sorti de creuset permet d'aplanir la plaquette de silicium en réduisant les tensions de surface.

La cristallisation sur substrat donne des grains colonnaires et permet de grandes vitesses de tirage. Une fois cristallisé, le silicium est séparé du substrat qui est réutilisé dans le processus.

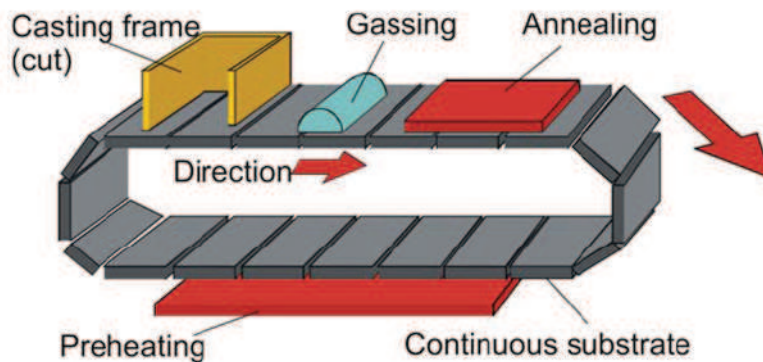
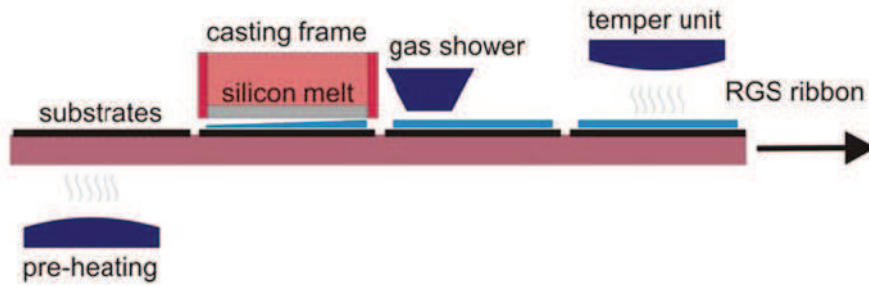


Figure 1-21 : Schémas des deux dispositifs RGS d'après Seren [2007].

Le procédé est aujourd'hui au stade de recherche et développement, avec des « *wafers* » de $156 \times 156 \text{ mm}^2$, et une vitesse de production de 1 wafer/s [Seren, 2007], ce qui correspond à $\sim 9 \text{ m/mn}$ et est à ce jour la plus grande vitesse de tirage des procédés de tirage de ruban.

- **SSP (*Silicon Sheets from Powder*)**

Il consiste à fondre partiellement une couche de poudre, pour lui donner un peu de tenue mécanique, puis à la cristalliser par chauffage radiatif. Ce procédé permet d'obtenir des couches minces de silicium de moindre qualité et peu coûteuses, utilisées pour servir de substrat dans d'autres procédés comme ceux cités ci dessus [Ai *et al.*, 2004] (Figure 1-22).

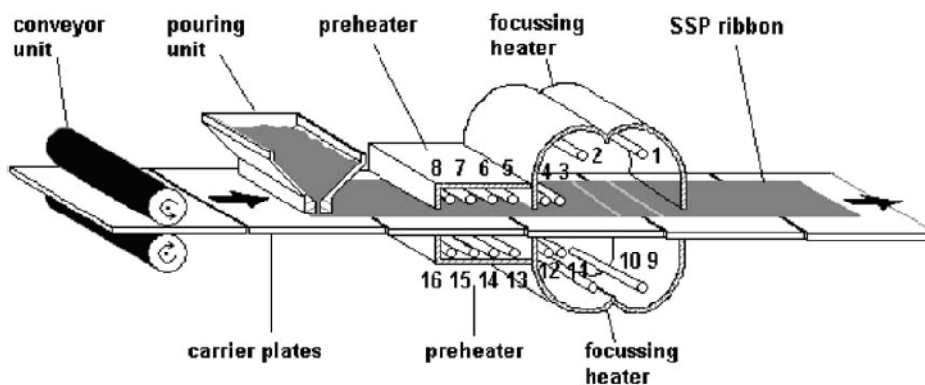


Figure 1-22: Procédé SSP [Ai *et al.*, 2004].

1.5 Conclusion

Il sort d'une étude comparative des différentes technologies présentées dans ce chapitre que les plaquettes (wafers) de silicium obtenues (par différents procédés) ne présentent pas les mêmes caractéristiques [Kalejs, 2002]. En effet, la qualité du wafer (et donc l'efficacité de la cellule) dépend non seulement de la méthode de cristallisation, mais également des impuretés présentes. Le tableau suivant résume quelques caractéristiques des procédés que nous venons d'étudier dans les sections précédentes.

Procédé Compagnie	Création ³ Commercialisation	Vitesse de tirage	Dimensions : Epaisseur (E) Largeur (L)
EFG RWE SHOTT Solar [Hoffmann, 2006a]	1972 [Ciszek, 1984] 1994 [Geiger et Hahn, 2003]	Max 1.5-1.8cm/mn [Mackintosh <i>et al.</i> , 2006] ~1cm/mn [Möller <i>et al.</i> , 2005]	E : 250-300 μ m [Surek, 2005] L : 12,5cm [Surek, 2005], 10cm [Hoffmann, 2006a]
Dendritic Web Ebara Solar [Hanoka, 2001]	1963 [Ciszek, 1984]	~1cm/mn [Möller <i>et al.</i> , 2005] 1-2cm/mn [Kalejs, 2002]	E : 75-150 μ m [Kalejs, 2002] L: 5-8cm [Kalejs, 2002]
String Ribbon Evergreen Solar (depuis 1994)	1980 2001 [Geiger et Hahn, 2003]	~2cm/mn [Möller <i>et al.</i> , 2005] 2-3cm/mn [Surek, 2005]	E ~250-300 μ m [Surek, 2005] L: 8cm [Surek, 2005]
RGS Deutsche solar et al (ECN)	1984 [Lange <i>et al.</i> , 1990] Etudes laboratoire	1 wafer/s [Seren, Thèse 2007] 50-300cm/mn [Möller <i>et al.</i> , 2005]	E : 300-400 μ m [Kalejs, 2002] L: 12.5cm [Kalejs, 2002]
SSP	- Etudes laboratoire		E: 300-700 μ m [Eyer <i>et al.</i> , 2001] L: 20cm [Eyer <i>et al.</i> , 2001]

Tableau 1-1: Les principaux procédés ruban avec quelques caractéristiques comme la vitesse de tirage.

Les procédés de tirage vertical ont une vitesse de tirage limitée (1 à 2cm/mn) en comparaison avec les procédés de tirage horizontal. A titre de comparaison, de nos jours le **RGS** permet une vitesse de tirage atteignant jusqu'à 300cm/mn [Möller *et al.*, 2005], ce qui montre que les procédés de tirage horizontal sur substrat possède un potentiel de production beaucoup plus élevé. Le ruban **RGS** étant cristallisé sur le substrat à la sortie du creuset, la ségrégation des impuretés ne peut être mise à profit lors de la solidification.

Dans l'optique d'une évolution nécessaire de ces procédés pour qu'ils puissent accepter du silicium moins purifié, à cause du besoin de réduire les coûts, les travaux présentés dans cette thèse s'insèrent dans le développement du nouveau procédé (projet ASTERICS) de tirage de rubans de silicium s'apparentant au procédé **RGS** (pour la cristallisation de ruban à grande vitesse) et à la solidification directionnelle (permettant de profiter de la ségrégation des impuretés). Il s'agit à terme de cristalliser un ruban de silicium (~200 μ m d'épaisseur) à l'intérieur du creuset avant de le tirer sur un substrat (sans adhésion) à une vitesse de 1m/mn. La nouveauté par rapport au procédé **RGS** étant le contrôle de la ségrégation des impuretés grâce à la cristallisation dans le creuset. La Figure 1-23 schématise le principe du procédé, mettant en évidence la rétention et le brassage électromagnétique, dans le cadre d'un tirage de ruban.

³ Les dates diffèrent de plus ou moins 1 an selon les articles.

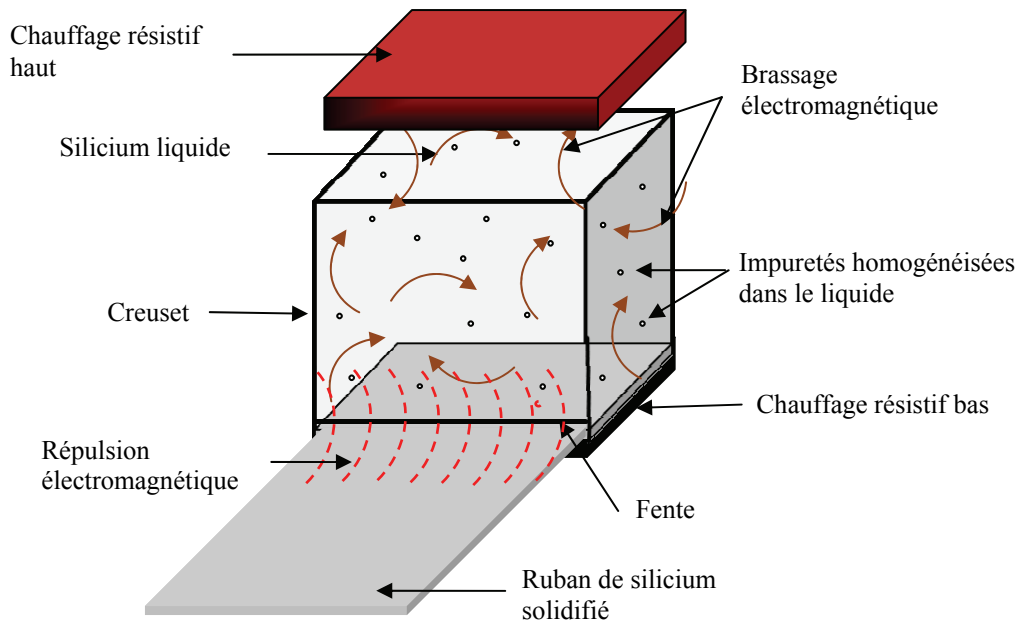


Figure 1-23 : Principe du procédé ruban.

Un prototype de laboratoire (Figure 1-24) a été développé dans le cadre de cette thèse pour travailler sur deux points fondamentaux du procédé, la rétention électromagnétique et le contrôle thermique de la cristallisation. De plus, nous avons étudié à l'aide de ce prototype la ségrégation sous brassage électromagnétique, dans des conditions originales de fort brassage et grande vitesse de cristallisation (projet GENSI).

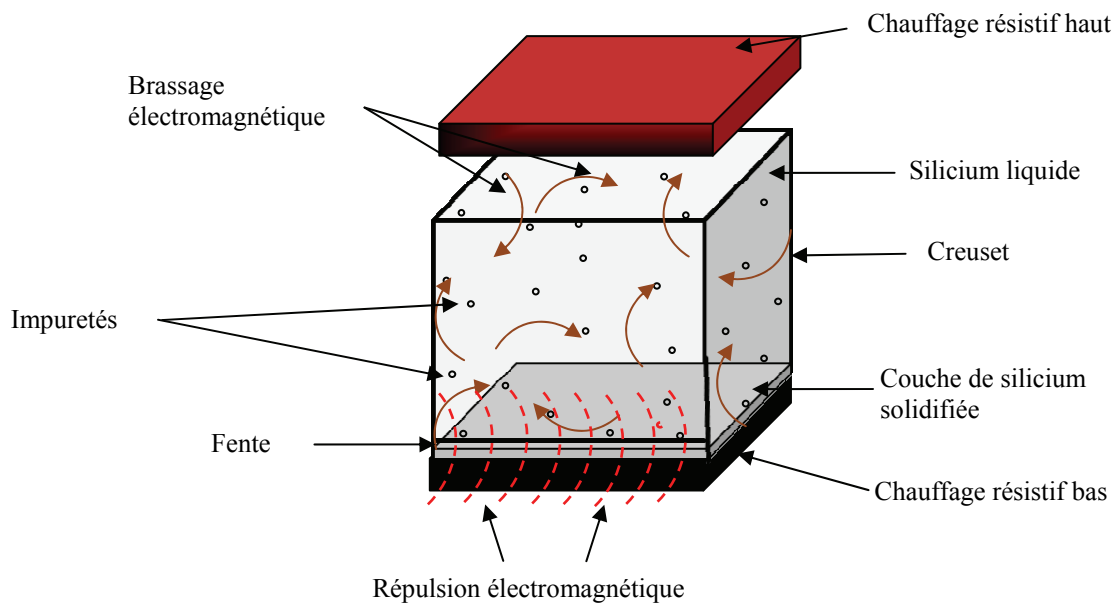


Figure 1-24: Principe du prototype de laboratoire.

Dans ces deux configurations (procédé et prototype), il s'agit de fondre du silicium dans un creuset présentant une fente à sa base, thermiquement contrôlé par deux systèmes de chauffage résistifs au dessus et en dessous du creuset. Le dimensionnement thermique et la configuration du prototype sont détaillés au Chapitre 2. Un système de rétention électromagnétique permet de créer

d'une part des forces de répulsion dans la fente afin de retenir le silicium liquide dans le creuset, et d'autre part d'assurer un brassage électromagnétique, la mise au point de ce système est présentée au Chapitre 3 et sa modélisation au Chapitre 4. Le brassage permet d'homogénéiser la concentration des impuretés dans le silicium liquide, et donc de favoriser leur ségrégation (Chapitre 5).

Chapitre 2 Dispositif expérimental

2.1 Conception

Ce chapitre présente le dispositif expérimental que nous avons réalisé pour mener les tests de fusion, de rétention électromagnétique et de solidification sous brassage électromagnétique du silicium. Le silicium ayant une haute température de fusion, nous avons mis en œuvre des résistances de chauffage en graphite (résistors) et des générateurs spécifiques pour fournir les puissances nécessaires à la fusion. Nous présenterons également les moyens d'isolation thermique, de contrôle de température et les sécurités mises en place. Le silicium ayant également une très grande réactivité à chaud, un choix judicieux de matériaux en fonction de leurs propriétés thermiques et électriques, a été nécessaire afin d'assurer au mieux la compatibilité entre chaque élément.

Deux principales configurations ont été testées au cours de cette étude : la configuration axisymétrique (Figure 2–1) et la configuration carrée (Figure 2–2). Dans les deux cas, on dispose d'un creuset, destiné à recevoir du métal liquide, muni d'une fente en partie basse et d'un inducteur pour empêcher le liquide de couler à travers cette fente (par rétention électromagnétique). Dans chaque configuration, la géométrie et/ou la position des éléments du graphite, de l'inducteur ou de la fente ont pu être modifiées pour étudier différents cas.

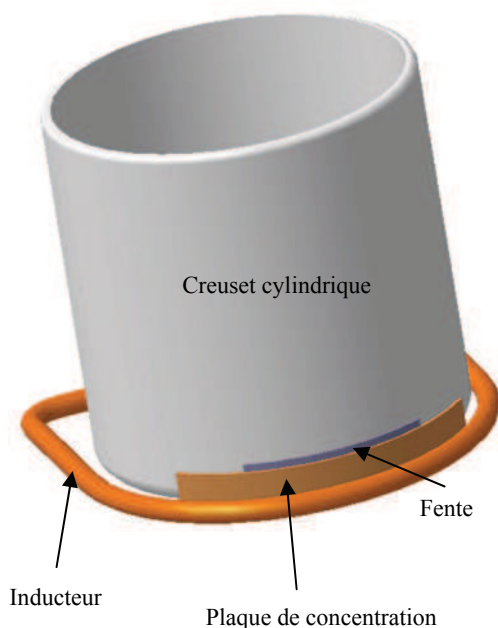


Figure 2–1 : Configuration axisymétrique.

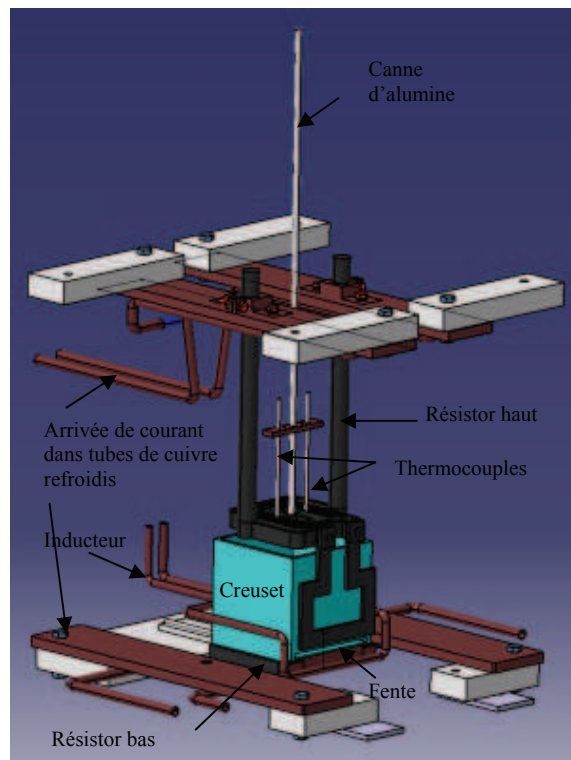


Figure 2–2: Configuration carrée.

Le choix des matériaux utilisés lors des procédés de cristallisation est important aussi bien pour la configuration thermique que pour la qualité électrique et cristalline. Les tests ont été effectués en utilisant d'abord de l'étain, ensuite du silicium, sachant que les tests au silicium sont

plus délicats car ils nécessitent l'utilisation de matériaux qui tiennent au-delà de sa température de fusion (1410°C) et une isolation thermique.

2.1.1 Le four

Notre dispositif expérimental est monté dans une enceinte (Figure 2–3) en acier inoxydable installée au laboratoire EPM.

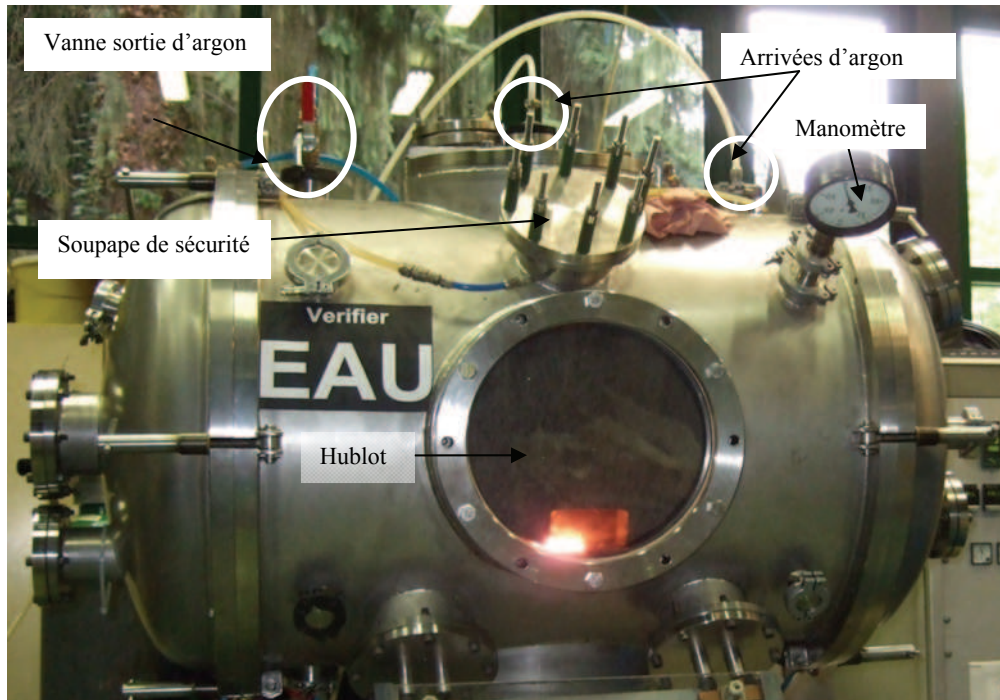


Figure 2–3 : Site du dispositif expérimental.

Pour des raisons liées à la réactivité du silicium liquide et les risques de détérioration des sondes de mesure de températures, quand on est à haute température et en présence d'oxygène, une circulation d'argon (gaz inerte) est établie dans l'enceinte, lors des expériences, après un pompage à vide autour de 2.10^{-4} bars obtenue grâce à une pompe primaire.

L'enceinte présente une double paroi à l'intérieur de laquelle une circulation d'eau permet de maintenir sa température froide pendant la durée des expériences.

Chaque élément soumis à une alimentation électrique a également un circuit de refroidissement (Figure 2–4), indispensable pour refroidir les tubes de cuivre constituant l'inducteur et les amenées de courant des résistors.

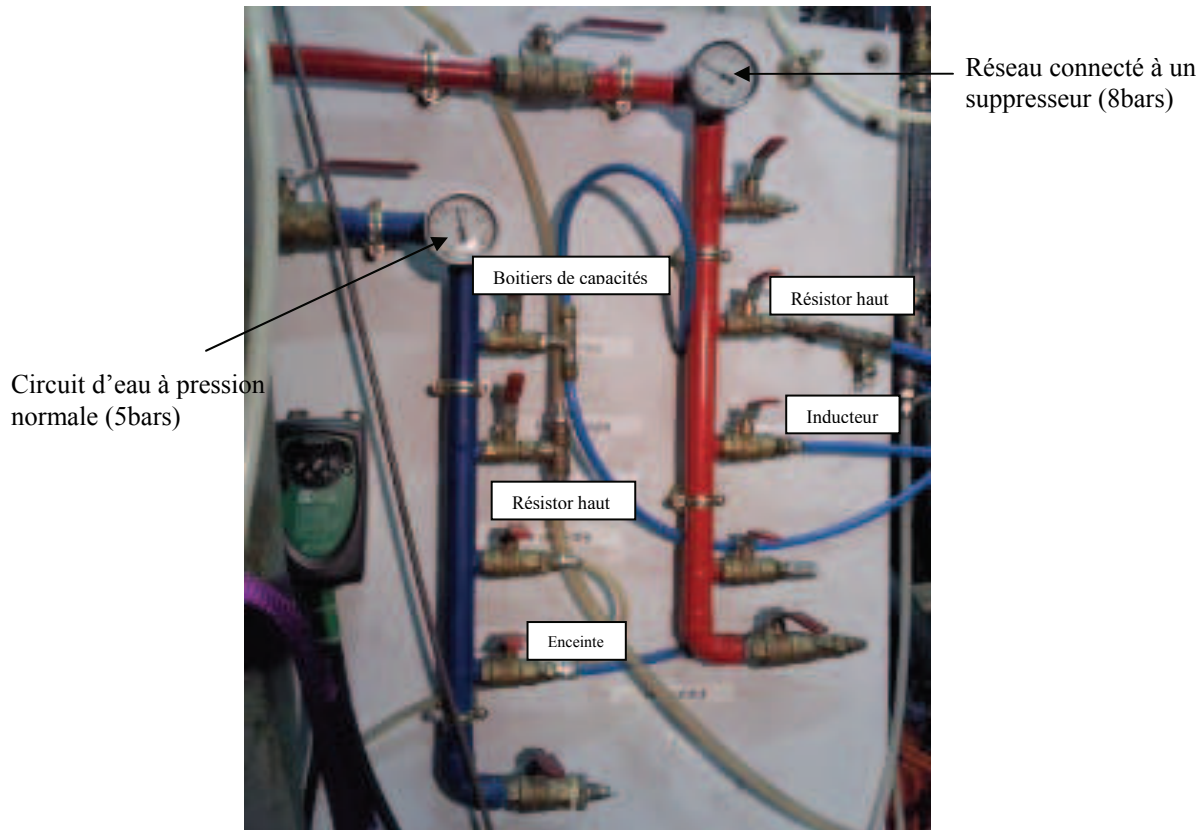


Figure 2–4 : Circuits d'eau de refroidissement du dispositif expérimental.

Les débits imposés dans les éléments parcourus d'une circulation électrique sont présentés dans le

Tableau 2–1:

Inducteur	10,28 l/mn
Résistor haut	12 l/mn
Résistor bas	7 l/mn

Tableau 2–1: Débit du circuit de refroidissement de l'inducteur et des attaches des résistors.

2.1.2 Les résistors

La puissance nécessaire à la fusion et solidification de la charge de silicium est délivrée par deux résistors placés au dessus et en dessous du creuset. Ils permettent également de réguler le flux de refroidissement et de contrôler la thermique du dispositif. Pour les expériences à l'étain, le chauffage inductif apporté par l'inducteur de rétention suffit à dépasser la température de fusion de l'étain (232°C), on n'a donc pas besoin de résistor. Nous avons cependant utilisé un support de creuset en graphite pour étudier la rétention électromagnétique lorsque les lignes de champ sont perturbées par un élément graphite préfigurant le résistor bas.

Les deux résistors ou le support sont en graphite, matériau qui présente l'intérêt de bien supporter les hautes températures (sublimation au-delà de 3000°C). La géométrie des résistors doit être adaptée à la forme et aux dimensions du creuset choisi (Figure 2–5 et Figure 2–6).

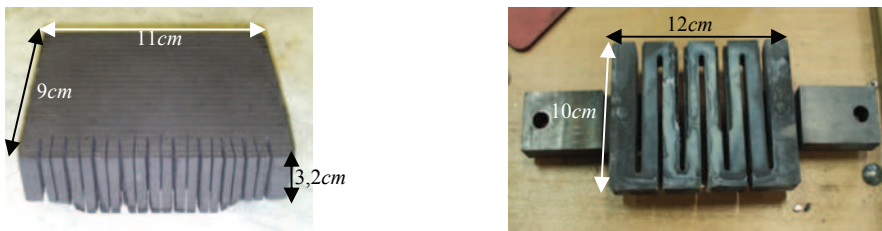


Figure 2-5: Résistors graphite (support du creuset) utilisés à différents stades d'expérimentation (bloc sectorisé (11×9×3,2cm) à gauche et résistor optimisé (10×12×1,5cm) à droite).

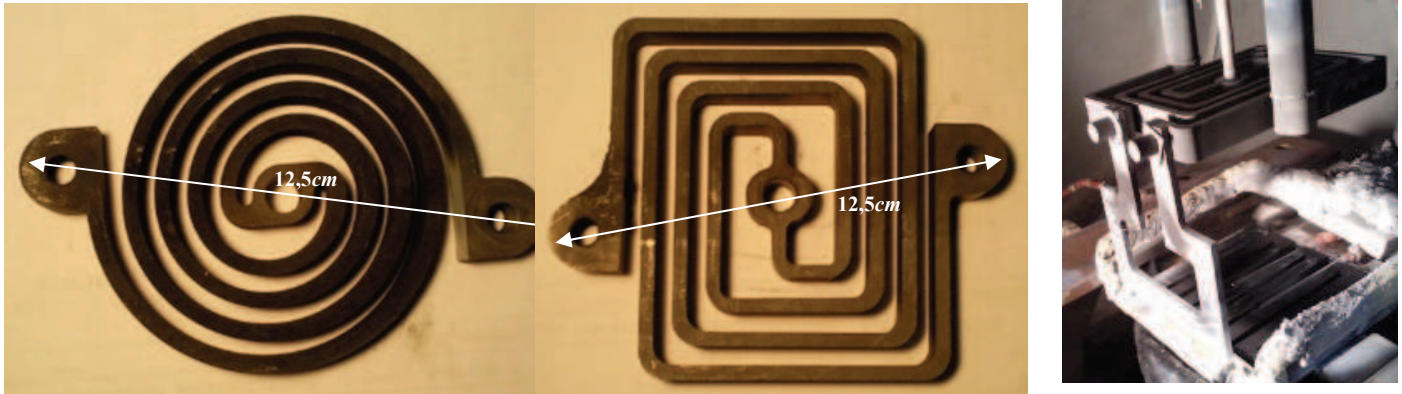


Figure 2-6 : Résistors graphite (haut) utilisés à différents stades d'expérimentation : configuration axisymétrique (gauche), configuration carré (centre) et carré optimisé pour la cristallisation (droite).

Les résistors sont alimentés par deux gradateurs 50Hz capables de fournir une puissance électrique de 12-13kVA.

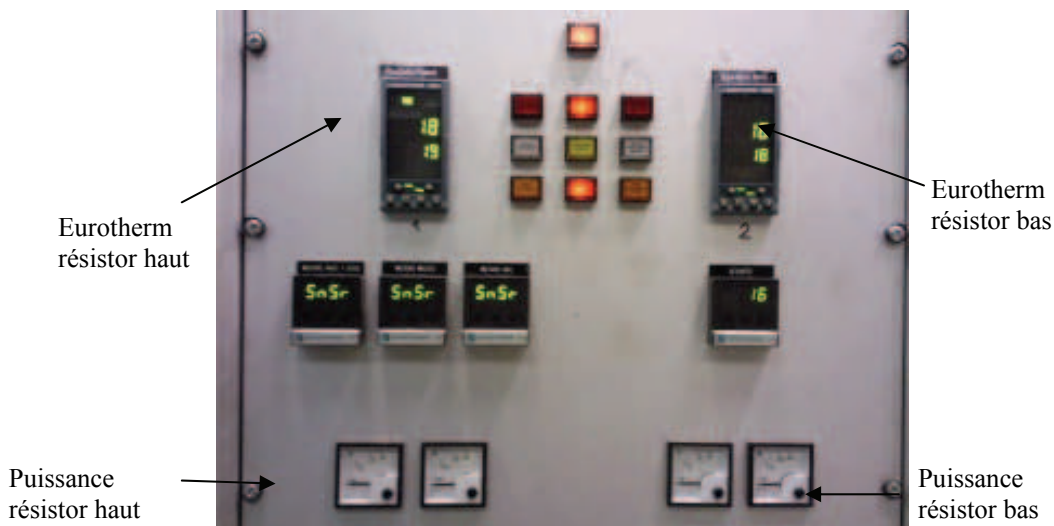


Figure 2-7 : Tableau de commande des systèmes de chauffage haut et bas.

Les gradateurs sont pilotés en température grâce à deux boîtiers Eurotherm (Figure 2-7) reliés à deux thermocouples. Les thermocouples sont des sondes de mesure de température, dont il existe différentes sortes en fonction de la gamme de température à mesurer. Nous avons choisi des thermocouples de type C (Tungstène-5% Rhenium et Tungstène-26% Rhenium), car ils peuvent mesurer jusqu'à 2320°C (sous vide ou atmosphère inerte), ce qui nous laisse une bonne marge de manœuvre au-delà de la température de fusion du silicium. Ils sont cependant délicats à utiliser car très cassants après une première utilisation.

Le principe de fonctionnement d'un thermocouple est basé sur l'effet **Seebeck** qui se traduit par l'apparition d'une différence de potentiel à la jonction de deux conducteurs électriques (différents) présentant une « soudure chaude » (point de mesure) et une « soudure froide » (point de raccordement des deux fils du thermocouple, à deux fils de même métal), dont la température sert de référence. Lorsqu'une différence de température existe entre les deux points de soudure (Figure 2–8). La température mesurée est déduite de la différence de potentiel et du coefficient de **Seebeck** des deux matériaux (qui est égal à dV/dT : rapport entre la différence de potentiel et la différence de température).

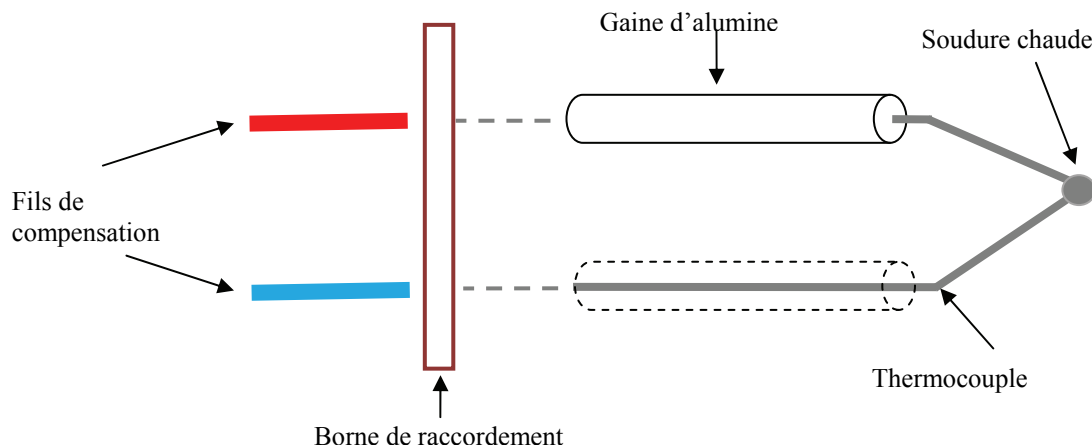


Figure 2–8 : Schéma descriptif d'un thermocouple.

Les thermocouples sont protégés par une gaine d'alumine afin d'éviter toute réaction avec le graphite. Ils sont placés de telle sorte qu'ils mesurent la température des résistors (haut et bas) et bougent le moins possible lors des manipulations sur le dispositif. La température mesurée par ces thermocouples sert de référence aux régulateurs « Eurotherm » pour appliquer la consigne de l'opérateur, d'où l'importance de leur bonne disposition. Une gaine de cuivre étamée, mise à la masse, permet de les protéger des perturbations dues à l'induction.

Deux autres thermocouples, placés de façon symétrique aux deux premiers (Figure 2–9 et Figure 2–10) permettent d'enregistrer les températures des résistors haut et bas sur l'ordinateur d'acquisition. La température du silicium est estimée à partir des informations fournies par les résistors (puissance et température).

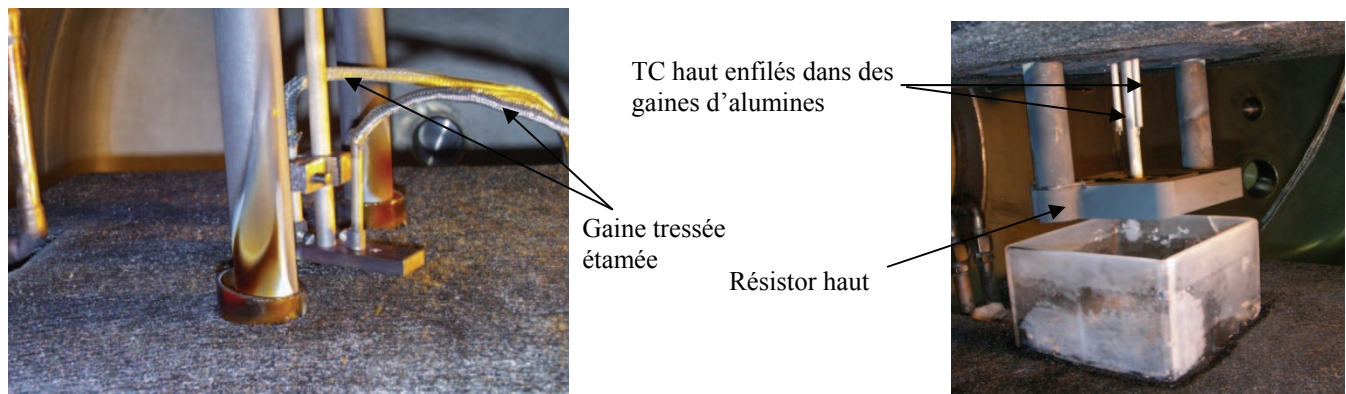


Figure 2–9 : Thermocouples de régulation et de mesure de température du résistor haut.

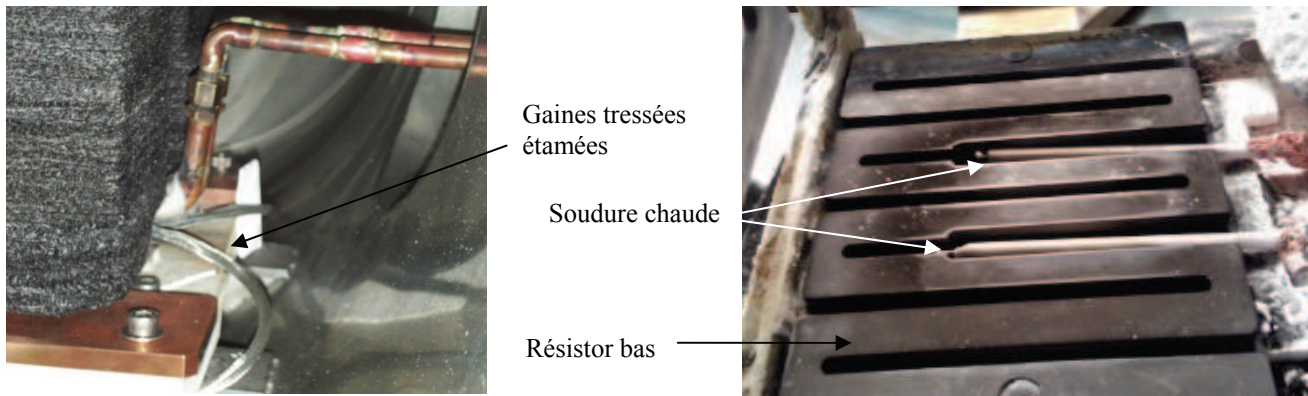


Figure 2–10 : Thermocouples de régulation et de mesure de température du résistor bas.

2.1.3 L'inducteur

Il est réalisé à partir d'un tube de cuivre, matériau possédant une excellente conductivité électrique (de l'ordre de $10^7 \Omega^{-1}m^{-1}$). La forme et la disposition de l'inducteur sont des paramètres importants des tests réalisés, car ils influent sur la distribution des lignes de champ magnétique, et donc sur la distribution des forces électromagnétiques dans la charge. La Figure 2–11 présente deux inducteurs utilisés pour des configurations d'expérimentation différentes. Une plaque de cuivre de 2mm d'épaisseur est soudée à l'inducteur afin de concentrer les forces électromagnétiques en un point stratégique du creuset : la fente.

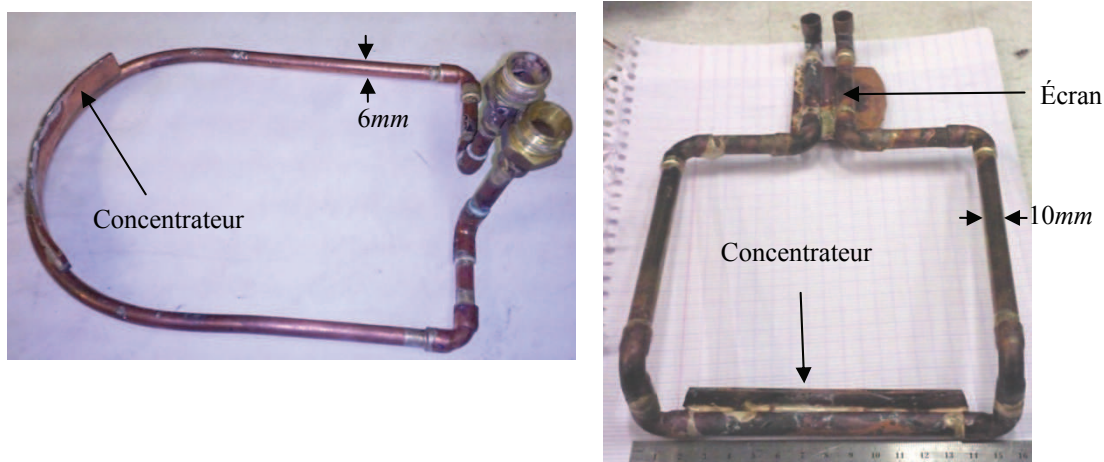


Figure 2–11 : A gauche : inducteur circulaire (configuration axisymétrique) et à droite : inducteur rectangulaire (configuration carrée).

L'utilisation de l'induction perturbe les mesures de températures, surtout pour les thermocouples du résistor bas, placés assez près de l'inducteur. Afin de parer à ces désagréments, une plaque de cuivre a été soudée sous un des tubes de l'inducteur à l'endroit où il est proche des connections des thermocouples, ce qui permet de faire écran aux perturbations.

Un générateur à induction (Figure 2–12) alimente l'inducteur. Il est capable de délivrer un courant alternatif de quelques centaines d'ampères sous une tension de quelques centaines de volts, à une fréquence variant de 10 à 100kHz. L'ensemble inducteur/charge (creuset et silicium) se caractérise par une résistance R et une inductance L, constituant un circuit RLC avec un boîtier de capacités (Figure 2–13) qui permet d'adapter le générateur au circuit qu'il alimente.

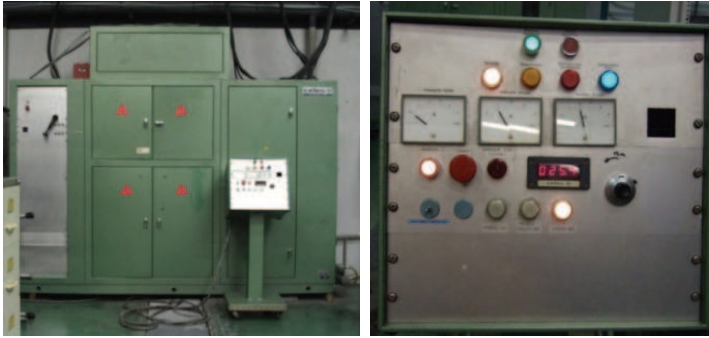


Figure 2-12: Générateur à induction et pupitre de commande.

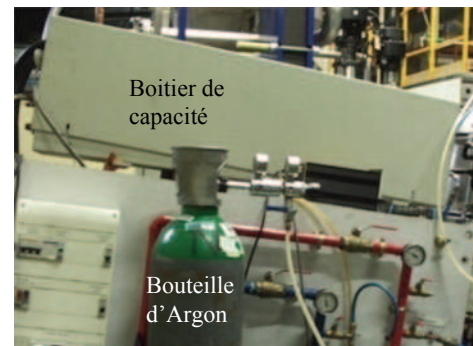


Figure 2-13: Boîtier de capacités et bouteille d'argon.

Pour ajuster cette adaptation, on utilise la méthode du décrétement logarithmique, mise au point par Ernst [Ernst et Garnier, 1989], pour mesurer les caractéristiques électriques L et R du circuit oscillant (connaissant la capacité C des condensateurs). On peut alors adapter l'impédance Z_{c0} du circuit à l'impédance Z_c du générateur à induction par un transformateur de rapport

$$\frac{N_1}{N_2} = \sqrt{\frac{Z_c}{Z_{c0}}} \text{ (Figure 2-14).}$$

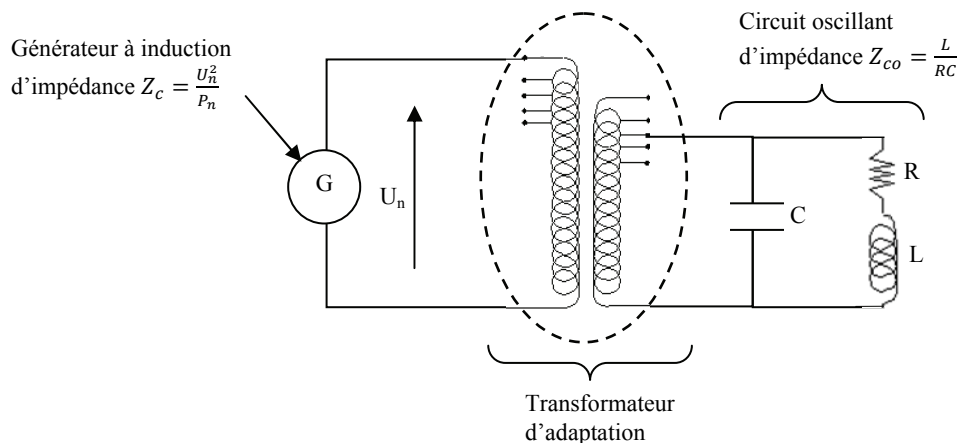


Figure 2-14: Schéma électrique du générateur et du circuit RLC.

2.1.4 Le creuset

La plupart des procédés d'élaboration de silicium à l'état liquide utilisent des creusets en graphite (en général pour fondre le silicium grâce au chauffage induit par de l'induction électromagnétique) ou des creusets en quartz (en général pour des procédés de cristallisation où on cherche à éviter la contamination en carbone).

Le creuset en graphite présente l'intérêt d'être réutilisable plusieurs fois de suite, mais produit cependant du carbure de silicium (SiC) au contact avec le silicium liquide.

Le creuset en quartz est beaucoup plus fragile et souvent inutilisable après une ou deux expériences : sa température de fusion (1500°C) est de plus assez proche de celle du silicium (1410°C) ce qui est limitant pour le chauffage.

Les creusets ont en général un revêtement dans le but d'empêcher les réactions du creuset avec le silicium liquide qui provoqueraient l'adhérence. Une étude bibliographique sur la mouillabilité et l'adhérence du silicium sur différents types de substrat est présentée en Annexe A.

L'utilisation de l'induction électromagnétique (qui doit rester indépendante du contrôle thermique et inversement) nous impose de choisir des creusets en matériau de faible conductivité électrique, d'où le choix du creuset en quartz pour contenir le silicium liquide (Figure 2–15). Nous utilisons du quartz transparent afin de retirer un maximum de flux de refroidissement par rayonnement, selon la méthode développée par notre partenaire industriel Apollon Solar [Einhaus, 2004]. Pour les premiers tests à l'étain, en configuration cylindrique, nous avons utilisé des creusets en pyrex (matériel de chimie standard), beaucoup moins chers et tout à fait satisfaisants pour de faibles températures.

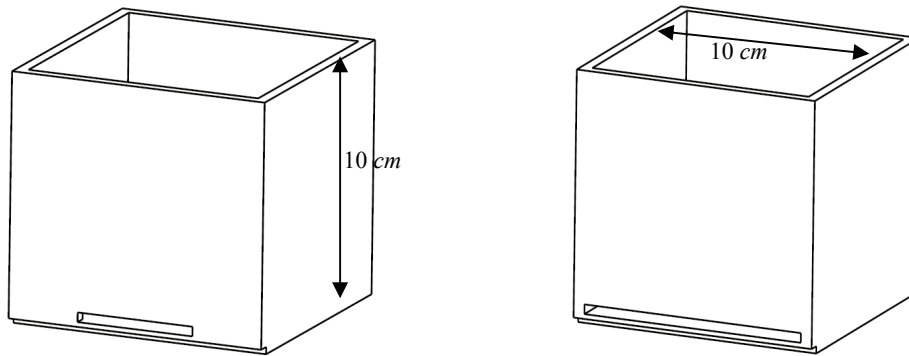


Figure 2–15 : Deux creusets carrés à fente de 4mm d'épaisseur et 5cm de large (gauche) et 10cm de large (droite).

L'isolation thermique du dispositif expérimental, en configuration carrée, est assurée par un empilement de feutre de graphite (Figure 2–16), d'une épaisseur de 6 cm chacun. Cette isolation est indispensable pour la fusion du silicium.

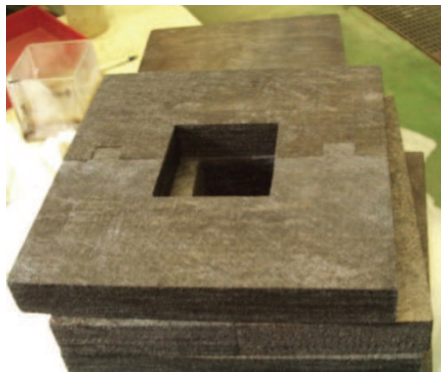


Figure 2–16: Isolant de feutre de graphite avec emplacement du creuset prévu au centre (10×10cm).

Nous allons présenter dans la suite de ce chapitre les calculs de dimensionnement thermique et électromagnétique que nous avons effectué dans le but de dégrossir les paramètres de fonctionnement nécessaires pour démarrer et mener les expérimentations.

2.2 Dimensionnement thermique

La disposition des différents éléments décrits ci-dessus est compatible avec une future utilisation du même procédé pour tirer des rubans (Figure 2–17 et Figure 2–18) : le creuset rempli de silicium est posé sur le résistor du bas qui lui sert de support. Il est suspendu en regard de la sole refroidie, solidaire de l'enceinte qui est maintenue à une température autour de 25°C . Le résistor du haut est placé au dessus du creuset. Le système de chauffage constitué par ces deux résistors en graphite, pilotés indépendamment, permet de fournir les puissances nécessaires à la fusion et de contrôler la solidification. L'inducteur comporte une branche proche de la fente du creuset, ce qui permet de créer la force électromagnétique qui s'exerce sur le silicium liquide (pression magnétique répulsive empêchant le liquide de couler et brassage au sein du liquide pour améliorer la ségrégation).

Dans cette partie, nous présentons l'étude thermique du procédé, en envisageant la future utilisation avec tirage (principalement pour dimensionner l'extraction de chaleur, qui doit permettre de cristalliser $200\mu\text{m}$ de silicium avec une vitesse de tirage voisine de celle du procédé **RGS**), ou l'utilisation dans cette thèse pour caractériser la rétention électromagnétique et la ségrégation des impuretés, sans tirage de ruban.

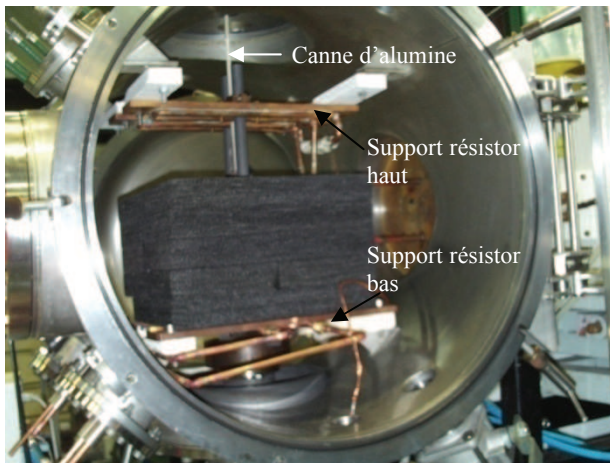


Figure 2–17: Dispositif expérimental.

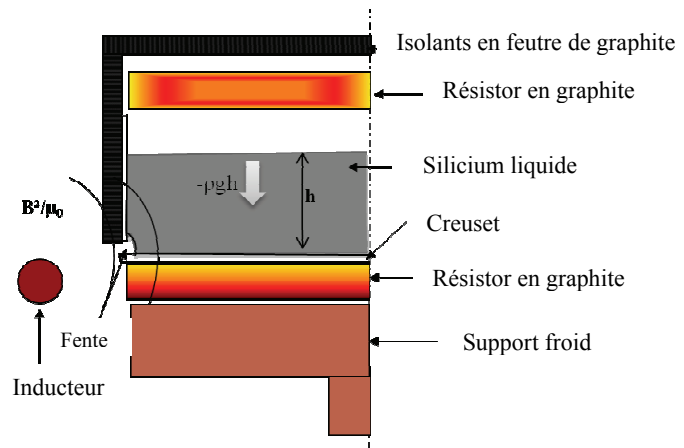


Figure 2–18: Schéma du dispositif expérimental en coupe.

Examinons les échanges thermiques à travers les différentes couches de matériaux considérés (Figure 2–19) : le silicium solide, le substrat (fond du creuset) en quartz transparent et le support graphite (ou résistor). Nous allons dans un premier temps établir le bilan thermique lié à la solidification du silicium avant d'estimer le flux de chaleur à extraire, et évaluer la faisabilité d'une telle extraction de chaleur.

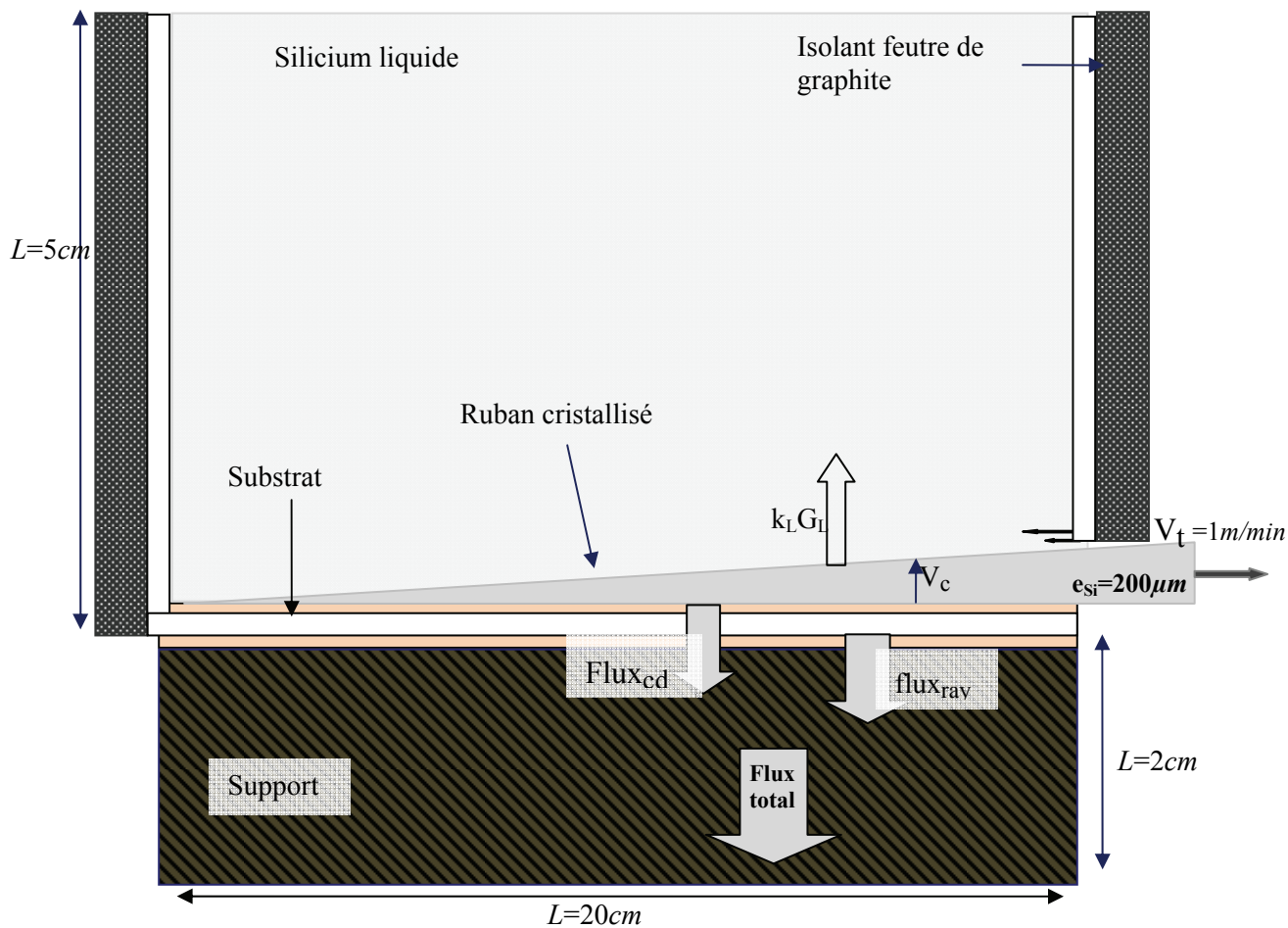


Figure 2-19 : Schéma de principe.

2.2.1 Bilan thermique à l'interface

Le changement de phase est associé à un équilibre liquide/solide qui a lieu à température constante. L'interface solide/liquide est alors une isotherme ($T_{\text{solide}}=T_{\text{liquide}}=T_{\text{fusion}}$) qui se déplace par rapport au solide à la vitesse V_c (vitesse de croissance des cristaux solides) avec dégagement de chaleur latente.

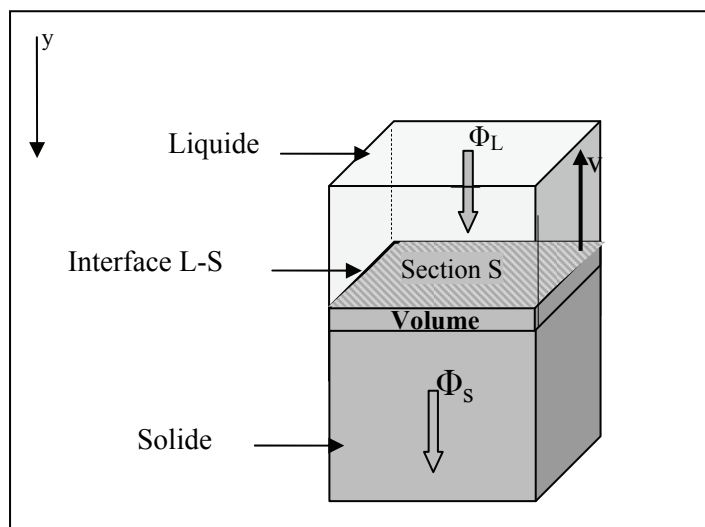


Figure 2-20 : Echanges thermiques lors de la solidification d'un volume de silicium.

Considérons un volume de silicium liquide d'épaisseur infinitésimale près du front, d'enthalpie H , à un temps t (Figure 2–20). Ce volume échange de la chaleur par conduction avec le solide (densité de flux $\Phi_S = k_S \cdot G_S$) et avec le liquide (densité de flux $\Phi_L = k_L \cdot G_L$), en fonction des gradients thermiques G_S et G_L du côté solide et liquide (en K/m , comptés positivement lorsque la température diminue vers le solide), et des conductivités thermiques k_L (côté liquide) et k_S (côté solide) en $W/m/K$. Si l'épaisseur de ce volume vaut $V_c \cdot dt$, il devient solide à $t+dt$ et on a :

$$H(t + dt) = H(t) - \phi_S S dt + \phi_L S dt \quad (2-1)$$

Avec $H = \rho \cdot V_c \cdot dt \cdot S \cdot h$ où h est l'enthalpie massique du fluide en J/kg (liquide à t , solide à $t+dt$), ρ la masse volumique, V_c la vitesse de croissance et S l'aire d'interface considérée ($S \cdot v \cdot dt$ est donc le volume élémentaire solidifié durant dt). En simplifiant par $S \cdot dt$ et en introduisant la chaleur latente de fusion/solidification :

$$L = h_L - h_S \text{ en } J/kg \quad (2-2)$$

On obtient le bilan thermique à l'interface :

$$k_S G_S - k_L G_L = \rho V_c \quad (2-3)$$

2.2.2 Vitesse de croissance et flux à extraire

Afin de calculer le flux minimum à retirer pour qu'il y ait solidification, indépendamment du gradient thermique dans le liquide, on réécrit le bilan thermique établi précédemment en négligeant le gradient thermique dans le silicium liquide par rapport à celui dans le solide. Le flux qui devra être cédé afin qu'il y ait solidification est alors :

$$\phi_{sol} = k_S G_S = \rho L V_c \quad (2-4)$$

L est la chaleur latente de solidification du silicium et vaut $1.5 MJ/kg$, la masse volumique du silicium solide ρ est égale à $2300 kg/m^3$.

Nous avons vu dans le 0, les données relatives aux vitesses de tirage des procédés ruban. Celle du procédé **RGS** est la plus élevée à ce jour, entre 3 et $10 m/mn$ (stade de R&D). Cette grande vitesse de tirage se justifie par le fait que la cristallisation a lieu sur le substrat (qui se déplace à la vitesse V_t), ce qui est une configuration favorable. Dans le cas du procédé ruban à mettre en œuvre suite à nos travaux, la cristallisation doit avoir lieu dans le creuset, ce qui complique le procédé par rapport à **RGS**. Ainsi, on partira, pour un début, sur des vitesses de tirage de l'ordre de $1 m/mn$, ce qui reste important comparé aux procédés de tirage vertical ($1-2 cm/mn$).

Le choix de la vitesse de tirage V_t impose la vitesse de croissance des grains solides V_c , qui dépend de l'épaisseur que l'on souhaite solidifier e_{Si} (on vise une épaisseur $\sim 200 \mu m$ pour ce procédé, celle des plaques issues de **RGS** sont $\sim 300 \mu m$, [Seren, Thèse 2007]) et de la distance sur laquelle le silicium est solidifié (l).

$$l \frac{V_c}{V_t} = \frac{e_{Si}}{l} \Rightarrow V_c = \frac{V_t \times e_{Si}}{l} \quad (2-5)$$

La vitesse de croissance correspondant à $V_c=1\text{m/mn}$ est de $V_c=1\text{mm/mn}$ (pour $l=20\text{cm}$ et $e_{\text{Si}}=200\mu\text{m}$). Pour l plus petite, V_c sera plus grande et inversement). C'est une vitesse très rapide puisque dans la littérature, la vitesse de croissance des procédés de solidification directionnelle est autour de 1 à 2cm/h (0,1-0,3mm/mn) [Müller *et al.*, 2006]. Avec des vitesses de croissance aussi élevées, l'association de la solidification directionnelle et du brassage est particulièrement intéressante grâce à la favorisation du phénomène de ségrégation, aussi bien pour la cristallisation d'un ruban de qualité solaire que pour la cristallisation de lingot. Nous avons cristallisé des lingots de silicium (~5cm de haut) et des couches de silicium (~2mm d'épaisseur) à des vitesses autour de 3mm/mn (Chapitre 5). Cette vitesse de croissance dépend du gradient thermique présent dans la couche limite située en avant de l'interface solide/liquide et reste 10 fois plus grande que la vitesse de croissance standard en solidification directionnelle.

Le flux minimum à évacuer lors de la solidification, ϕ_{sol} (sans gradient thermique dans le liquide) est alors donné par :

$$\phi_{\text{sol}} = k_S G_S = \rho L V_c = 2300 \times 1,5 \cdot 10^6 \times V_c = \begin{cases} 57,5 \frac{\text{kW}}{\text{m}^2} \text{ pour } V_c = 1\text{mm/mn} \\ 191,67 \frac{\text{kW}}{\text{m}^2} \text{ pour } V_c = 3\text{mm/mn} \end{cases} \quad (2-6)$$

Le flux ϕ_{sol} augmente avec la vitesse de croissance.

En tenant compte de la densité $k_L G_L$ du flux de chaleur apporté par le liquide, pour un même refroidissement coté solide, la vitesse de croissance sera plus faible, ce qui correspondra à une solidification plus lente dans le cas sans tirage, ou à un ruban plus mince dans le cas avec tirage à vitesse constante (dans ce dernier cas, on peut réduire la vitesse de tirage pour retrouver l'épaisseur désirée de la couche cristallisée).

2.2.3 Transfert thermique à travers le fond du creuset

Les transferts thermiques entre le silicium et le support du creuset, dont on suppose qu'on sait contrôler la température, ont lieu à travers le fond du creuset qui peut être opaque ou transparent au rayonnement. Sur la ligne de contact de deux matériaux différents (Figure 2–21), comme le contact n'est pas parfait, la température varie légèrement d'un bord à l'autre mais le flux se conserve. Ce saut de température est dû à l'existence d'une résistance thermique résultant du mauvais contact physique, surtout entre le silicium et le creuset où l'on veut qu'il y ait glissement. Cette résistance thermique, difficile à connaître avec précision, est définie par $R_c = \Delta T_c / \Phi_{\text{cond}}$ (où ΔT_c est la chute de température à travers ce contact imparfait, Φ_{cond} est la densité de flux de chaleur transférée par conduction à travers le creuset ; R_c s'exprime en $\text{K.m}^2/\text{W}$).

Nous avons fait nos calculs en prenant pour le contact silicium liquide/substrat, une valeur $R_c=0,001 \text{ K.m}^2/\text{W}$ obtenue expérimentalement dans d'autres projets pour un contact métal liquide/cuivre⁴; et en utilisant la même valeur de résistance pour le contact substrat/support. La résistance thermique totale de conduction est donc :

$$R_{\text{cond}} = 2R_c + \frac{e_f}{k_f} \quad (2-7)$$

Où le second terme exprime la résistance thermique du fond du creuset, d'épaisseur e_f et de conductivité thermique k_f .

⁴ Xiaodong Wang, communication interne, laboratoire EPM 2006

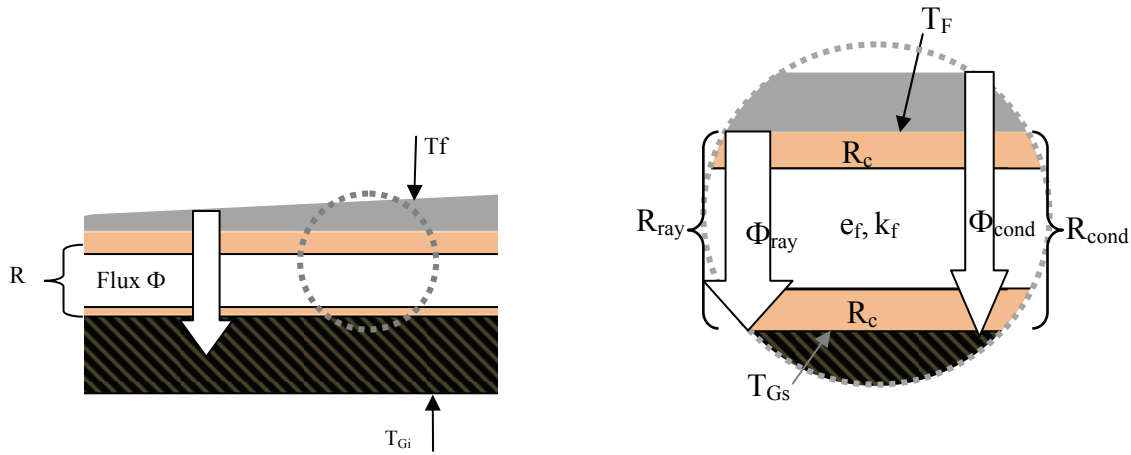


Figure 2-21 : Transfert thermique depuis la couche de silicium solide vers le substrat graphite, à travers le fond du creuset.

La résistance thermique de la couche de silicium solidifiée vaut au maximum, pour un tirage de ruban d'épaisseur $e_{Si}=200\mu m$, $R_{Si}=e_{Si}/k_{Si}\sim 3.10^{-6}K.m^2/W$ ($k_{Si}=64W/m/K$). Cette résistance étant très faible devant R_c , nous la négligerons par la suite. Nous considérons que la couche de silicium est isotherme à température $T_F=1410^\circ C$ (en toute rigueur, cette température de fusion n'est obtenue que sur la face supérieure de la couche).

En prenant $e_G=5mm$, la résistance thermique du graphite $R_G=e_G/k_G=1.10^{-4}K.m^2/W$, avec $k_G=50W/m/K$. Les températures des bords inférieur (T_{Gi}) et supérieur (T_{Gs}) du support sont donc bien distinctes. Il faut noter qu'une épaisseur supérieure à e_G pour la même valeur de T_{Gi} , correspond à une température T_{Gs} plus élevée. Cela veut dire en d'autres termes que le support est moins bien refroidi et donc qu'on extrait moins de flux par conduction (il faudra diminuer T_{Gi} dans ce cas pour extraire plus de flux par conduction).

Lorsque le fond du creuset est transparent, un flux de rayonnement de densité $\Phi_{ray}=\epsilon_{eq}\cdot\sigma\cdot(T_F^4-T_{Gs}^4)$ s'ajoute au flux de conduction $\Phi_{cond}=(T_F-T_{Gs})/R_{cond}$. Cette expression du flux radiatif, valable pour deux surfaces infinies en regard (facteur de forme égal à 1), fait intervenir la constante de Stefan-Boltzmann $\sigma=5,67.10^{-8}W/m^2/K^4$ et une émissivité équivalente ϵ_{eq} vérifiant

$$\frac{1}{\epsilon_{eq}} = \frac{1}{\epsilon_{Si}} + \frac{1}{\epsilon_{Gr}} - 1$$

(où ϵ_{Si} et ϵ_{Gr} sont les émissivités du silicium et du graphite). Nous avons adopté les valeurs $\epsilon_{Si}=0.5$ et $\epsilon_{Gr}=0.8$, que nous considérons comme des estimations par défaut, ce qui donne $\epsilon_{eq}=0.31$ pour une estimation minimale du transfert radiatif à travers un substrat transparent.

On peut définir par $R_{ray}=(T_F-T_{Gs})/\Phi_{ray}$ une résistance thermique correspondant au transfert par rayonnement. D'après ce qui précède cette résistance thermique vérifie :

$$\frac{1}{R_{ray}} = \epsilon_{eq}\cdot\sigma\cdot(T_F^2 + T_{Gs}^2)(T_F + T_{Gs}) \quad (2-8)$$

L'addition des flux donne $\Phi = \Phi_{cond} + \Phi_{ray} = (\frac{1}{R_{cond}} + \frac{1}{R_{ray}})(T_F-T_{Gs})e$ et permet de définir une résistance thermique totale $R_{tot} = \frac{T_F-T_{Gs}}{\Phi}$ correspondant à la mise en parallèle des résistances thermiques de rayonnement et de conduction :

$$R_{tot} = \left[\frac{1}{2R_c + \frac{e_f}{k_f}} + \varepsilon_{eq} \cdot \sigma \cdot (T_F^2 + T_{Gs}^2)(T_F + T_{Gs}) \right]^{-1} \quad (2-9)$$

Cette relation reste valable pour un creuset opaque en prenant $\varepsilon_{eq}=0$.

2.2.4 Conception du système d'extraction thermique

Nous avons calculé au paragraphe 2.2.2 le flux minimal à extraire pour la solidification : $57,5kW/m^2$ correspondant à une vitesse de croissance de 1m/mn. La Figure 2–22 schématise les différentes températures de contact de l'empilement graphite/creuset/silicium.

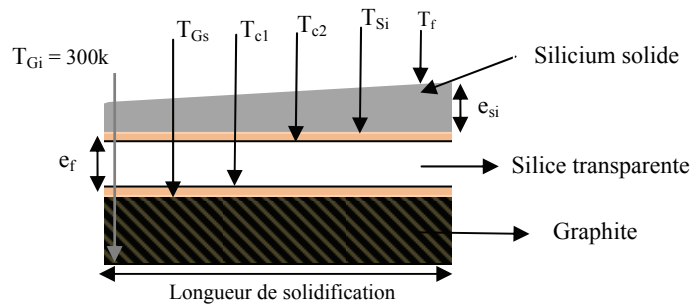


Figure 2–22 : Représentation des différentes températures au contact des différentes couches de matériau.

• Cas où le fond du creuset est opaque

L'extraction de chaleur se fait essentiellement par conduction ($\Phi_{cond} = (T_F - T_{Gs})/R_{cond}$, avec $R_{cond} = 2R_c + e_f/k_f$). Les paramètres pouvant jouer sur ce flux sont la température du support T_G , l'épaisseur du fond du creuset e_f et la conductivité thermique de ce matériau k_f .

Si on prend $T_{Gi}=300K$ (correspondant à $T_{Gs}=350K$), température minimale de support, le rapport e_f/k_f maximal envisageable pour le matériau constituant le fond du creuset est :

$$\frac{e_f}{k_f} = \frac{T_F - T_{Gs}}{\phi} - 2R_c = \begin{cases} 0,021 \text{ si } \phi = 57,5kW/m^2 \\ 0,005 \text{ si } \phi = 191,67kW/m^2 \end{cases} \quad (2-10)$$

Parmi la grande possibilité de matériaux envisageables pour le fond du creuset, on peut citer les réfractaires (céramiques) qui ont une conductivité thermique (à température ambiante) autour de $2,5W/m/K$ pour la zircone (ZrO_2/Y_2O_3) ou 26 à $35W/m/K$ pour l'alumine [Goodfellow, 2009] ; le graphite de conductivité thermique égale à $50W/m/K$ ou encore les métaux dont la température de fusion est supérieure à celle du silicium comme le tungstène $k \sim 100W/m/K$. Pour le choix de la zircone par exemple, il faudrait une épaisseur de matériaux très fine à haute température. Par contre, les matériaux de conductivité intermédiaire comme le graphite autorisent des épaisseurs plus grandes (de l'ordre de 1cm à 300K), mais nécessitent un contrôle très précis de la température. Quant aux métaux, ils présentent un risque de pollution à de telles températures ($T=1625,5^\circ K$ au point de contact).

Nous avons choisis des creusets en quartz (conductivité thermique égale à $2W/m/K$) pour nos expériences, qui ne permettent pas d'évacuer le flux par conduction, mais qui sont transparents au rayonnement.

- **Cas où le fond du creuset est transparent**

Si on considère un creuset en quartz transparent par exemple, les échanges de chaleur ont lieu par rayonnement et par conduction. La température T_{Gs} correspondant à l'extraction de $57,5kW/m^2$ est :

$$T_{Gs} = \left[T_F^4 - \frac{\phi \left(\frac{1}{\epsilon_{Si}} + \frac{1}{\epsilon_{Gr}} - 1 \right)}{\sigma} \right]^{-1/4} = 1548K \text{ par rayonnement}$$

$$T_{Gs} = T_F - \left(\frac{e_f}{k_f} + 2R_c \right) \times \phi = 1424K \text{ par conduction}$$

Ce qui montre déjà la prépondérance du transfert par rayonnement, puisqu'on peut se permettre une température plus chaude pour évacuer le même flux.

Le flux maximum extractible, par rayonnement ($\epsilon_{Si}=0,5$; $\epsilon_{Gr}=0,8$) et par conduction ($e_f=5mm$ et $k_f=2W/m/K$), à travers un fond de creuset en quartz, lorsque la température de support $T_G=300K$, est :

$$\phi_r = \frac{\sigma(T_F^4 - T_{Gs}^4)}{\frac{1}{\epsilon_{Si}} + \frac{1}{\epsilon_{Gr}} - 1} = 202kW/m^2 ; \phi_{cond} = \frac{T_F - T_{Gs}}{\frac{e_f}{k_f} + 2R_c} = 307kW/m^2$$

Ces valeurs montrent que la conduction est assez efficace lorsque la température de support est très froide, comme on peut le voir sur la Figure 2–23 ci-dessous. En effet, jusqu'à $T_G=700k$, on voit bien que le flux extrait par conduction est supérieur à celui extrait par rayonnement, mais cette tendance s'inverse pour les grandes valeurs de température de support, pour lesquels le flux rayonné est plus important et peut même valoir le double du flux conductif, quand on a par exemple $T_G=1600K$ ($\Phi_r=27kW$ et $\Phi_{cd}=13kW$, soit $\Phi_{tot}=40kW$ pour le substrat à fond transparent).

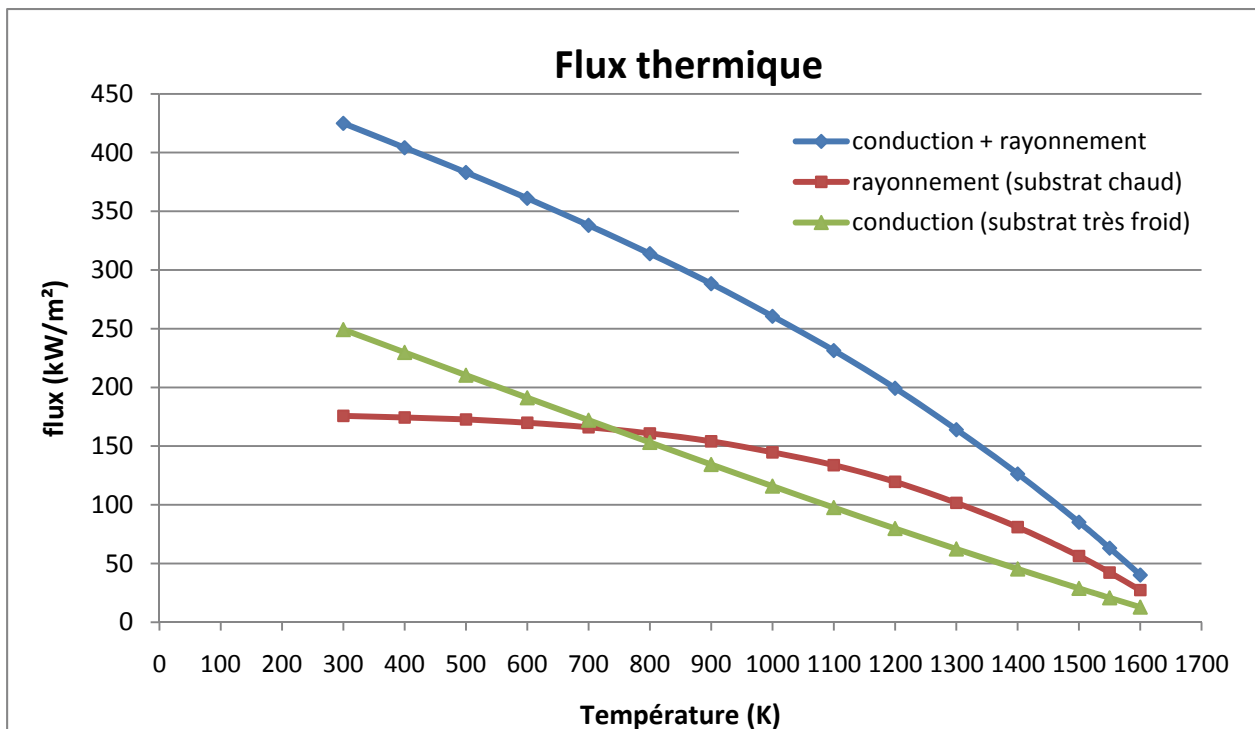


Figure 2–23 : Flux extractible par un substrat en quartz opaque (conduction) et un substrat en quartz transparent (rayonnement + conduction) pour différentes températures de support.

Remarque : Les données présentées sur la Figure 2–23 ont été calculées grâce à un calcul itératif monodimensionnel : il s'agit de calculer la résistance thermique de rayonnement à partir des

températures de fusion et de support, ce qui permet d'avoir $\Phi_r = (T_F - T_{Gs})/R_{ray}$, et $\Phi_{tot} = (T_F - T_G)/R_{tot}$ (expression de R_{Tot} cf. équation (2-9)), et on en tire $\Phi_{cd} = \Phi_{tot} - \Phi_r$.

En pratique, le support en question étant un système de chauffage résistif dont le but est de fournir la puissance nécessaire à la fusion du silicium, sa température est toujours assez élevée (entre 1450 et 1500°C).

L'importance des transferts par rayonnement nous amène à choisir un creuset transparent (quartz, dont l'épaisseur et la conductivité thermique importent peu) et à prévoir un contrôle thermique précis du support, dont le dimensionnement passe par le calcul de la chaleur induite par le système inductif, d'où le besoin de calculs numériques axisymétriques et tridimensionnels qui seront présentés dans les Chapitres 3 et Chapitre 4.

Le transfert par rayonnement présente un deuxième avantage par rapport au cas de la conduction : il est indépendant de la résistance de contact, qui risque en plus de varier lors d'un tirage de ruban.

2.3 Conclusion

En résumé, le dimensionnement thermique effectué ici nous montre la faisabilité du procédé de cristallisation de ruban de silicium que nous avons présenté, à condition d'utiliser un creuset à fond transparent. Cependant, il faut tenir compte de la grande sensibilité du contrôle thermique du support (en graphite) qui est également chauffé par le système de rétention.

Pour le prototype de laboratoire, nous avons étudié ce chauffage inductif par modélisation numérique (Chapitre 3) afin de nous guider dans l'étude de la rétention (Chapitre 4). Ce modèle numérique est également applicable au futur procédé ruban. Il permet aussi d'estimer des vitesses de brassage, ce qui nous a guidés dans le choix des fréquences.

Chapitre 3 Dimensionnement électromagnétique

Ce chapitre présente le modèle numérique bidimensionnel (ou plus exactement axisymétrique) utilisé pour les calculs électromagnétiques et hydrodynamiques de dimensionnement de l'installation. Ces calculs sont nécessaires pour

- Définir l'intensité et la fréquence du courant dans l'inducteur pour assurer la rétention électromagnétique du silicium liquide car le générateur utilisé au laboratoire est capable de fournir jusqu'à $100kW$ à des fréquences allant de $5kHz$ à $300kHz$ ce qui nous laisse une très large plage de possibilités. L'équilibre de la surface libre située dans la fente dépend de l'inertie du fluide dans le creuset qui est mis en mouvement par brassage électromagnétique, nous calculerons également ce brassage.
- Evaluer, en première approche, la puissance Joule induite dans le silicium liquide, et surtout dans les éléments en graphite (support ou résistors) afin de prévoir les effets additionnels de l'induction sur la thermique et donc sur la cristallisation. Ceci prend toute son importance pour les procédés rubans puisque nous avons vu que la vitesse de croissance est essentiellement pilotée par la température du support, donc l'uniformité de l'épaisseur du ruban dépend directement de l'homogénéité de cette température.

Les calculs de dimensionnement ont été réalisés avec le logiciel Fluent et un module d'induction développé au groupe EPM [Delannoy *et al.*, 2002a], fonctionnel en 2D axisymétrique. Ces calculs, ainsi que les modèles utilisés, sont présentés ci-dessous.

Des calculs plus poussés ont été menés en tridimensionnel, pour analyser les phénomènes physiques observés dans les expériences, en utilisant le logiciel Comsol (pour l'électromagnétisme), et Fluent en 3D pour décrire plus précisément l'écoulement, la rétention électromagnétique et la ségrégation à la solidification. Ces calculs tridimensionnels seront décrits dans les chapitres suivants en parallèle avec les expériences qu'ils modélisent.

3.1 Le phénomène d'induction, et l'effet de peau électromagnétique

3.1.1 Histoire

Michael Faraday (1791-1867) découvrit en 1831 [Hammond et Sykulski 1994] une des lois fondamentales de la physique et de l'électromagnétisme lors d'une expérience avec deux bobines l'une étant alimentée par une source de courant (bobine primaire) et l'autre reliée à un galvanomètre (bobine secondaire). Lorsque la bobine primaire est parcourue par un courant alternatif, un courant transitoire apparaît dans la secondaire. Il conclut que cet effet est dû à l'action des flux magnétiques : c'est la loi de Faraday qui stipule que les variations du flux du champ magnétique sont la cause de l'apparition des courants électriques induits (et donc d'une tension induite).

Lenz constata en 1833 [Cordier 2007] que les courants induits s'opposent par leurs effets à la cause qui leur a donné naissance et compléta la loi de Faraday décrite par l'expression suivante :

$$e = \oint \vec{E} \cdot d\vec{l} = -\frac{d\phi}{dt} \quad (3-1)$$

Cette formule décrit la loi de Lenz-Faraday et met en évidence le phénomène d'induction électromagnétique qui est depuis largement utilisé pour diverses applications comme la production

d'électricité avec les alternateurs. Il faut noter que lorsque le courant inducteur est continu, il n'y a pas de variation de flux et donc pas de courant induit.

3.1.2 Application

Plus précisément, si on considère un système composé d'une charge quelconque (de conductivité électrique non nulle) et d'un inducteur (une ou plusieurs spires) comme schématisé sur la Figure 3–1 ci-dessous, lorsque l'inducteur est parcouru par un courant alternatif $\mathbf{I}$, il provoque une induction magnétique alternative $\mathbf{B}$ (mesurée en T) selon la loi d'Ampère. Il se crée alors dans la charge, conformément à la loi de Faraday, un courant induit de densité $\mathbf{j}$ (en A/m^2) et de sens opposé à celui de $\mathbf{I}$. De plus, l'interaction du courant $\mathbf{j}$ et de l'induction magnétique $\mathbf{B}$ provoque l'apparition d'une force électromagnétique de densité volumique $\mathbf{F}_{EM}=\mathbf{j}\times\mathbf{B}$ appelée force de Lorentz.

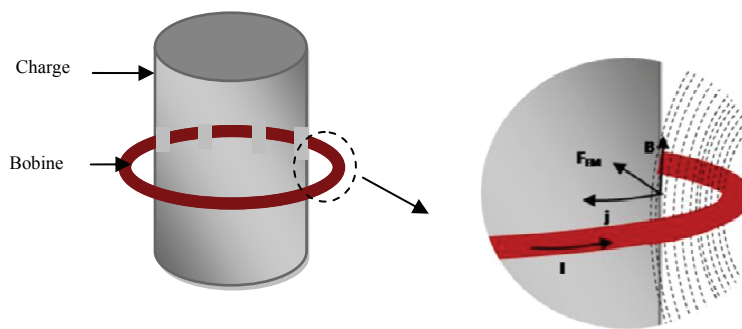


Figure 3–1 : Schéma d'une charge et d'un inducteur.

Si la charge est suffisamment conductrice, le courant induit $\mathbf{j}$ crée à son tour un champ magnétique qui s'oppose au champ inducteur et l'annule à l'intérieur de la charge, selon la loi de Lenz. Pour une grande conductivité σ (en $\Omega^{-1}m^{-1}$), le champ et le courant diminuent exponentiellement lorsqu'on s'enfonce dans la charge, sur une taille caractéristique $\delta = (2/\mu_0\sigma\omega)^{1/2}$, où $\mu_0=4\pi\cdot 10^{-7} H/m$ est la perméabilité magnétique du vide (les matériaux utilisés ne sont pas ferromagnétiques), et $\omega=2\pi f$ est la pulsation du champ électromagnétique. Cette taille δ est l'épaisseur de peau électromagnétique et vaut typiquement quelques mm dans le silicium pour les fréquences utilisées lors de nos expériences (Tableau 3–1).

	Cuivre ($5,8\cdot 10^7 \Omega^{-1}$)	Silicium ($1,25\cdot 10^6 \Omega^{-1}$)	Graphite ($5\cdot 10^4 \Omega^{-1}$)
$\delta_{25kHz} (mm)$	0,4	2,9	14
$\delta_{30kHz} (mm)$	0,38	2,6	13
$\delta_{50kHz} (mm)$	0,3	2	10
$\delta_{100kHz} (mm)$	0,2	1,4	0,7
$\delta_{300kHz} (mm)$	0,1	0,8	0,4

Tableau 3–1 : Epaisseur de peau électromagnétique dans le cuivre, le silicium et le graphite pour différentes fréquences.

Dans le cas de ces fines peaux électromagnétiques (faible épaisseur de peau devant la taille de la charge), la force de Lorentz est pratiquement normale à la surface de la charge, vers l'intérieur, et

décroit exponentiellement lorsqu'on s'enfonce (avec une longueur caractéristique de $\delta/2$). On peut alors l'assimiler à une pression, comme on le verra plus loin.

3.2 Quantification des effets du champ électromagnétique

3.2.1 Répulsion et brassage

Pour le cas qui nous intéresse ici (Figure 3–2), l'inducteur est constitué d'une seule spire et la charge est l'ensemble formé par le creuset contenant le silicium et le résistor en graphite lui servant de support. Le premier rôle de l'inducteur est de créer une force normale à la surface libre, qui repousse le silicium liquide vers l'intérieur.

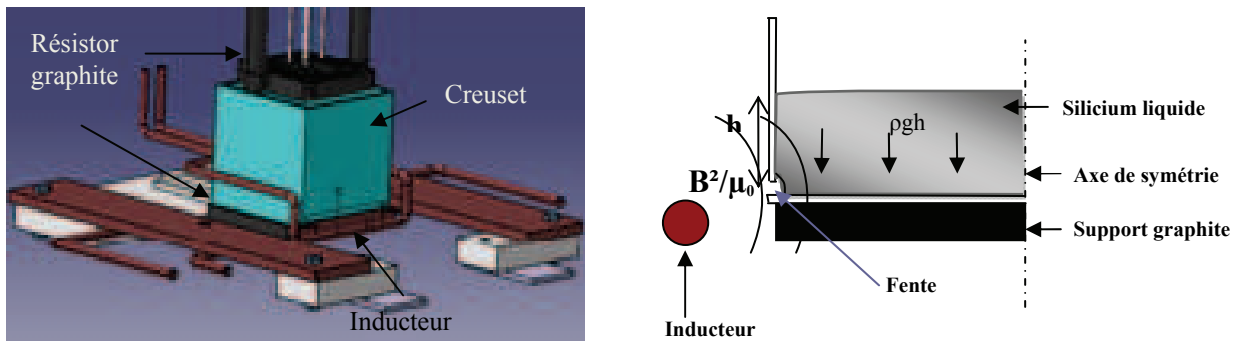


Figure 3–2: Schéma 3D (gauche) et axisymétrique (droite), représentant l'inducteur, le creuset et les résistors ou le support.

Tout système de répulsion électromagnétique crée aussi du brassage, qui représente donc le second effet de l'induction, comme on peut le voir en décomposant la force électromagnétique par unité de volume (N/m^3) en une partie irrotationnelle et une partie rotationnelle. Pour cela on repart de l'expression de la force de Lorentz :

$$\vec{F}_{EM} = \vec{j} \times \vec{B} \quad (3-2)$$

L'équation (3–2) se décompose en deux termes quand on y introduit l'équation de Maxwell-Ampère qui est

$$\vec{j} = \frac{1}{\mu_0} \text{rot} \vec{B} \quad (3-3)$$

Et on obtient

$$\vec{F} = \left(\text{rot} \frac{\vec{B}}{\mu_0} \right) \wedge \vec{B} = \underbrace{\left(\frac{\vec{B}}{\mu_0} \cdot \text{grad} \right) \vec{B}}_{(1)} - \underbrace{\text{grad} \left(\frac{B^2}{2\mu_0} \right)}_{(2)} \quad (3-4)$$

Le premier terme (1) constitue la partie rotationnelle et a pour effet de provoquer du brassage dans le fluide en le mettant en mouvement. C'est cet effet que nous utilisons dans cette étude afin de créer un brassage électromagnétique fort permettant l'amélioration de la ségrégation des impuretés (Figure 3–3).

Quant au second terme (2), c'est la partie irrotationnelle qui représente le gradient de la pression magnétique

$$P_m = \frac{B^2}{2\mu_0} \quad (3-5)$$

Tout se passe comme si la peau électromagnétique exerçait une répulsion sur le fluide, égale à la valeur de P_m calculée avec le champ extérieur : en effet, l'intégrale des forces volumiques normales sur l'épaisseur totale de la peau donne une force surfacique égale à P_m . C'est l'effet que nous exploitons pour l'étude de la rétention électromagnétique. En négligeant les forces d'inertie du fluide en mouvement (forces surfaciques d'ordre de grandeur ρV^2 , où ρ est la masse volumique du fluide et V l'ordre de grandeur de sa vitesse), on obtient l'équilibre dans la fente lorsque la pression magnétique équilibre la pression hydrostatatique du fluide :

$$P_m \sim P_{\text{pesantueur}} \quad (3-6)$$

Avec

$$P_{\text{pesantueur}} = \rho gh \quad (3-7)$$

$P_{\text{pesantueur}}$ est la pression hydrostatatique exercée au niveau de la fente par le fluide (de masse volumique ρ) lorsqu'il occupe la hauteur h dans le creuset (Figure 3–3 Figure 3–3). Les différentes pressions sont exprimées en Pascal (Pa).

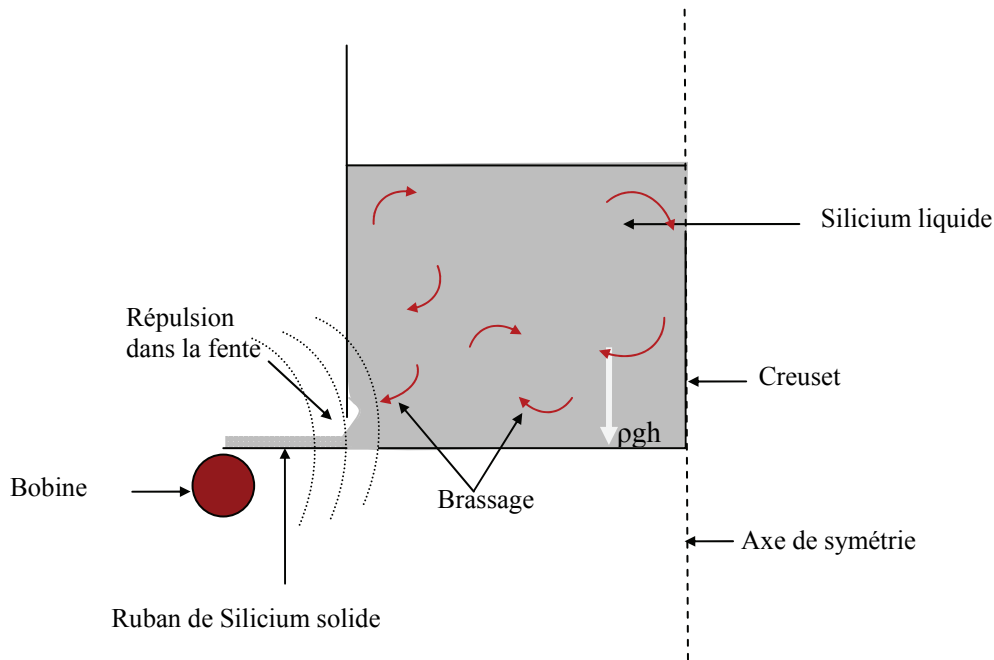


Figure 3–3 : Illustration du brassage et de la rétention électromagnétique dans le procédé ruban.

3.2.2 Puissance Joule induite

Un troisième effet dû à l'induction magnétique, non moins important que les deux précédents énumérés ici, est le chauffage induit dans les charges, encore appelé puissance Joule induite. En effet, la charge étant résistive, l'apparition des courants induits (ou courants de Foucault) a pour conséquence une dissipation de chaleur par effet joule dont la densité volumique de puissance s'exprime en tout point à l'aide de la densité de courant par :

$$\Psi = \frac{J^2}{\sigma} \text{ (W/m}^3\text{)} \quad (3-8)$$

Cette loi est l'équivalent local de la loi macroscopique $P=RI^2$ donnant la puissance totale P (en W) dissipée dans un conducteur de résistance R (en Ω) traversé par un courant I (en A).

Le chauffage induit, généralement utilisé dans les procédés de fusion ou de chauffage de métaux dans l'industrie (par exemple le principe du creuset froid inductif), nous sera utile lors de la phase de fusion du silicium (une fois qu'elle aura été amorcée par les systèmes de chauffage résistifs). Par contre, elle risque d'être assez gênante lors de la phase de cristallisation. De plus, le système expérimenté compte en plus du silicium liquide d'autres matériaux suffisamment conducteurs pour être également chauffés par couplage avec l'induction : c'est le cas des résistances chauffantes en graphite, notamment celle du bas, placée quasiment en regard de l'inducteur (Figure 3-4 ci-dessous).

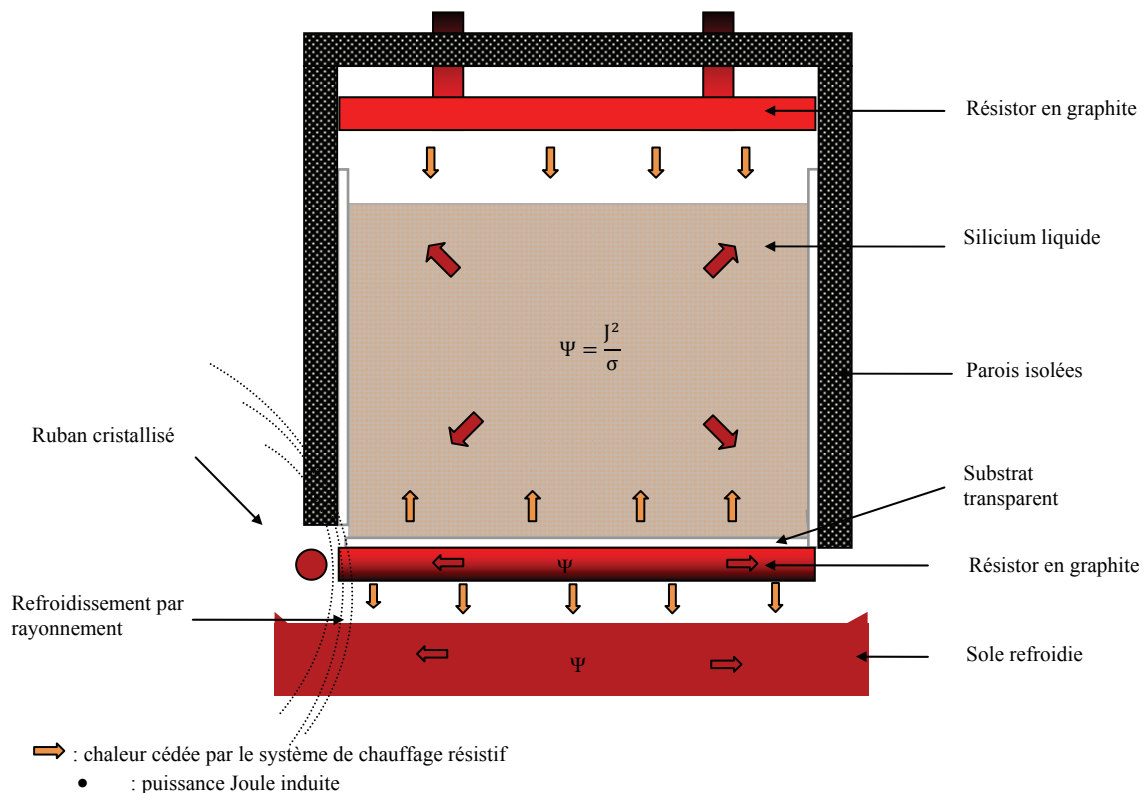


Figure 3-4 : L'induction induit un chauffage par effet Joule dans les matériaux qui sont à sa portée. Cela a un effet négatif pour les éléments qui doivent rester thermiquement indépendants, comme le résistor bas.

Il est donc indispensable de quantifier le couplage de l'induction avec cette résistance par des calculs électromagnétiques afin de choisir judicieusement les configurations qui le minimisent au mieux dans le but de rendre le contrôle thermique indépendant de la rétention électromagnétique.

3.3 Modélisation des calculs en électromagnétisme

3.3.1 Les équations de Maxwell

La résolution d'un problème électromagnétique consiste en général à trouver des solutions aux équations de Maxwell, qui sont les suivantes :

Maxwell–Ampère:

$$\overrightarrow{\text{rot}}\vec{B} = \mu_0\vec{J} + \mu_0\epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (3-9)$$

Lenz–Faraday:

$$\overrightarrow{\text{rot}}\vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (3-10)$$

Maxwell-Gauss :

$$\text{div}\vec{E} = \frac{\rho_e}{\epsilon_0} \quad (3-11)$$

Conservation du flux du champ magnétique :

$$\text{div}\vec{B} = 0 \quad (3-12)$$

A ces équations s'ajoute l'équation de continuité des courants (ou conservation de la charge)

$$\text{div} \cdot \vec{J} = -\frac{\partial \rho_e}{\partial t} \quad (3-13)$$

Les équations de Maxwell peuvent également s'écrire en fonction du champ magnétique $\vec{H}$ (A/m) et du déplacement électrique $\vec{D}$ (C/m²), qu'on introduit pour un matériau non polarisable et non magnétique par les lois de comportement $\vec{B} = \mu_0\vec{H}$ et $\vec{D} = \epsilon_0\vec{E}$

$\vec{B}$ =l'induction magnétique (T)

$\vec{J}$ =densité de courant volumique (A /m²)

$\vec{E}$ =champ électrique (V/m)

ρ_e =densité de charge électrique (C/m³)

Dans le cas particulier que nous souhaitons modéliser, il est possible de simplifier les équations de Maxwell en se mettant dans l'approximation quasi stationnaire, [Planck, 2005] : le temps de propagation des ondes électromagnétiques est négligeable devant la période du signal.

Ainsi, la divergence de la densité de courant est nulle ($\text{div}.\vec{J} = 0$) et on ne tient plus compte du courant de déplacement $\epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$ (qui permet de tenir compte des régimes variables dans Maxwell-Ampère).

On peut alors introduire les potentiels scalaire V et vecteur $\vec{A}$ qui se définissent comme suit :

$$\vec{B} = \overrightarrow{\text{rot}} \vec{A} \quad (3-14)$$

$$\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}} V - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad (3-15)$$

Les potentiels $\vec{A}$ et V n'étant définis que par leurs dérivées, il ya une possibilité infinie de solutions (V est défini à une constante près et $\vec{A}$ à un gradient près. On fait intervenir une équation supplémentaire : $\text{div} \vec{A} = 0$, appelée jauge de Coulomb, permettant d'avoir une solution unique.

3.3.2 Résolution par Comsol et Fluent (module d'induction)

Les deux équations résolues dans le logiciel Comsol, que nous utiliserons pour nos calculs 3D, sont obtenues en exprimant l'équation de Maxwell-Ampère (3-9) et l'équation de continuité de la densité de courant (3-13) en fonction des potentiels [Comsol 2007] :

$$\overrightarrow{j\omega A} + \vec{\nabla} \wedge \left(\overrightarrow{\text{rot}} \frac{\vec{A}}{\mu_0} \right) - \sigma \vec{\nabla} \wedge (\overrightarrow{\text{rot}} \vec{A}) - \sigma \overrightarrow{\text{grad}} V = 0 \quad (3-16)$$

$$-\text{div}.(j\omega \sigma \vec{A} + \sigma \overrightarrow{\text{grad}} V) = 0 \quad (3-17)$$

Où le terme $\sigma \vec{\nabla} \wedge (\overrightarrow{\text{rot}} \vec{A})$ (courant créé par le déplacement du conducteur dans le champ magnétique) est négligeable.

Les grandeurs considérées sont sinusoïdales ce qui nous permet de représenter toutes les grandeurs électromagnétiques par un nombre complexe indépendant du temps (le « phaseur ») plutôt qu'une fonction réelle du temps. Les équations sont alors réécrites à l'aide de ces phaseurs, et sont résolues directement dans l'espace complexe pour le cas de Comsol (lorsqu'on choisit une analyse de type « time harmonic »). Pour le module d'induction ajouté à Fluent, les équations sont décomposées en une partie réelle et une partie imaginaire. Une étude comparative de ces deux codes est présentée en Annexe B.

La force de Lorentz et la puissance de chauffage ont pour moyenne des valeurs réelles calculées à partir des amplitudes complexes $\vec{F} = \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{J} \times \vec{B}^*)$: et $\bar{\psi} = \frac{I \cdot J^*}{2\sigma}$. Leurs fluctuations sont sans effet à cause de la grande inertie thermique et mécanique du fluide.

Dans le cas d'un problème axisymétrique tel que ceux résolus par le module d'induction du laboratoire, le potentiel vecteur $\vec{A}$ du champ magnétique ne possède qu'une seule composante non nulle A_θ , et l'équation de l'induction (3-18) s'écrit :

$$\Delta A_\theta - \frac{A_\theta}{r^2} = \mu \sigma \left(\mathbf{V}_\theta + \mathbf{u}_x \frac{\partial A_\theta}{\partial x} + \frac{\mathbf{u}_r}{r} \frac{\partial r A_\theta}{\partial r} + \frac{\partial A_\theta}{\partial t} \right) \quad (3-18)$$

Alors que la loi d'Ohm, permettant d'exprimer la densité de courant en fonction du champ électrique s'écrit :

$$\vec{j} = \sigma \left(-\overrightarrow{\text{grad}} V + \vec{u} \wedge \vec{B} - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \quad (3-19)$$

L'équation de continuité des courants (3-17) est automatiquement vérifiée en axisymétrie du fait de la symétrie de révolution. Une entorse à cette symétrie est faite dans l'inducteur, où on suppose qu'il existe un gradient $dV/d\theta$ du potentiel électrique, fourni par le générateur. L'équation 3-19 écrite dans l'inducteur permet de coupler ce terme d'alimentation électrique au reste du problème.

Le module d'induction permet de modéliser des problèmes magnétohydrodynamique par un couplage fort de la thermo-hydraulique et de l'électromagnétisme. Ce couplage est pris en compte dans le même code qui calcule la thermo-hydraulique et l'électromagnétisme, et qui résout les deux problèmes par la même boucle d'itérations. Il a été validé expérimentalement dans le cadre d'un transfert de masse monophasique dans du mercure [Delannoy *et al.*, 2002a] et est utilisé depuis pour modéliser des procédés de purification de silicium par plasma [Alemany *et al.*, 2002], [Delannoy *et al.*, 2002b] .

Dans les problèmes de magnétohydrodynamique, les équations qui régissent l'écoulement contiennent des termes supplémentaires afin de tenir compte du couplage des champs magnétique $\vec{B}$ et de vitesse $\vec{u}$. Ainsi, l'équation de quantité de mouvement dans notre cas s'écrit

$$\rho(\vec{u} \cdot \overrightarrow{\text{grad}})\vec{u} = \nabla \cdot \left[\mu \left(\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^T \right) - \frac{2}{3} \nabla \vec{u} \right] \Delta - \nabla p + \vec{F}_g + \vec{F}_{EM} \quad (3-20)$$

[ANSYS, 2009], I est le tenseur unité, $\vec{u}$ représente le champ de vitesse dans le creuset (m/s), ν la viscosité cinématique du silicium liquide (m^2/s), ρ sa masse volumique (kg/m^3), $\vec{F}_g$ la force volumique de pesanteur et $\vec{F}_{EM}$ la force de Lorentz en (N/m^3)

L'équation de l'énergie s'écrit :

$$\underbrace{\text{div}(\vec{u}(\rho E + p))}_{\text{convection}} = \underbrace{\text{div}[k_{eff} \overrightarrow{\text{grad}} T]}_{\text{conduction}} + \underbrace{(\vec{\tau}_{eff} \cdot \vec{u})}_{\text{viscosité}} + \underbrace{\frac{j^2}{\sigma}}_{\text{Puissance induite}} \quad (3-21)$$

De gauche à droite on a le terme de convection, de transfert par conduction, de dissipation visqueuse et de puissance induite. k_{eff} ($W/m/K$) est la conductivité effective, somme de la conductivité thermique du matériau et de la conductivité thermique turbulente k_t dont la valeur dépend du modèle de turbulence choisit pour le calcul. j est la densité de courant (A/m^2) et σ la conductivité électrique ($\Omega^{-1}m^{-1}$) [ANSYS, 2009].

La résolution des équations (3-18) et (3-20) permet de calculer le champ de vitesse représentant le brassage créé par les forces électromagnétiques dans le fluide.

3.4 Conditions de modélisation

3.4.1 Maillage

Pour les expériences, nous utilisons un creuset cubique de 10cm de côté, rempli de blocs de silicium solide. Il s'avère qu'une fois le silicium fondu, la hauteur de silicium liquide est

équivalente à peu près à 50% de la hauteur de remplissage. Cette raison nous conduit donc à considérer 5cm de hauteur de silicium dans les calculs. Le quartz étant un matériau isolant électrique, il n'est pas nécessaire de modéliser le creuset dans son épaisseur (5mm).

Pour calculer la répulsion et le brassage électromagnétique, les modèles de calcul que nous avons choisi utilisent le champ de force électromagnétique $\vec{F}_{EM}$ sans le décomposer en partie rotationnelle et irrotationnelle, et en décrivant la charge sans hypothèse de fine peau, ce qui implique un maillage raffiné dans la zone de peau électromagnétique. Le silicium et le cuivre ont une grande conductivité électrique. Nos expériences ont lieu sous une fréquence de 25 à 30 kHz, l'épaisseur de peau électromagnétique est très faible dans ce cas (Tableau 3-1).

Les maillages du calcul bidimensionnel doivent donc contenir plusieurs mailles dans l'épaisseur de peau (Figure 3-5) pour un calcul plus précis de l'électromagnétisme par le module d'induction lorsqu'on se situe dans le régime des fines peaux électromagnétiques. Le calcul 3D ne nécessitera pas un maillage aussi fin, grâce en particulier à une condition aux limites d'impédance de frontière offerte par le logiciel Comsol pour les cas à très fine peau électromagnétique, et qui permet de ne pas mailler du tout le cuivre, et le silicium pour les calculs thermiques.

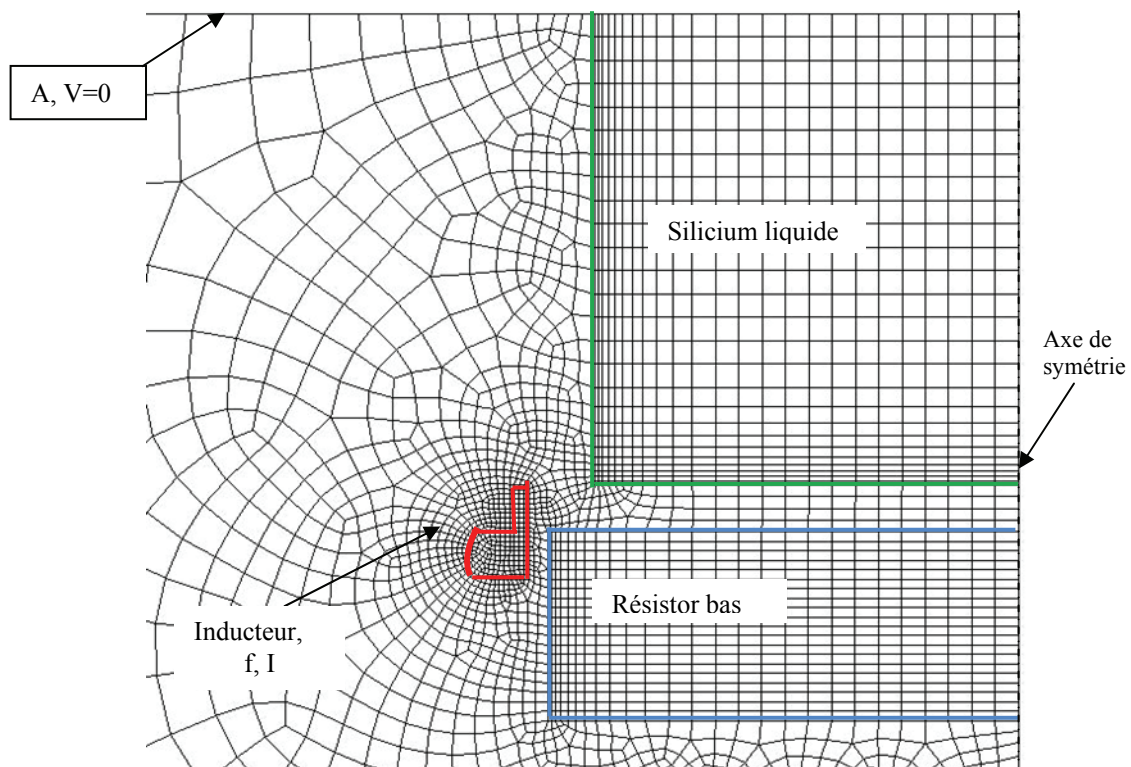


Figure 3-5 : Exemple de maillage 2D axisymétrique. Les mailles sont raffinées dans l'épaisseur de peau électromagnétique.

3.4.2 Conditions aux limites

Deux configurations cylindriques (diamètre de creuset = 10cm) ont été considérées : l'inducteur placé au dessus et en dessous de la base de la fente (Figure 3-6). Le silicium est placé au

dessus du support graphite, représenté par un cylindre de 2cm de haut et 10cm de diamètre, et séparé du silicium par une hauteur de 5mm correspondant à l'épaisseur du creuset.

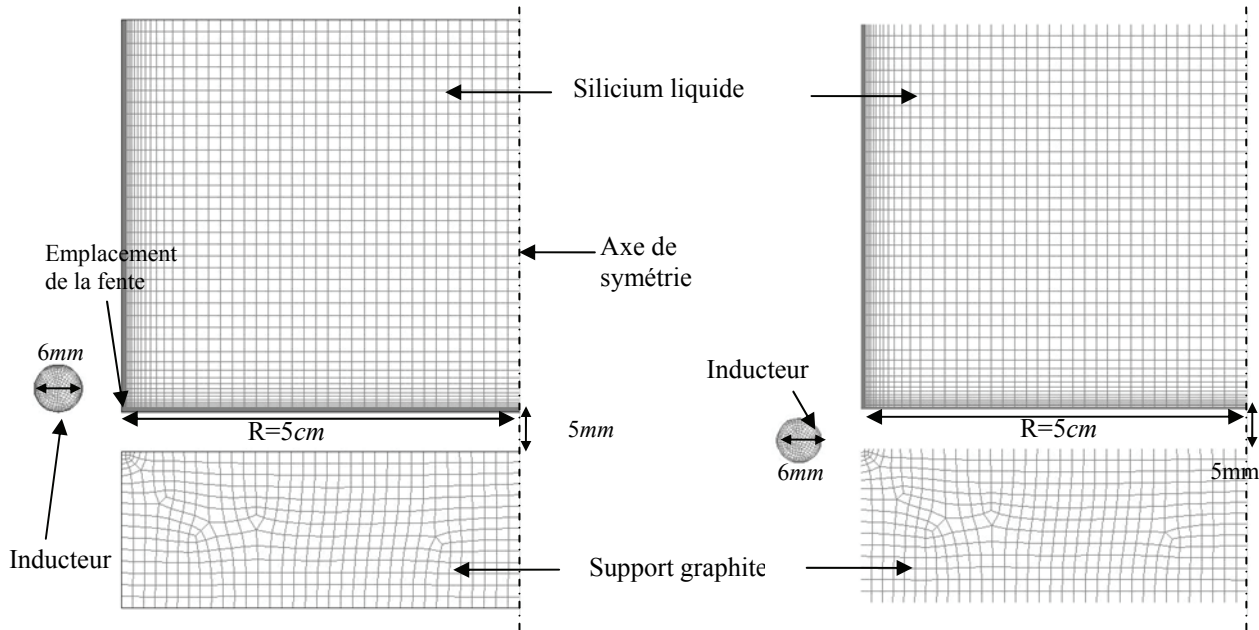


Figure 3-6 : Maillage des deux configurations modélisées avec le module d'induction. La spire est placée à 1mm en dessous ou au dessus du fond du silicium.

L'ensemble inducteur et charges est modélisé dans un domaine possédant les propriétés de l'atmosphère, où les champs électromagnétiques sont également calculées. Seules les équations de l'électromagnétisme et de l'écoulement sont calculées. Les potentiels A et V sont nuls sur les frontières de l'atmosphère. Toutes les frontières internes sont soumises à des conditions de continuité (Figure 3-5).

Les paramètres électriques sont: le courant (alternatif) alimentant l'inducteur et sa fréquence d'oscillation. Expérimentalement, nous avons la possibilité d'utiliser une très large gamme de fréquence, de 5 à 300kHz, d'où la nécessité de déterminer par calculs la gamme la plus favorable pour notre cas. Ainsi, nous avons balayé la gamme 5-300kHz pour différents courants (de 800 à 2000A).

L'analyse du chauffage induit dans le silicium et le graphite ainsi que des vitesses de brassage calculées dans le silicium nous permettra de choisir a priori la meilleure position pour l'inducteur (au dessus ou en dessous de la fente) et surtout les courant et fréquences inducteur les plus convenables. Nous calculerons alors pour la configuration et les paramètres électriques choisis la hauteur de fente correspondante pour le creuset.

3.5 Résultats de dimensionnement

3.5.1 Chauffage induit

Les puissances représentées sur les graphiques qui suivent sont des valeurs intégrées dans le volume silicium et le volume graphite.

$$P_J = \iiint_V \Psi \, dv \, (\text{W}) \quad (3-22)$$

Avec $V = \pi \times 5^2 \times 5 = 392,7 \text{ cm}^3$ pour le silicium et $v = \pi \times 5^2 \times 2 = 157 \text{ cm}^3$ pour le graphite.

La puissance volumique Ψ qui dépend du courant induit dans la charge et de la conductivité électrique de la charge (3-8) dépend également de la fréquence puisque le courant inducteur oscille à la fréquence f . La modélisation pour différentes valeurs de fréquence et de courant nous a donné des informations intéressantes sur l'évolution de la puissance induite dans les charges.

a. Cas de la bobine au dessus de la fente

Dans cette configuration, l'inducteur étant positionné en face du silicium, les interactions entre induction électromagnétique et charge sont plus fortes dans le silicium que dans le graphite (Figure 3–7).

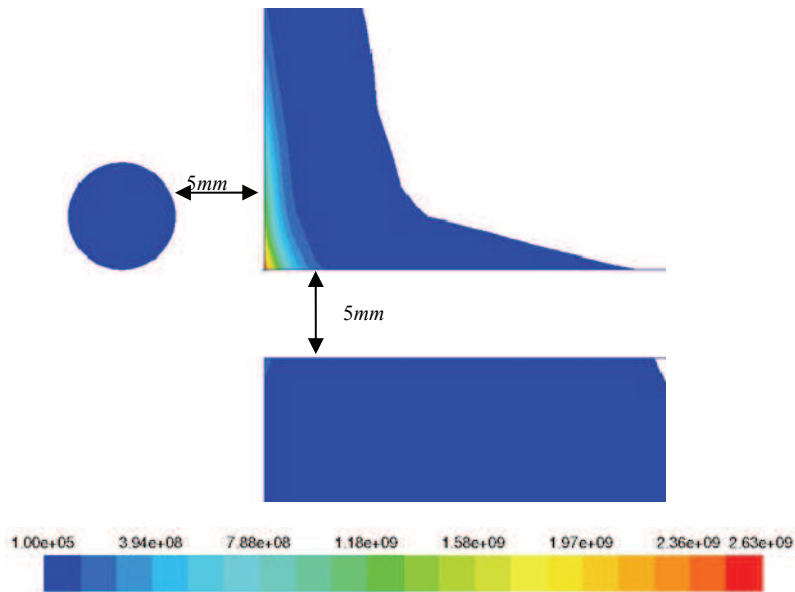


Figure 3–7 : Puissance Joule induite dans le silicium et le graphite (W/m^3).

Les résultats représentés sur la Figure 3–8 et la Figure 3–9 montrent les puissances induites dans les deux charges qui augmentent nettement en fonction du courant et de la fréquence inducteurs.

Si on considère les deux extrêmes, on constate que dans le silicium, à fréquence fixée à 5 kHz par exemple, P_J passe de 414 W pour 800 A à $2,58 \text{ kW}$ à 2000 A . A 300 kHz et 2000 A , la puissance induite dans le silicium est de 26 kW et celle dans le graphite est de $13,6 \text{ kW}$.

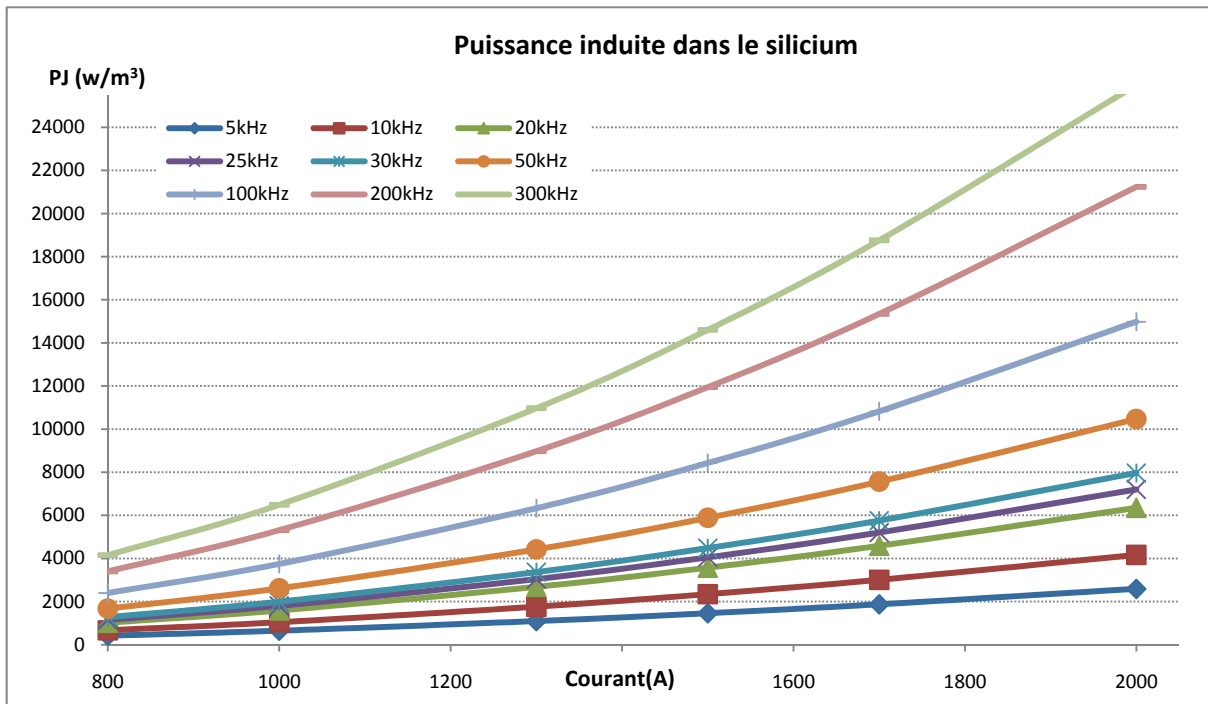


Figure 3-8 : Evolution de la puissance induite dans le silicium en fonction du courant et de la fréquence, configuration de la bobine au dessus du fond du creuset.

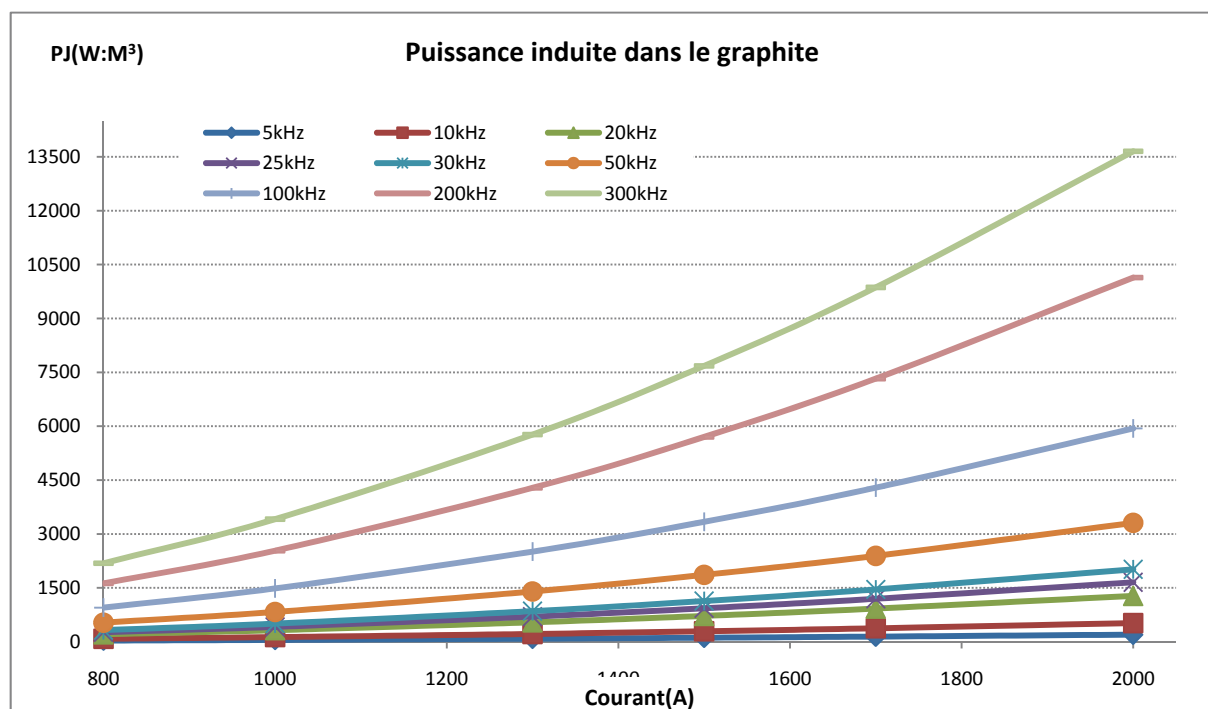


Figure 3-9 : Evolution de la puissance induite dans le graphite en fonction du courant et de la fréquence, configuration de la bobine au dessus du fond du creuset.

b. Cas de la bobine en dessous de la fente

Dans cette configuration, l'inducteur est placé face au coin inférieur du creuset (de conductivité électrique nulle, et dont l'épaisseur est représenté par les 5mm d'espace entre le silicium et le graphite) et du coin supérieur du graphite, qui chauffe le plus (Figure 3-10) et nous

avons calculé pour le maximum de puissance inducteur (obtenu à 300kHz et 2000A) 50kW de puissance induite dans le graphite et 16kW dans le silicium (Figure 3–11 et Figure 3–12).

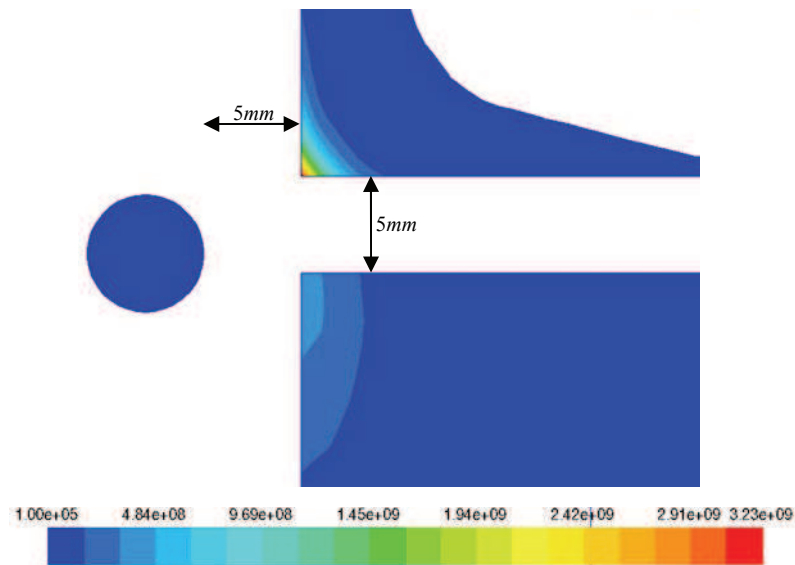


Figure 3–10: Puissance Joule induite dans le silicium et le graphite (W/m^3).

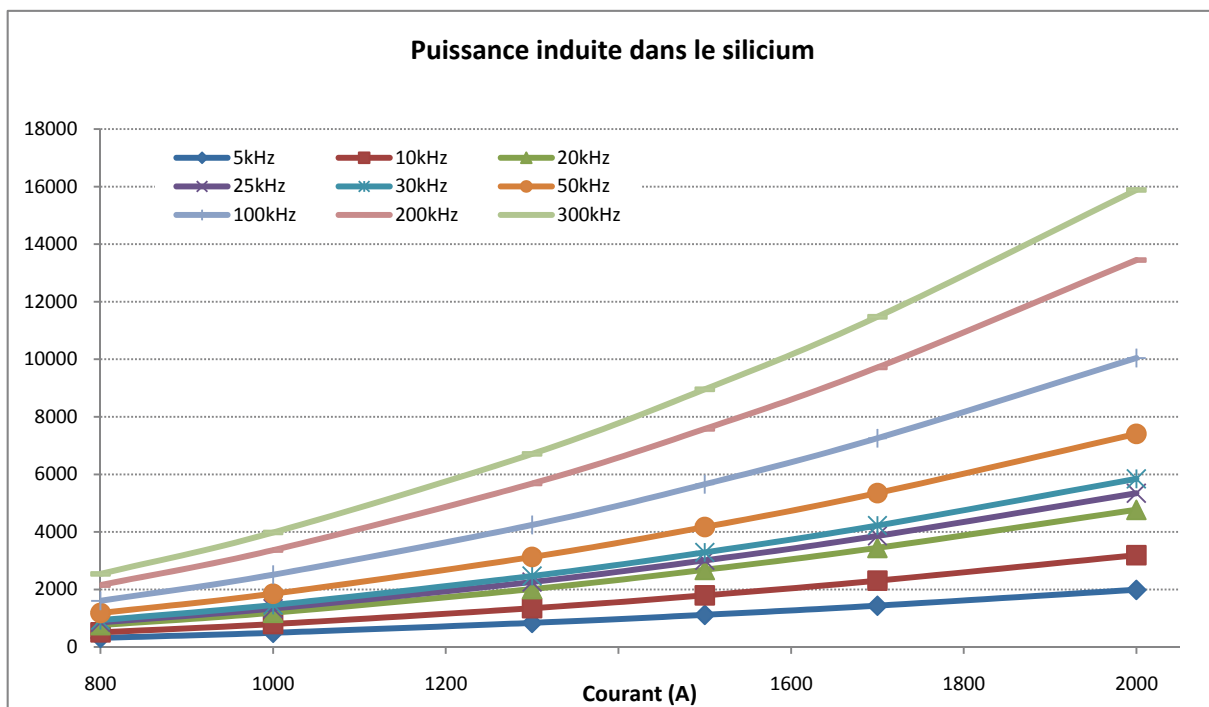


Figure 3–11 : Evolution de la puissance induite dans le silicium en fonction du courant et de la fréquence, configuration de la bobine en dessous du fond du creuset.

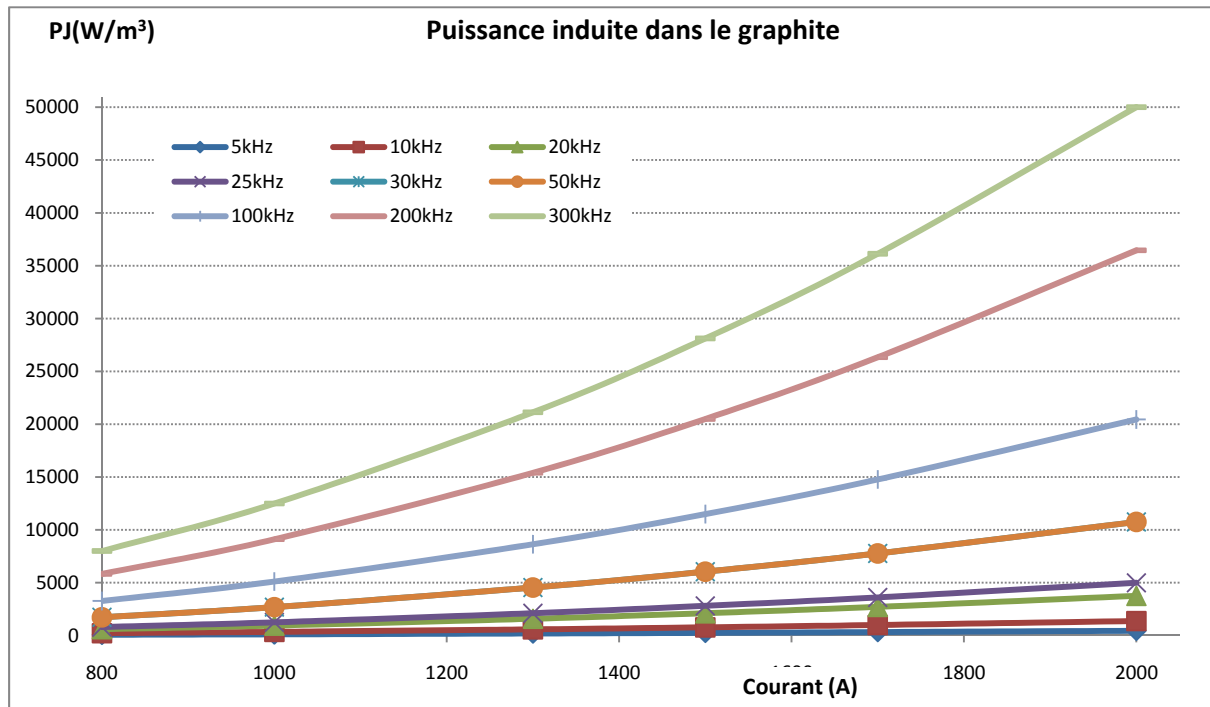


Figure 3-12 : Evolution de la puissance induite dans le graphite en fonction du courant et de la fréquence, configuration de la bobine en dessous du fond du creuset.

3.5.2 Vitesses de brassage

La vitesse moyenne de brassage dans le silicium n'a pas le même comportement dans les deux configurations (Figure 3-13). En effet, dans le cas de la bobine au dessus de la fente, le brassage est faible aux basses fréquences, atteint un pic autour de 20kHz avant de décroître vers une asymptote aux hautes fréquences. Si on considère le tracé à 2000A, la vitesse moyenne est de 0,37m/s à 5kHz, 0,45m/s à 20kHz et plus que 0,31m/s à 300kHz.

Pour le cas de la bobine en dessous de la fente, la vitesse moyenne de brassage est maximale à basse fréquence (0,19m/s à 2000A et 5kHz), et décroît ensuite vers une asymptote (0,13m/s à 2000A et 300kHz). L'intensité du brassage reste globalement plus faible dans cette configuration puisque l'inducteur est plus loin du silicium.

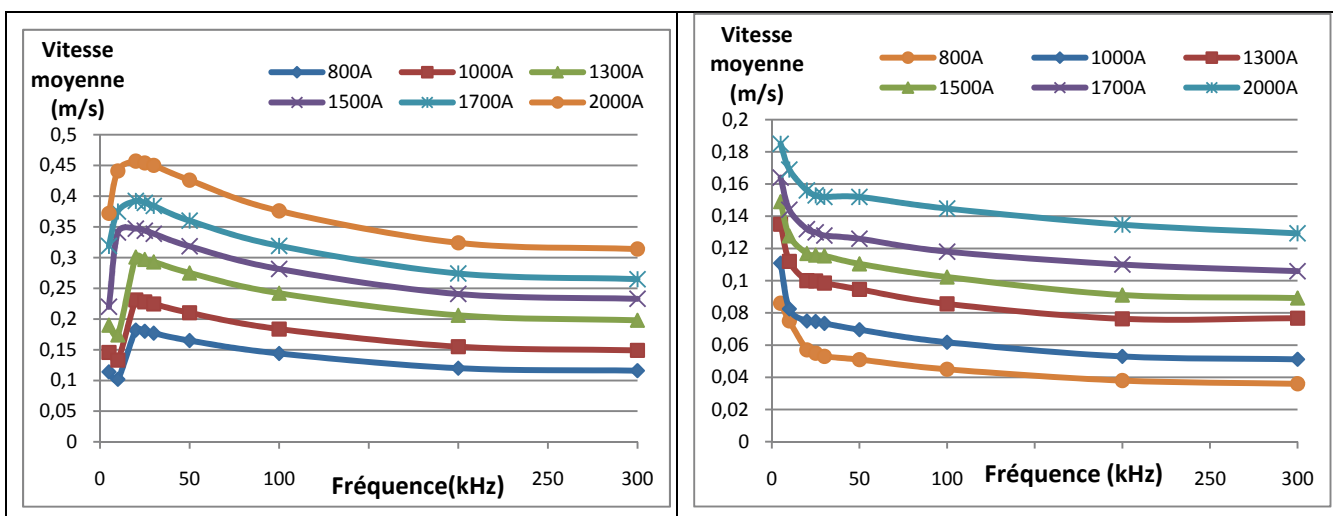


Figure 3-13 : Vitesses moyennes de brassage dans le silicium : à gauche inducteur au dessus de la fente, à droite : inducteur en dessous de la fente.

3.5.3 Dimensionnement de la fente

Le calcul Fluent résout l'équation de Navier-Stokes complète avec un modèle de turbulence $k-\varepsilon$, qui donne le champ de pression équilibrant toutes les forces (force de gravité, force électromagnétique, force d'inertie, forces de viscosité, turbulence), ce qui fait que l'influence du brassage du silicium, est automatiquement prise en compte dans l'équilibre à l'intérieur de la fente.

a. Pression d'équilibre

En supposant que les forces électromagnétiques sont irrotationnelles, le bain de silicium n'est plus en mouvement (pas de forces rotationnelles) et le théorème de Bernoulli se réduit à une loi de l'hydrostatique (ou plutôt de magnéto-hydrostatique) qui s'écrit à la frontière extérieure du silicium (où la pression vaut $p(x)$) :

$$p(x) + \frac{B(x)^2}{2\mu} + \rho \cdot g \cdot x = cste = p_{atm} + \rho \cdot g \cdot h \quad (3-23)$$

Notons qu'il n'est pas légitime de prendre en compte la pression dynamique $\rho U^2/2$ dans une telle équation, puisque l'intégration de l'équation de quantité de mouvement pour obtenir Bernoulli ne peut se faire qu'en négligeant les forces rotationnelles, dont l'ordre de grandeur après intégration serait justement ρU^2 . La pression hydrostatique ρgh correspondant à 5cm de hauteur de silicium est de 1241Pa. Elle doit être compensée par la pression électromagnétique créée par l'inducteur dans la fente, où la pression vaut p_{atm} puisqu'il s'agit d'une surface libre :

$$\frac{B(x_f)^2}{2\mu} \geq \rho \cdot g \cdot (h - x_f) \quad (3-24)$$

Cette dernière relation est écrite sous forme d'inégalité sur notre frontière de calcul, alors que la loi hydrostatique donnerait une égalité, mais sur la surface libre (qui se déforme). Nous cherchons donc à avoir une pression magnétique suffisamment forte pour que la déformation de la surface de silicium près de la fente se fasse vers l'intérieur (rétention) et non vers l'extérieur (risque de coulée).

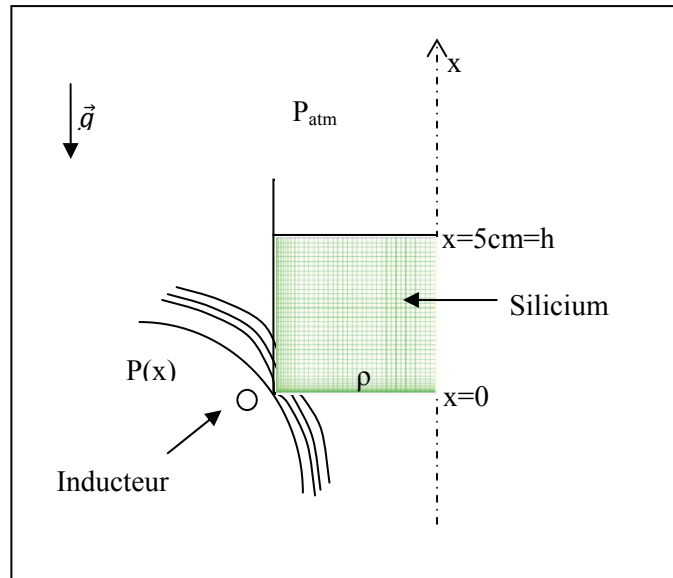


Figure 3-14 : Equilibre des pressions.

Plutôt que d'exploiter le raisonnement ci-dessus, qui n'est valable qu'en hydrostatique ($\rho U^2 \ll \rho \cdot g \cdot h$), nous préférons utiliser notre calcul numérique de l'écoulement, qui prend en compte

les forces d'inertie du fluide et la composante rotationnelle du champ de forces (à condition de mailler finement la peau électromagnétique, comme nous l'avons fait). La pression calculée en frontière du silicium est donc directement la pression du silicium à l'interface, qui doit s'équilibrer avec la pression atmosphérique sur les surfaces libres. Comme ci-dessus, nos calculs utilisent une frontière fixe sans chercher à déformer l'interface silicium/air dans la fente, mais nous repérons la zone de répulsion par un déséquilibre de pressions vers l'intérieur, c'est-à-dire par une pression atmosphérique supérieure à la pression calculée dans le fluide, soit $p_{atm} \geq p(x_f)$. Or, le code Fluent prend en compte la gravité en utilisant la pression $p^* = p - p_{ref} + \rho \cdot g \cdot (x - x_{ref})$ au lieu de p dans ses équations de quantité de mouvement. Dans nos calculs, la pression p^* est imposée nulle sur l'axe du domaine, juste sous la surface libre du silicium, ce qui revient à compter les pressions relativement à la pression atmosphérique ($p_{ref} = p_{atm}$), et les altitudes relativement à la hauteur de la surface ($x_{ref} = h$). Le critère $p(x_f) \leq p_{atm}$ devient donc :

$$\delta p = p^*(x_f) + \rho \cdot g \cdot (h - x_f) \leq 0 \quad (3-25)$$

La seconde forme ci-dessus est la plus pratique à utiliser dans nos calculs pour identifier la zone de répulsion.

b. Hauteur de fente

Nous avons déterminé les paramètres électriques pour lesquels la pression hydrostatique et la pression électromagnétique s'équilibrent en calculant pour différents courants et fréquences dans les deux configurations considérées (bobine au dessus et bobine en dessous de la fente), la hauteur maximale x_f pour laquelle le liquide est soumis à une répulsion (selon le critère ci-dessus). Pour cela, nous avons tracé δp calculé le long des 5cm de silicium liquide (mur latéral) en fonction de la position verticale (Figure 3–15) : la position du point le plus élevé où $\delta p < 0$ (3-25) correspond à la hauteur de rétention retenue pour le couple courant/fréquence de calcul, hauteur qui n'est autre que la hauteur théorique de la fente du creuset pour le cas considéré.

Ainsi, on peut donc voir sur la Figure 3–15, que la hauteur de fente possible pour un courant alternatif de 1500A oscillant à 25kHz est de 6,6mm maximum, dans le cas de la configuration présentant l'inducteur en dessous du creuset.

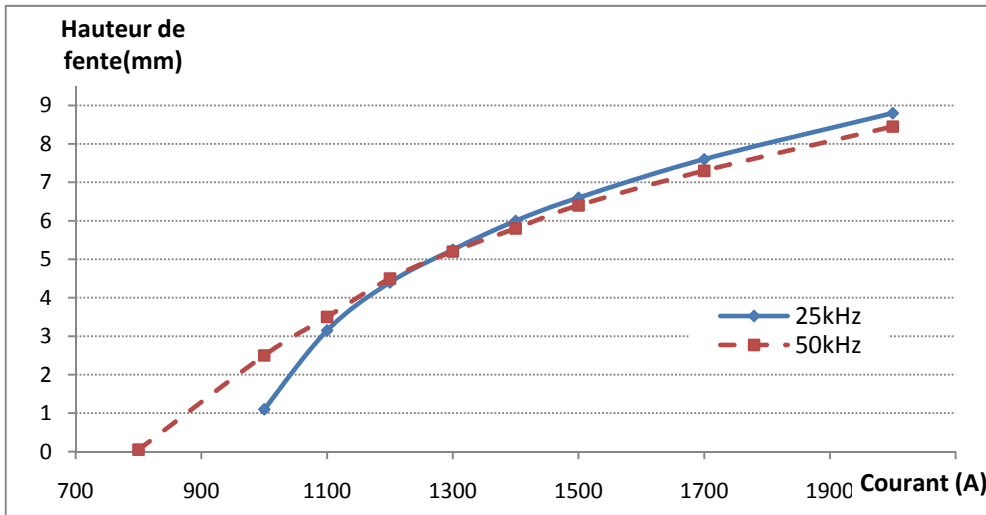


Figure 3–15 : Hauteur de fente maximum en fonction du courant pour la configuration inducteur en dessous de la fente, à 25kHz et 50kHz.

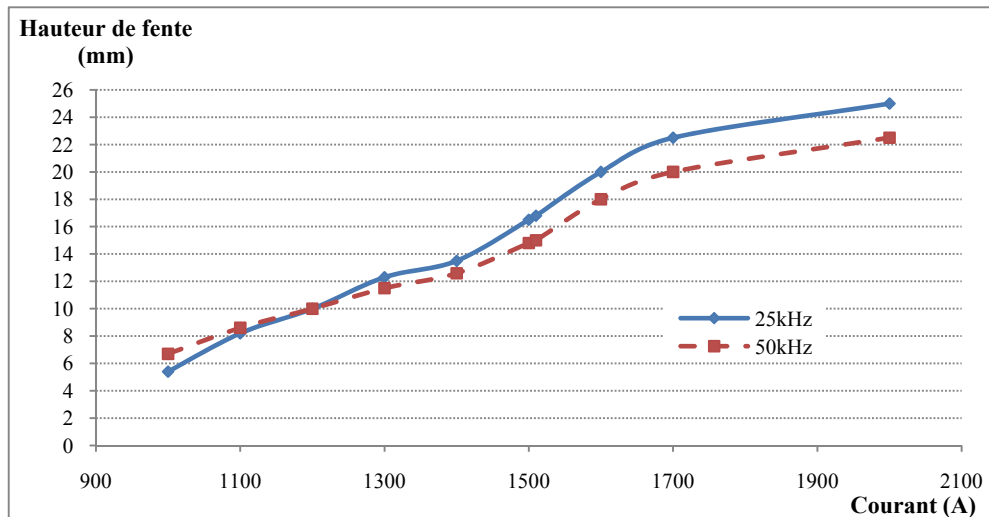


Figure 3–16 : Hauteur de fente maximum en fonction du courant pour la configuration inducteur au dessus de la fente, à 25kHz et 50kHz.

Pour la configuration de l'inducteur au dessus, les courbes montrent l'existence de plusieurs zones de basse pression correspondant à plusieurs passages par 0 de δp , par exemple à 1,65, 2,5 ou encore 4,3cm pour $I=1500A$ et $f=25kHz$ (Figure 3–17), ce qui montre que la forme de la surface subissant les répulsions est certainement complexe, du moins pour cette configuration, ce qui pourrait se traduire expérimentalement par des instabilités de la zone de rétention.

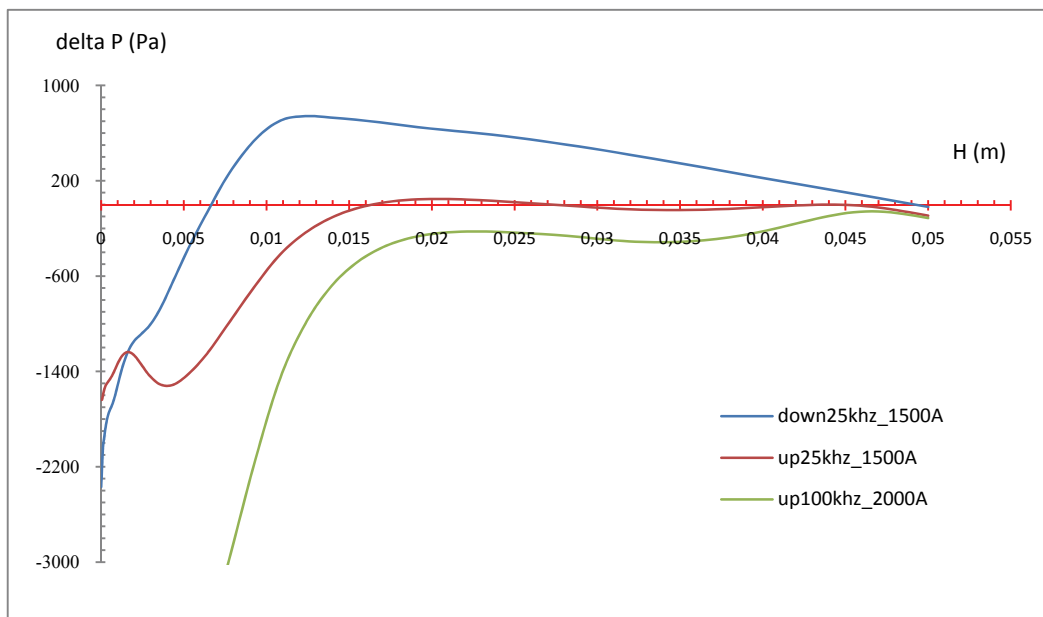


Figure 3–17 : Détermination de la hauteur de fente.

La méthode décrite ci-dessus nous a permis de déterminer la hauteur de fente correspondante à différents courants oscillant à 25kHz et 50kHz (Figure 3–15 et Figure 3–16).

3.6 Conclusion

Les calculs présentés dans ce chapitre nous montrent que :

- La puissance thermique injectée dans le silicium augmente avec le courant et la fréquence ;
- La configuration qui induit le moins de puissance dans le silicium est celle de l'inducteur placé en dessous de la fente ;
- Le bon compromis pour le choix de la fréquence dans cette configuration est entre 20 et 30kHz : à 1300A, puissance joule induite autour de 2kW et vitesse moyenne de brassage autour de 0,1m/s (qui est déjà non négligeable : nous reviendrons plus en détail sur le brassage dans le chapitre suivant).

Ce dimensionnement électromagnétique nous a permis de définir et choisir les paramètres électriques adéquats au bon fonctionnement du système de rétention lors des expérimentations présentées au Chapitre 4.

Cependant, le couplage dans le graphite, support de l'inducteur et représentant le résistor du bas, est encore trop important (en moyenne 5kW à 2000A pour la gamme 20-30kHz) pour que nous puissions utiliser la configuration telle quelle. Il est donc nécessaire de faire des calculs supplémentaires, en 3D pour mieux quantifier le phénomène de couplage, notamment en prenant en compte la plaque de l'inducteur, servant à concentrer les courants dans la fente, et les géométries exactes d'inducteurs et de résistors considérés, dans le but d'optimiser la configuration finale. Ces calculs plus représentatifs de la configuration carrée expérimentale sont présentés au Chapitre 4.

Chapitre 4 Rétention électromagnétique

4.1 Etude de faisabilité à l'étain

Nous appelons « rétention électromagnétique » la faculté de repousser la surface d'un fluide conducteur électrique grâce aux forces électromagnétiques créées par un inducteur alimenté en courant alternatif. Il s'agit de créer une pression magnétique suffisante pour équilibrer la pression hydrodynamique ($P_{\text{mag}} \geq \rho gh$). La mise au point de la rétention électromagnétique est l'un des deux objectifs visés dans cet étude, en vue de la cristallisation d'une couche de silicium dans un creuset avec fente (système transposable à un procédé de tirage de ruban). Pour cela, nous avons besoin de contrôler « l'actionneur électromagnétique » avec précision, en fonction des conditions expérimentales (intensité et la fréquence du courant injecté dans l'inducteur, la géométrie et/ou l'emplacement des résistors, du creuset et de l'inducteur). Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord les résultats expérimentaux de rétention électromagnétique de l'étain liquide en configuration cylindrique (la validation sur du silicium liquide a été également effectuée, mais sera présentée au Chapitre 5), en nous appuyant sur le dimensionnement électromagnétique du Chapitre 3 ; ensuite nous présentons les calculs tridimensionnels d'optimisation du dispositif expérimental (creuset carré) et les résultats expérimentaux obtenus dans cette configuration.

4.1.1 Choix de l'étain

Le silicium possédant une haute température de fusion (1410°C), sa fusion et sa solidification doivent se faire dans un environnement thermiquement isolé. Pour cela, nous utilisons du feutre de graphite, matériau possédant une faible conductivité thermique (et électrique) tout autour et au dessus du creuset ce qui permet d'avoir des parois adiabatiques. Cette isolation masque malheureusement le creuset et empêche la visualisation du silicium durant les expériences, même si on peut tout de même voir la fente, (Figure 4–1).

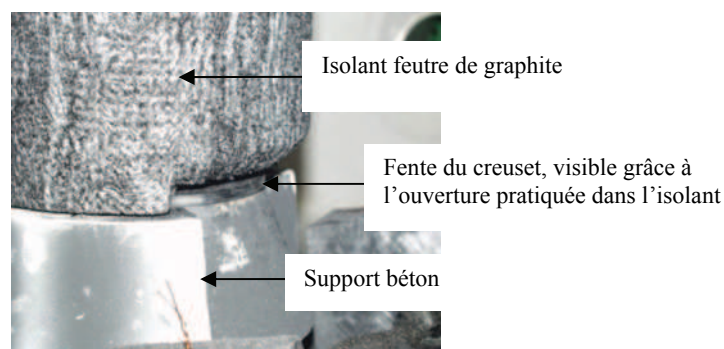


Figure 4–1:Photo d'un test axisymétrique au silicium : le creuset est isolé thermiquement de l'atmosphère de l'enceinte par du feutre de graphite.

Afin de pouvoir se passer de l'isolation thermique et ainsi visualiser le creuset en entier durant les tests, nous allons dans un premier temps séparer la rétention électromagnétique et le contrôle thermique en remplaçant le silicium par une charge équivalente d'étain, métalloïde ayant à peu près la même conductivité électrique que le silicium liquide, mais une température de fusion beaucoup plus basse. Nous avons également utilisé pour ces tests un support de

béton réfractaire ou de blocs de silice opaque (qui n'interfèrent pas avec l'induction électromagnétique puisqu'ils n'ont pas de conductivité électrique) à la place du résistor du bas.

4.1.2 Equivalence charge d'étain – charge de silicium

La charge d'étain à utiliser doit avoir la même pression hydrostatique ρgh que la charge de silicium, sachant que les deux matériaux ont des masses volumiques différentes. Le Tableau 4–1 suivant résume les principales propriétés de ces deux matériaux :

	Silicium (Si)	Etain (Sn)
Conductivité électrique : $\sigma (\Omega^{-1})$	$1,25.10^6$	$2,08.10^6$
Température de fusion : $T_f (^\circ C)$	1410	232
Masse volumique : $\rho (kg/m^3)$	2533	7000
Epaisseur de peau pour 25kHz, 1000A (mm)	2,8	2,2

Tableau 4–1 : Propriétés de l'étain et du silicium [Smithels Metal reference book, 6th edition].

Nous disposons de creusets de 10cm de haut pour nos tests au silicium. En remplissant le creuset jusqu'à ras bord de silicium, on obtient après fusion une hauteur de silicium liquide de 5 à 7cm selon le silicium solide utilisé (plus ou moins poudreux ou en morceaux). On peut donc calculer la quantité d'étain équivalente :

$$P = \rho_{Si} g h_{Si} = \rho_{Sn} g h_{Sn} = \frac{m_{Sn}}{V_{Sn}} g h_{Sn}$$

$$\Rightarrow m_{Sn} = \frac{\rho_{Si} h_{Si} V_{Sn}}{h_{Sn}}$$

La masse d'étain doit être comprise entre 1kg et 1,7kg (Tableau 4–2) selon le creuset et la forme sous laquelle se trouve le silicium utilisé.

Creuset	$h_{Si} (cm)$	$m_{Sn} (kg)$
Cylindrique, r=5cm	5	0,99
	6	1,19
	7	1,39
Carré, c=10cm	5	1,26
	6	1,51
	7	1,77

Tableau 4–2 : Quantité d'étain équivalent à la quantité de silicium.

Si on considère l'équation de conservation de la quantité de mouvement (3-20), l'équilibre entre les forces d'inertie et la partie rotationnelle des forces électromagnétiques s'écrit :

$$\rho(\vec{u} \cdot \vec{\nabla})\vec{u} = \frac{1}{\mu}(\vec{B} \cdot \vec{\nabla})\vec{B} \Leftrightarrow o\left(\frac{\rho U^2}{L}\right) \sim o\left(\frac{B^2}{\mu L}\right) \quad (4-1)$$

Cette relation permet de définir une vitesse caractéristique du fluide, appelée vitesse d'Alfvén qui s'écrit :

$$U_A = \frac{B_0}{\sqrt{\mu \rho}} \quad (4-2)$$

Où B_0 est l'intensité du champ magnétique, μ la perméabilité du vide et ρ la masse volumique du matériau considéré.

Cette vitesse permet de comparer la vitesse de brassage dans le cas de l'étain à celle dans le cas du silicium. Ainsi, à B_0 identique, $\frac{U_A(Si)}{U_A(Sn)} = 1,66$, ce qui montre que les vitesses de brassages calculées pour le silicium sont deux fois plus importantes que celles qu'on pourrait observer dans l'étain.

D'après les calculs axisymétriques modélisant le brassage électromagnétique ($I = 1000A$ et $f = 25kHz$) dans $5cm$ de silicium liquide l'intensité du brassage est de $0.07m/s$, ce qui nous permet de calculer par similitude la vitesse caractéristique dans l'étain grâce au rapport des vitesses d'Alfvén, soit $0,042m/s$. On en tire une pression dynamique ρU^2 similaire pour le silicium ($12,41Pa$) et pour l'étain ($12,35Pa$), qui reste faible devant les pressions magnétique et hydrostatique calculées dans les mêmes conditions ($P_h = 1242Pa$). L'épaisseur de peau électromagnétique calculée dans l'étain est de $2,2mm$, plus faible que celle calculée dans le silicium ($\sim 3mm$) mais toujours dans le même régime de fine peau électromagnétique.

Dans les expériences, nous ne sommes par contre pas en similitude géométrique entre l'étain et le silicium, puisque la hauteur du bain d'étain ($\sim 2cm$) a été choisie pour obtenir la même pression hydrostatique au fond du creuset avec les deux métaux. La surface libre de l'étain, très basse, se retrouve au même niveau que l'inducteur lorsque celui-ci est en position haute, ce qui pourrait expliquer les instabilités observées (§4.1.4a).

4.1.3 Conditions expérimentales choisies

La puissance joule induite dans l'étain est suffisante pour fondre la charge utilisée. Il n'y a donc pas besoin d'autres apports de chaleur pour la fusion. De plus, les tests ont lieu à relativement basse température ce qui nous laisse la possibilité d'utiliser comme creusets cylindriques des béchers en pyrex de $10cm$ de diamètre dans lesquels nous pratiquons à la scie diamantée, une fente de $5cm$ de large et 2 à $3mm$ d'épaisseur.

L'inducteur utilisé est un tube de cuivre (de $6mm$ de diamètre extérieur et $4mm$ de diamètre interne) courbé en demi-cercle, auquel nous avons soudé une plaque de cuivre ($L = 8cm$, $l = 1cm$ et $e = 2mm$, Figure 4-2). Cette plaque centrée sur la fente permet de concentrer les forces électromagnétiques à ce niveau (la plaque n'était pas prise en compte lors des calculs axisymétriques). L'inducteur est proche de la fente à l'avant du creuset, mais s'éloigne du creuset à l'arrière pour diminuer la puissance thermique transmise au silicium.

Les tests auront lieu à une fréquence voisine de $25kHz$.



Figure 4-2 : Inducteur mi-circulaire avec plaque concentratrice de courant à l'avant.

4.1.4 Résultats

a. Premier cas axisymétrique : inducteur au dessus de la fente

La plaque de l'inducteur est horizontale, soudée sous l'inducteur, elle est en arc de cercle de diamètre interne 108mm (adapté au diamètre externe du creuset).

La première chose que l'on peut constater est que les résultats obtenus suite à la modélisation numérique ne sont pas transposables tels quels à la réalité. En effet, la rétention a du mal à se faire dans cette configuration puisqu'il faut plus de courant que prévu d'après les résultats numériques pour arriver à retenir le fluide de façon approximative. La plaque de l'inducteur, qui n'était pas prise en compte dans la modélisation, a pour rôle de concentrer les courants au niveau de la fente et devrait avoir l'effet inverse.

Cette différence s'explique par le fait que les résultats de modélisation concernent du silicium alors que ces premiers tests utilisent de l'étain. De plus, en théorie, le dispositif est parfaitement symétrique et stationnaire et seul le brassage électromagnétique moyen était considéré alors que dans la réalité, d'autres phénomènes sont à prendre en compte comme les phénomènes d'instabilité de la surface libre sous l'effet du champ, visibles sur la **Figure 4-3** et la **Figure 4-4**, et les fluctuations turbulentes dont notre modèle ne décrit que les effets moyens, en négligeant les déformations de surface libre.

On observe dans les expériences un fort brassage au sein de l'étain liquide, qui rappelle les phénomènes d'instabilités évoqués par [Perrier *et al.*, 2003]. Le dessus du bain est bombé par les forces électromagnétiques, entraînant l'expulsion de gouttelettes d'étain par la fente et par l'ouverture du creuset.

Malgré la concentration des forces électromagnétiques dans la fente, la rétention électromagnétique n'est que partielle à plus fort courant que celui estimé d'après les calculs, à cause des instabilités. Pour le silicium, ces instabilités pourraient disparaître car la surface libre est plus loin de l'inducteur (configuration non testée au silicium).

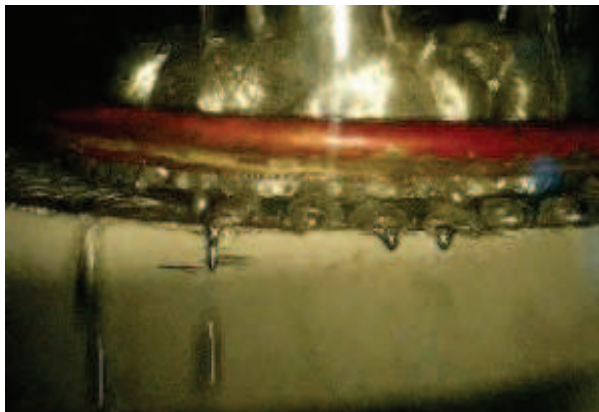


Figure 4-3 : I autour de 1700-1900A ; instabilités de surface. Rétention électromagnétique partielle.

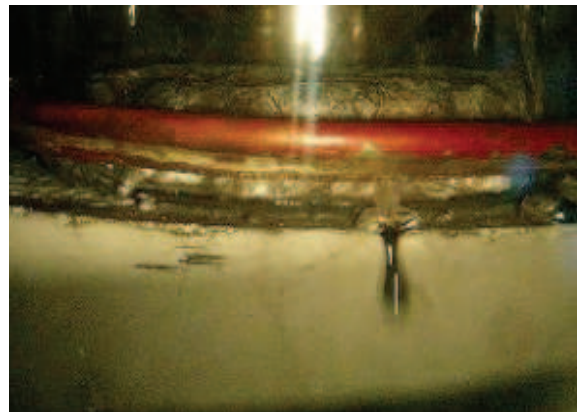


Figure 4-4 : Il ne reste plus que la moitié de l'étain dans le creuset, I autour de 1710A.

b. Deuxième cas axisymétrique : inducteur en dessous de la fente

Cette fois-ci, la plaque est soudée verticalement à la bobine. La fusion s'est effectuée sous un courant de 1165-1170A. Cette configuration permet de retenir le fluide sans trop d'agitation dans le creuset contrairement au cas précédent (Figure 4-5 à Figure 4-8). La limite d'étanchéité est atteinte entre 980 et 990A. En dessous de cette plage, nous avons

constaté que le liquide fuit, mais uniquement au coin gauche, ce qui peut s'expliquer par l'existence d'une mince peau d'oxyde et/ou par une petite dissymétrie de la bobine par rapport au creuset.



Figure 4-5 : Inducteur à plaque verticale.

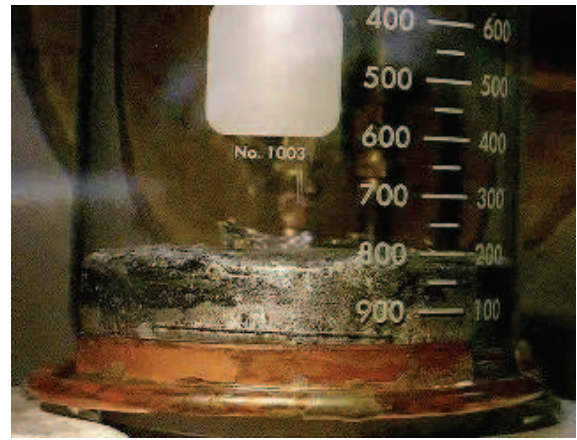


Figure 4-6 : Etain fondu retenu dans le creuset, 1170A.

A courant plus fort, on observe un refoulement du fluide qui est poussé plus fort vers l'intérieur du creuset, et qui finit par chauffer au rouge car les puissances Joule induites sont plus importantes. La coupure du courant en fin d'expérience stoppe la rétention électromagnétique et le creuset se vide.

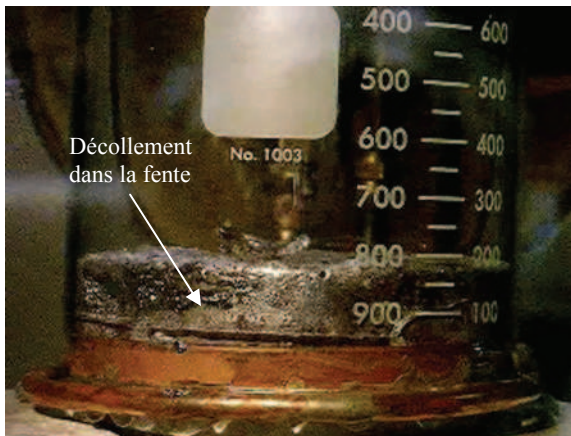


Figure 4-7 : Fluide refoulé à l'intérieur, I entre 1500et 1900A.

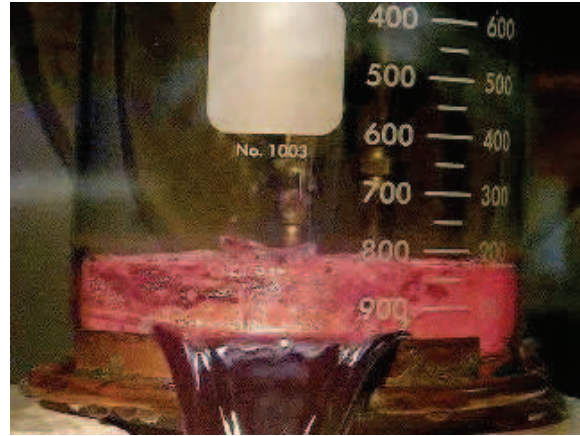


Figure 4-8: Ecoulement de l'étain à la suite de la coupure de l'induction.

4.1.5 Discussion

Nous avons donc validé expérimentalement la rétention de 1,3kg d'étain (masse volumique d'environ 7000kg/m^3) par le dispositif électromagnétique dans les conditions suivantes : creuset cylindrique en pyrex de 108mm de diamètre avec un courant de 1000A et une fréquence autour de 25-26kHz dans l'inducteur qui se trouve placé en dessous de la fente du creuset. Ce résultat respecte celui prédit par les calculs, à savoir 900-1100A à 25kHz pour une fente de 2-3mm.

Les instabilités observées sont certainement dues à la proximité de l'inducteur avec la surface du liquide, raison pour laquelle on ne les voit que dans la première configuration. Cela dit, elles ne devront pas apparaître lorsque le fluide est du silicium, puisque la charge

équivalente à la quantité d'étain utilisée correspond à environ 5cm, ce qui éloigne la surface du tube de l'inducteur. De plus, la parfaite rétention réalisée dans la deuxième configuration nous encourage à garder cette position de l'inducteur pour passer à la configuration carrée, qui est la géométrie de creuset pour le procédé final.

Partant de ses résultats, nous sommes passés à la configuration en creuset carré de dimensions 100×100×100mm avec une fente de 50-100mm de large, en commençant par des expériences avec de l'étain dans un premier temps (afin de voir entre autre l'influence des bords de la fente) avant de continuer sur des tests au silicium, présentés au Chapitre 5.

La conception du processus de cristallisation du silicium doit prendre en considération les effets additionnels du système inductif (chauffage induit et brassage) : le système de rétention doit fonctionner en présence des résistors en graphite qui sont indispensables pour le contrôle thermique de la cristallisation. Nous maintiendrons la configuration avec la plaque de l'inducteur en-dessous de la fente du creuset et une fréquence autour de 25-30kHz, qui est un compromis entre un chauffage acceptable (plus important à plus haute fréquence et pouvant compliquer la cristallisation), et un brassage acceptable (plus fort à plus basse fréquence et qui peut induire des instabilités de surface dans le silicium).

4.1.6 Introduction de la configuration carrée

Après la validation du cas axisymétrique, nous avons testé la rétention électromagnétique dans des creusets carrés. Le creuset présente une fente de 2mm de haut sur 5cm de large (Figure 4–9). L'inducteur est adapté à la géométrie du creuset et présente une plaque de 8cm de long centrée sur la fente du creuset.

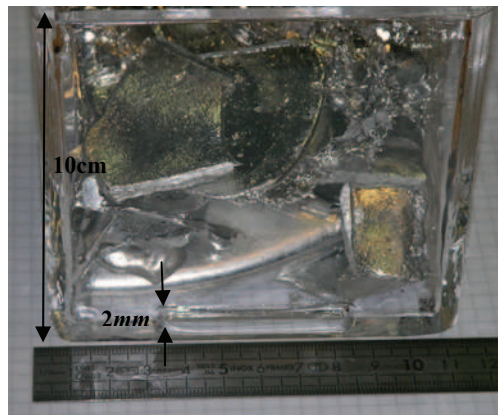


Figure 4–9 : Creuset en quartz rempli d'étain.

La rétention électromagnétique est effective pour un courant ~1400A ; Nous remarquons le décollement du fluide au niveau de la fente vers l'intérieur lorsque le courant avoisine les 1700A, et également une fuite au niveau du coin droit de la fente (Figure 4–10) lorsque le courant est baissé autour de 1360A, ce qui s'explique par la légère dissymétrie de la fente qui paraît plus large en cet endroit.

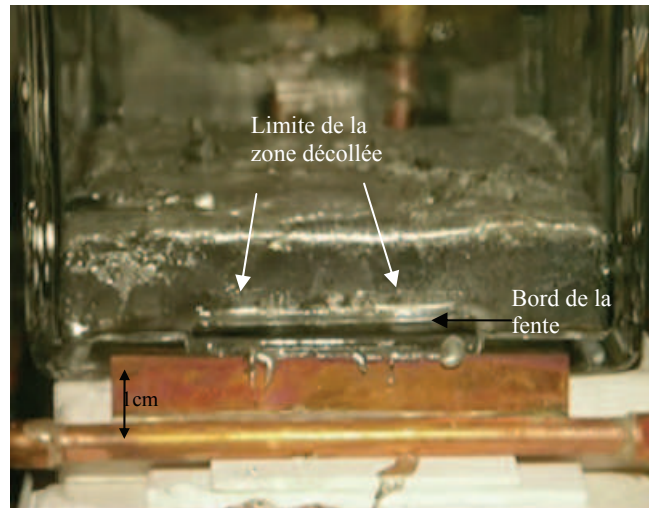


Figure 4–10 : Etain liquide dans le creuset légèrement incliné vers l’avant et posé sur des plaques de silice.

Par contre, en posant le creuset sur un bloc de graphite (3cm d’épaisseur, Figure 4–11), on arrive à retenir le fluide autour de 1500A, soit environ une centaine d’Ampère de plus que lors du test sans support de graphite, ce qui ne nous laisse pas de doute sur l’importance du couplage entre l’induction et le support, élément indispensable pour les tests au silicium.



Figure 4–11 : Creuset posé sur le support bloc de graphite. L’étain coule en dessous de 1483A.

Ceci nous amène à étudier davantage ce phénomène de couplage, afin de mieux le comprendre et mieux choisir la géométrie du support (paragraphe suivant).

4.2 Optimisation par modélisation numérique

4.2.1 Calculs tridimensionnels

Les calculs 3D (logiciel Comsol) nous permettent de modéliser les géométries exactes d’inducteur et de résistor que nous avons expérimentées, plus complexes que la représentation axisymétrique, afin d’optimiser la configuration expérimentale de sorte que la rétention électromagnétique et le contrôle thermique restent totalement indépendants.

a. Géométrie et maillage

L'inducteur est un tube creux refroidi par une circulation d'eau. Il entoure le creuset de façon à ce qu'il puisse remplir sa fonction de la façon la plus judicieuse : créer suffisamment de répulsion au niveau de la fente et un brassage suffisant pour homogénéiser le silicium fondu. Pour cela, le tube de l'inducteur est surmonté d'une plaque de cuivre (hauteur = 1 cm , épaisseur = 2 mm), qui sert à concentrer les forces électromagnétiques au niveau de la fente. L'étude du couplage du résistor du bas avec l'induction nous a amené à modéliser différentes configurations (inducteur/résistors) permettant de minimiser le couplage avec le résistor sans affecter la rétention électromagnétique.

La géométrie est placée dans un domaine « atmosphère » (Figure 4–12), de conductivité électrique nulle, suffisamment grand pour permettre la fermeture des lignes de champ. L'ensemble étant symétrique, nous ne modélisons que la moitié de la géométrie afin de ne pas générer trop d'éléments lors du maillage.

La faible valeur de l'épaisseur de peau électromagnétique δ dans l'inducteur (cuivre) et dans le silicium nous permet de ne modéliser que les frontières de ces objets dans les calculs 3D Comsol, grâce notamment à une condition aux limites appelée condition d'impédance de frontière, ce qui permet également de réduire le nombre d'éléments dans le maillage. Le graphite dont l'épaisseur de peau et les dimensions sont du même ordre de grandeur, est modélisé en volume.

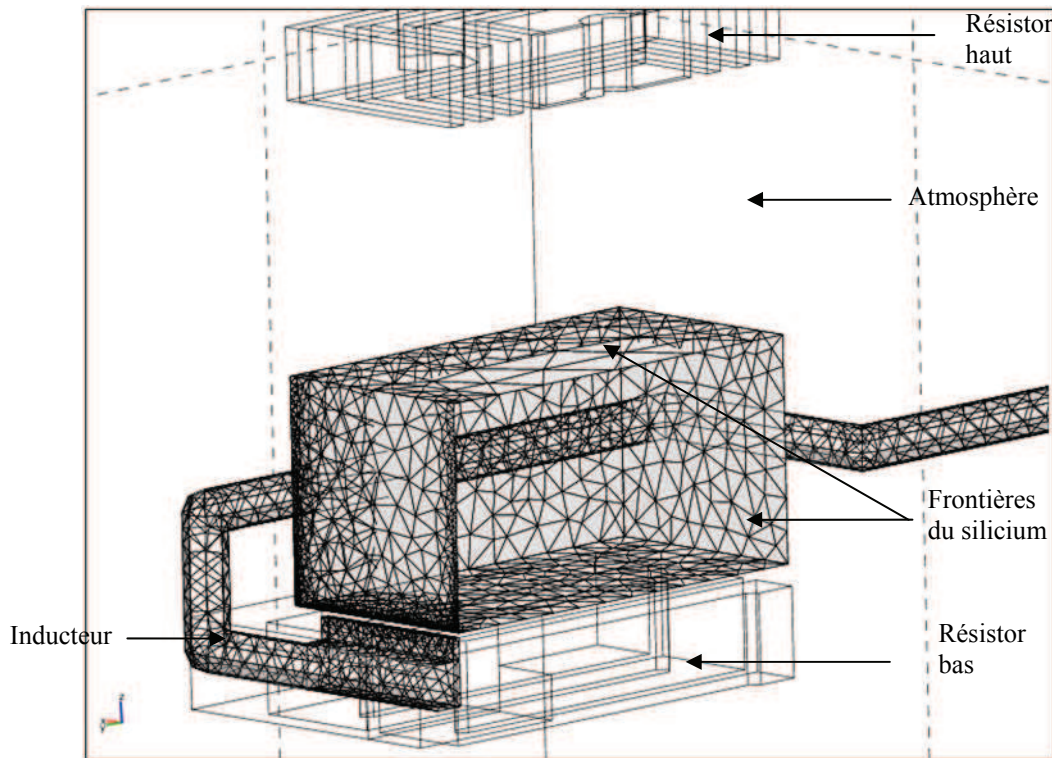


Figure 4–12 : Géométrie représentant l'inducteur, le silicium et les résistors dans le domaine atmosphère. Le silicium et l'inducteur sont représentés par leurs frontières.

b. Conditions limites

On choisit la fréquence f du courant inducteur (25 ou 30 kHz) et on impose une différence de potentiel aux bornes de l'inducteur. Ces deux paramètres permettent de calculer

le potentiel vecteur ainsi que les autres grandeurs électromagnétiques à partir des équations présentées au chapitre 3, dans les différents matériaux, selon leur conductivité électrique ($\sigma=5,8.10^7 \Omega^{-1}m^{-1}$ pour l'inducteur, $1,25.10^6 \Omega^{-1}m^{-1}$ pour le silicium, $5.10^4 \Omega^{-1}m^{-1}$ pour les résistors en graphite, 0 pour l'atmosphère) et les conditions aux limites permettant une modélisation correcte (conditions aux limites d'impédance de frontière pour le silicium et l'inducteur, isolation magnétique pour les frontières de l'atmosphère et condition de continuité pour les frontières des résistors).

4.2.2 Configurations étudiées

Les différents modèles étudiés dans la configuration carrée ont été définis au fil des expérimentations :

a. Configuration A : Support bloc de graphite

Ce premier cas introduit le contrôle thermique en configuration carrée, à travers la présence d'un bloc de graphite (Figure 4–13).

Comme signalé plus haut, la modélisation de la moitié de la géométrie permet de limiter le nombre d'éléments du maillage à ~ 687000 degrés de liberté au lieu du double (~ 1374000) (Figure 4–14).

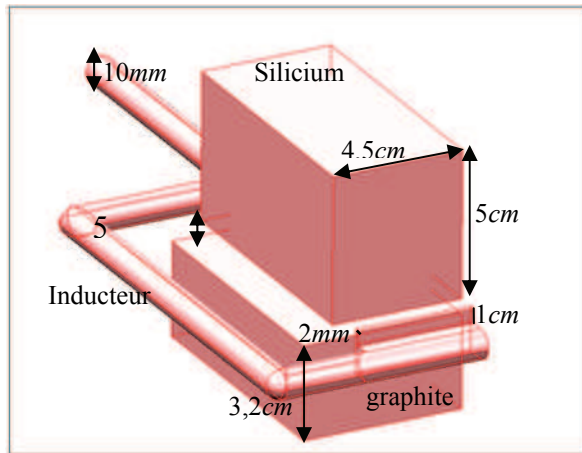


Figure 4–13 : Configuration A : 1er inducteur carré, avec le support en bloc de graphite.

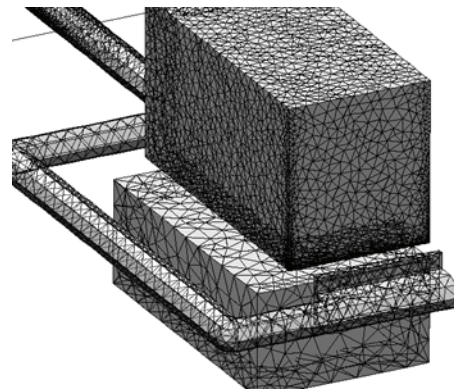


Figure 4–14 : Maillage en surface pour l'inducteur et le silicium, et maillage en volume pour le graphite.

La modélisation du support graphite à l'état brut permet de comprendre et quantifier les phénomènes de couplage intervenant au sein de ce matériau, ce qui nous donne des informations nécessaires au dimensionnement du résistor. Nous avons donc modélisé un bloc de 3cm d'épaisseur (mêmes dimensions que celui utilisé lors du test présenté sur la Figure 4–11), placé à 5mm en dessous du silicium (pour prendre en compte l'épaisseur du creuset qui n'est pas représentée dans la géométrie modélisée).

b. Configuration B : Inducteur surélevé

Ce deuxième cas comporte un inducteur de géométrie légèrement différente : la plaque se trouve toujours au niveau de la fente, mais le reste de l'inducteur est surélevé de 4cm au niveau du silicium, ce qui éloigne l'inducteur du graphite sur une bonne longueur. Cette nouvelle géométrie (Figure 4–15) prédispose à un couplage plus faible du graphite.

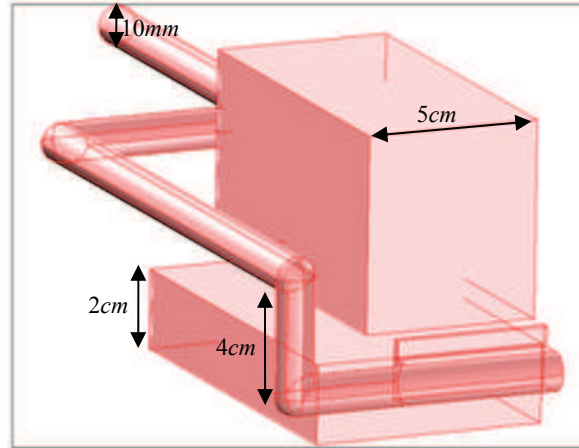


Figure 4–15 : Configuration B : inducteur surélevé avec le support en bloc de graphite.

c. Configuration C : Résistor bas

Dans cette configuration, nous gardons l'inducteur tel qu'il est présenté dans la configuration B ci-dessus. Par contre, le bloc de graphite est remplacé par un résistor (Figure 4–16).

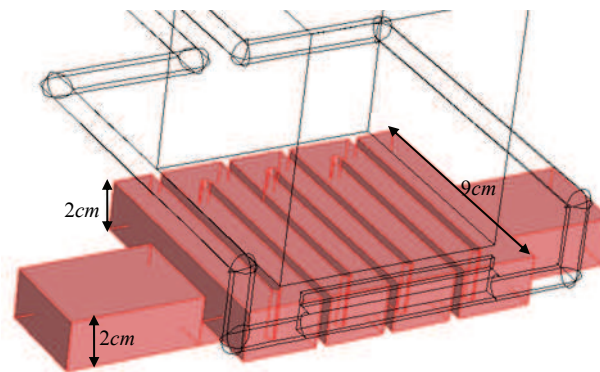


Figure 4–16 : Configuration C : inducteur surélevé avec le support 'résistor bas'.

L'intérêt du calcul dans ce cas est non seulement d'évaluer le couplage entre l'induction électromagnétique et les charges, mais aussi de voir comment circulent et se referment les courants induits dans la géométrie complexe du résistor bas.

d. Autres configurations

Nous présenterons également au paragraphe 4.2.3d des configurations D et E avec différentes longueurs de plaque de l'inducteur, et au paragraphe 4.2.3e des configurations F et G prenant en compte les deux types de résistor haut utilisés pendant les tests. Ces configurations D à G sont toutes basées sur la configuration C ci-dessus.

4.2.3 Résultats de modélisation

a. Courants induits

La différence de potentiel imposée entre les deux extrémités de l'inducteur est ajustée pour avoir un courant inducteur $\sim 1000A$ efficaces dans chaque configuration modélisée, ce qui permet de comparer les résultats entre eux. La fréquence pour ces calculs est de 25 ou 30 kHz.

Les champs complexes calculés représentent les phaseurs des grandeurs électromagnétiques en chaque point, et permettent donc d'obtenir les champs pour chaque valeur de phase du courant inducteur. Les figures présentées ici sont tracées pour une phase nulle, c'est-à-dire lorsque le courant inducteur est à son maximum positif. Le potentiel électrique décroît alors d'un bout à l'autre de l'inducteur comme l'impose la condition aux limites, en imposant un sens de circulation du courant dans l'inducteur. Comme on peut le constater sur la Figure 4-17, la spire induit un courant de sens contraire dans la charge.

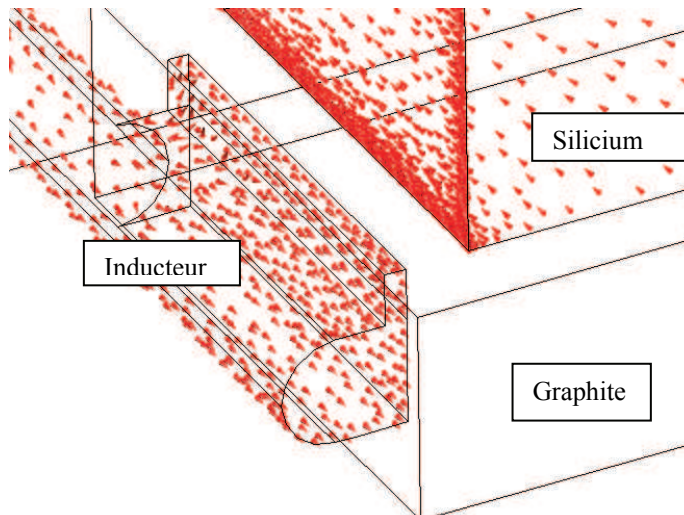


Figure 4-17 : Circulation du courant dans l'inducteur et le silicium.

La circulation et l'intensité du courant induit dans les charges sont imposées par la géométrie de l'inducteur. Dans le silicium (Figure 4-18), on remarque que :

- les lignes de courant électrique se referment près de la face la plus proche de la plaque, et ce quelque soit la forme de l'inducteur utilisé.
- la densité de courant de surface est également maximale à la base de la face avant silicium, où le couplage est le plus intense. Par ailleurs, le dégradé de couleur représentant le courant induit sur les faces du silicium indique clairement la géométrie de l'inducteur : la trace claire qu'on voit à la base sur la figure de gauche est translatée de quelques centimètres plus haut sur celle de droite, montrant a priori que la répartition du couplage avec les charges silicium et graphite n'est pas équivalente selon l'inducteur.

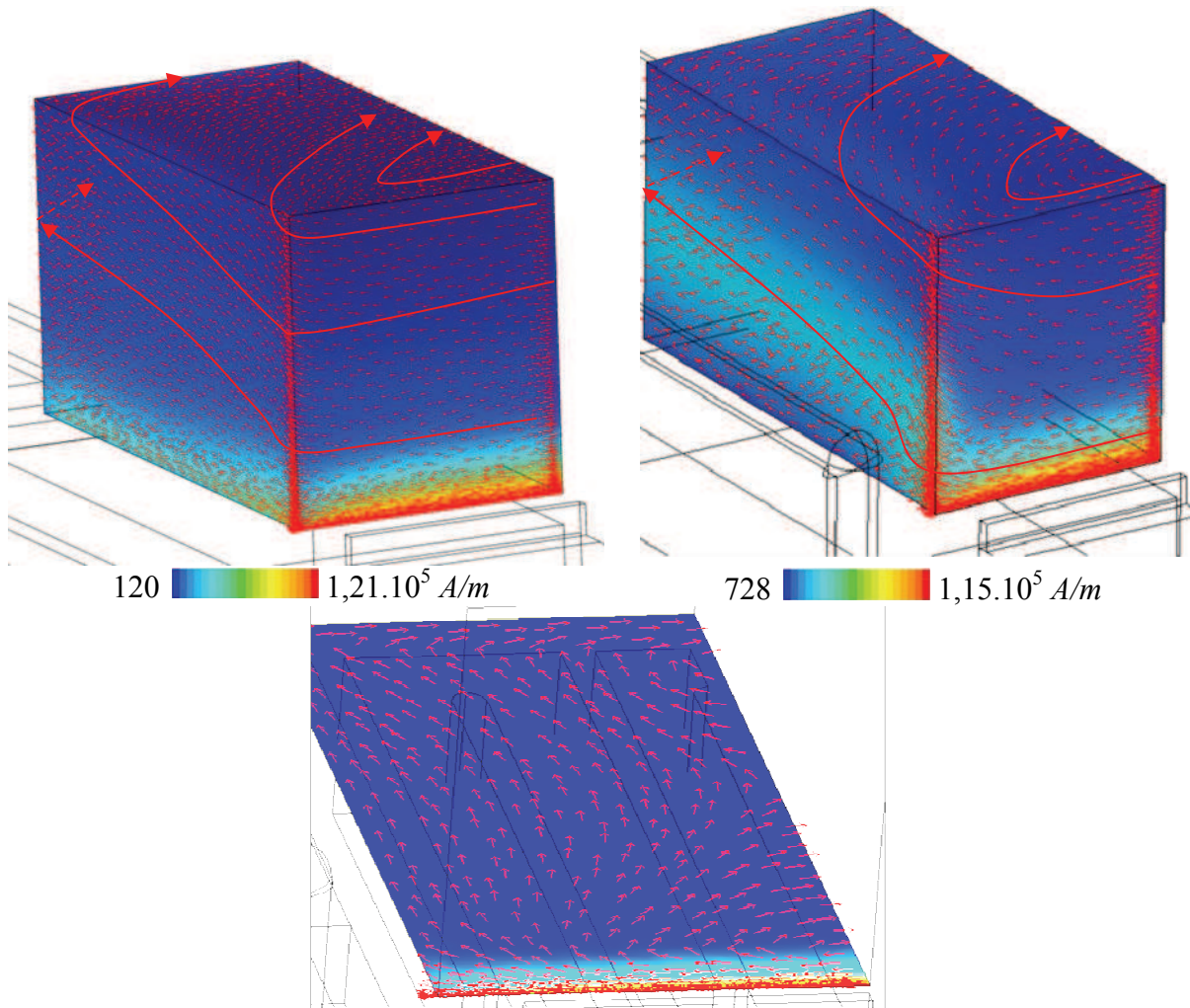


Figure 4–18 : Circulation du courant sur les faces du silicium (flèches normalisées). Inducteur plan (configuration A, à gauche) ou surélevé (B, à droite) et fond du silicium (dans la configuration C).

Pour la charge graphite comme on peut le remarquer sur l'illustration ci-dessous (Figure 4–19), les lignes de courant se referment également près de la face qui se trouve du côté de la plaque.

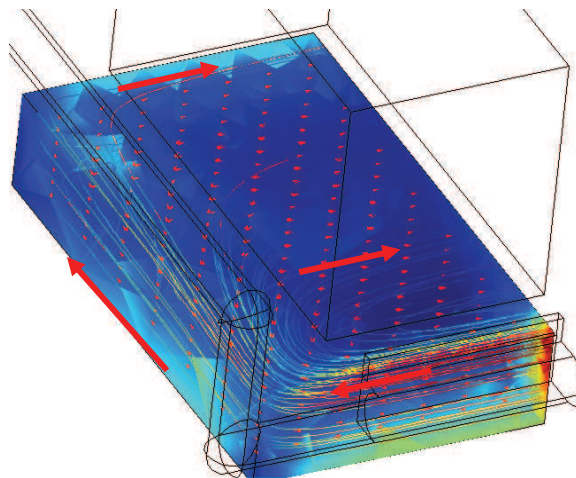


Figure 4–19 : Courant induit dans le graphite (configuration A).

Dans le cas où le support graphite est le résistor de géométrie complexe (configuration C), le courant induit circule dans le sens opposé au courant inducteur près du bord extérieur du graphite et dans le sens contraire au bord intérieur ce qui permet de fermer le courant dans le domaine (Figure 4–20).

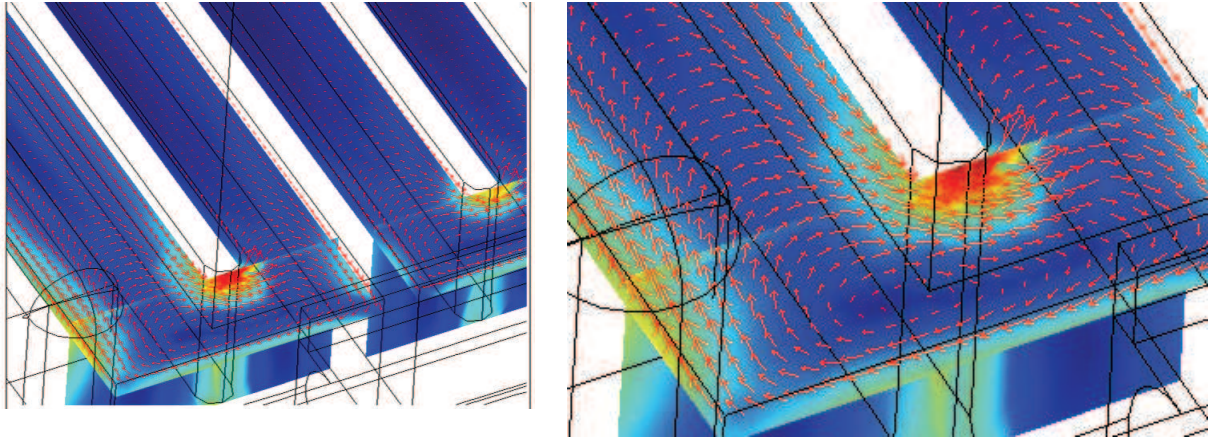


Figure 4–20 : Circulation du courant dans le résistor ($\varphi=0^\circ$).

b. Puissance thermique

Du fait de la position de l'inducteur et la géométrie du graphite, le couplage électromagnétique est optimal dans le support pour la première configuration modélisée, avec une densité de courant maximale de $10^8 A/m^2$ dans le graphite, et minimale pour la dernière configuration (où le support est un résistor, et l'inducteur est surélevé) où la densité de courant n'est plus que de $10^6 A/m^2$, soit une diminution d'un facteur 100. Les Figure 4–21 et Figure 4–22 représentent les densités de courants et les puissances induits dans le volume graphite/résistor et sur les faces silicium.

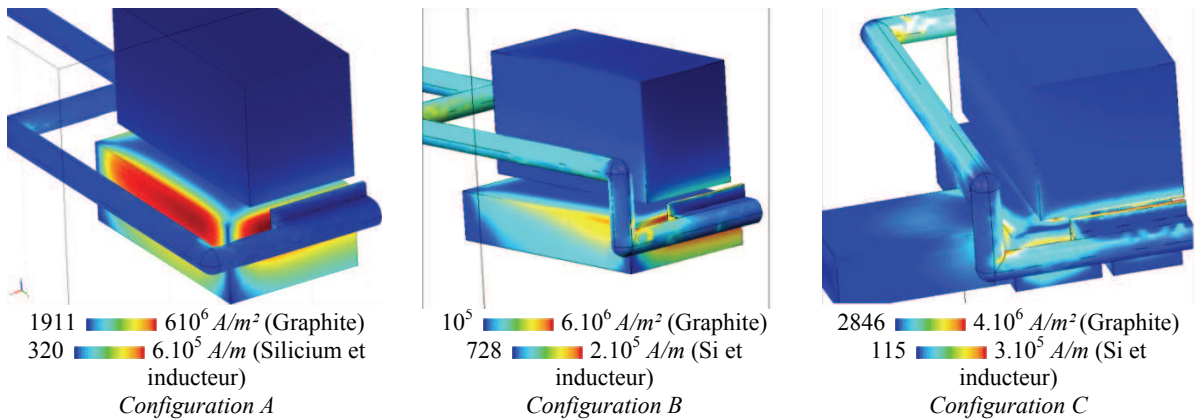


Figure 4–21 : Densité de courant de surface (inducteur et silicium) et densité de courant volumique (graphite).

La densité de courant induit maximal dans le silicium et dans le graphite garde le même ordre de grandeur dans les trois cas, $10^5 A/m$ ce qui ne donne a priori pas d'information sur l'évolution du couplage d'un cas à l'autre. Cependant, la carte de couleur permet de voir qu'on a beaucoup plus de région du volume graphite dont la densité de courant correspond au maximum de $10^6 A/m^2$, dans la configuration A que dans les deux autres, ce qui montre déjà que le bloc de graphite de cette configuration présente un couplage plus important avec

l'induction. On remarque la même chose pour le silicium, mais dans l'autre sens : l'inducteur surélevé des configurations B et C correspond bien à une coloration plus claire du silicium dans ces deux configurations que dans la première, où le couplage est beaucoup plus faible dans le silicium.

De la même façon, la carte de couleur est assez explicite pour le tracé de la puissance Joule induite, avec un ton rouge plus prononcé dans le résistor de la configuration A (fort couplage électromagnétique du graphite) à la configuration C (faible couplage), et inversement pour les faces du silicium, qui présentent une coloration plus claire pour les configurations B et C que pour la configuration A.

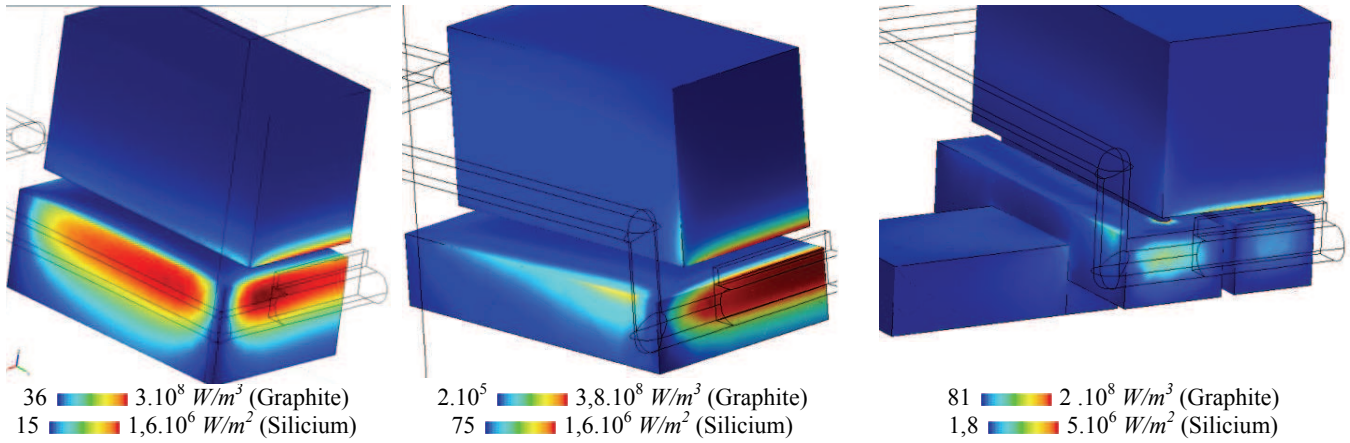


Figure 4-22 : Puissance Joule induite dans le silicium et dans le graphite.

L'intégration de la puissance Joule volumique, sur les faces silicium et dans le volume graphite, permet de quantifier le chauffage induit (P_{silicium} et P_{graphite}) dans les deux charges :

$$P_{\text{silicium}} \left(\iint_{S_i} \frac{1}{2} \text{Re}(\mathbf{J}_s \cdot \mathbf{E}^*) \right) \times 2 = \left(\iint_{S_i} \frac{1}{2\sigma} \text{Re}(\mathbf{J}_s \cdot \mathbf{J}_s^*) \right) \times 2 \quad (4-3)$$

$$P_{\text{graphite}} \left(\iiint_{\text{Gra.}} \frac{1}{2} \text{Re}(\mathbf{J} \cdot \mathbf{E}^*) \right) \times 2 = \left(\iiint_{\text{Gra.}} \frac{1}{2\sigma} \text{Re}(\mathbf{J} \cdot \mathbf{J}^*) \right) \times 2 \quad (4-4)$$

L'intégrale est multipliée par 2 afin de tenir compte de la géométrie complète, puisque la modélisation est faite pour une moitié de géométrie.

Les résultats pour les trois cas sont présentés dans le Tableau 4-3 ci-dessous (un tableau exhaustif est présenté en Annexe C) :

	F = 25kHz, h _S = 5cm				F = 30kHz, h _{Si} = 5cm			
	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)
Config. A	1082	2127	10342	6638	1064	1999	11346	4023
Config. B	1043	3140	5857	3799	1062	3536	7666	4014
Config. C	1058	5500	856	5290	1008	5614	1088	5212

Tableau 4-3 : Puissances Joule dans le graphite et le silicium, calculées pour I_{eff}~1000A et F=25 et 30kHz.

$P_{\text{inducteur}}$ est la puissance Joule induite dans l'inducteur calculée par le modèle d'impédance aux frontières de Comsol, qui donne une valeur peu fiable car on note des oscillations près de

la condition de potentiel imposé⁵. D'autre part, les courants inducteurs calculés sur les deux extrémités de l'inducteur ne sont pas rigoureusement identiques, et dépendent du maillage de ces zones. Les valeurs affichées dans le Tableau 4–3 est une moyenne de celles calculées sur les deux bouts (extrémité à potentiel imposé et extrémité située sur le plan de symétrie).

• Discussion

Pour la configuration A (inducteur plan) à $25kHz$, la puissance induite est de $10kW$ dans le graphite et $2kW$ dans le silicium. La modification de la géométrie de l'inducteur (configuration B) permet de diminuer la puissance induite dans le graphite de près de 50% ($5,8kW$) alors que celle induite dans le silicium augmente logiquement, mais seulement de $1kW$.

En passant d'un support en graphite massif au résistor de géométrie sinueuse (configuration C), on réduit encore le couplage, qui n'est plus que de $856W$ dans le graphite, mais elle augmente encore de $2kW$ dans le silicium.

Quant à la puissance induite dans l'inducteur, elle est importante mais évacuée par l'eau de refroidissement de l'inducteur pendant les expérimentations. Le diamètre du tube de l'inducteur doit être suffisamment grand et le débit suffisamment fort pour ne pas risquer une crise d'ébullition de l'eau dans l'inducteur.

c. Pression magnétique

La présence de la plaque de l'inducteur placée devant le creuset, induit une concentration des forces électromagnétiques et des courants induits à l'emplacement de la fente du creuset, prévu à la base du silicium. A cet endroit, les forces électromagnétiques, représentées par des flèches sur la Figure 4–23 sont orientées vers l'intérieur du silicium, ce qui explique la rétention du fluide à la fente.

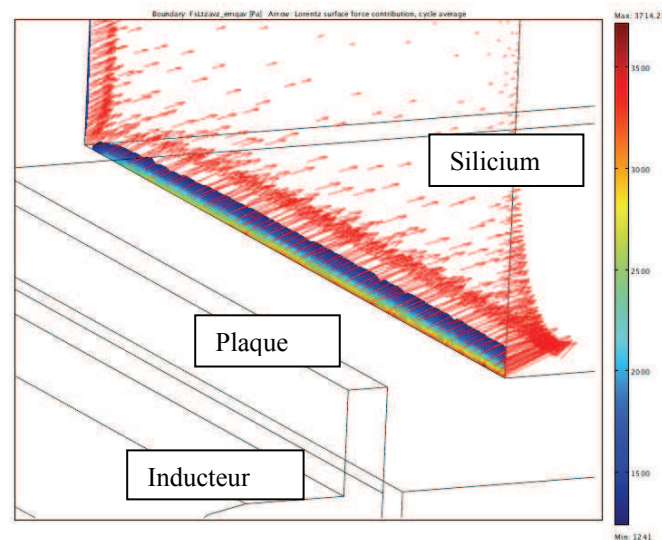


Figure 4–23: Forces de Lorentz (flèches) et pression magnétique (couleurs entre 1241 et 3700Pa) sur la face avant du silicium pour la configuration A.

⁵Une maille de l'inducteur présente une puissance de $-25,2kW$, si on la prend en compte la puissance Joule sur la face inducteur est de $-21kW$, ce qui est une valeur aberrante.

La pression magnétique est maximale à la base du silicium (le plus près de la plaque) et diminue rapidement suivant la hauteur. En effet, la pression magnétique tracée sur la face silicium au dessus de la plaque de l'inducteur (face xz) est supérieure à la pression hydrostatique de $1241Pa$ sur une hauteur de $2mm$, ce qui veut dire qu'en pratique on peut se permettre une fente de $2mm$ de haut pour un courant de $1000A$ à $25kHz$.

La pression magnétique décroît de façon rapide de la base du silicium ($z=0$) vers le haut ($z=5cm$), décroissance qui est directement liée à la diminution des forces électromagnétiques et bien visible sur le graphe de la Figure 4–24. Le graphique présente le tracé de la pression magnétique P_z en fonction de la hauteur z de silicium. Plusieurs valeurs de pression magnétique (de $x=0$ à $x=0,05cm$) correspondent à chaque abscisse z (mieux visible sur la Figure 4–24).

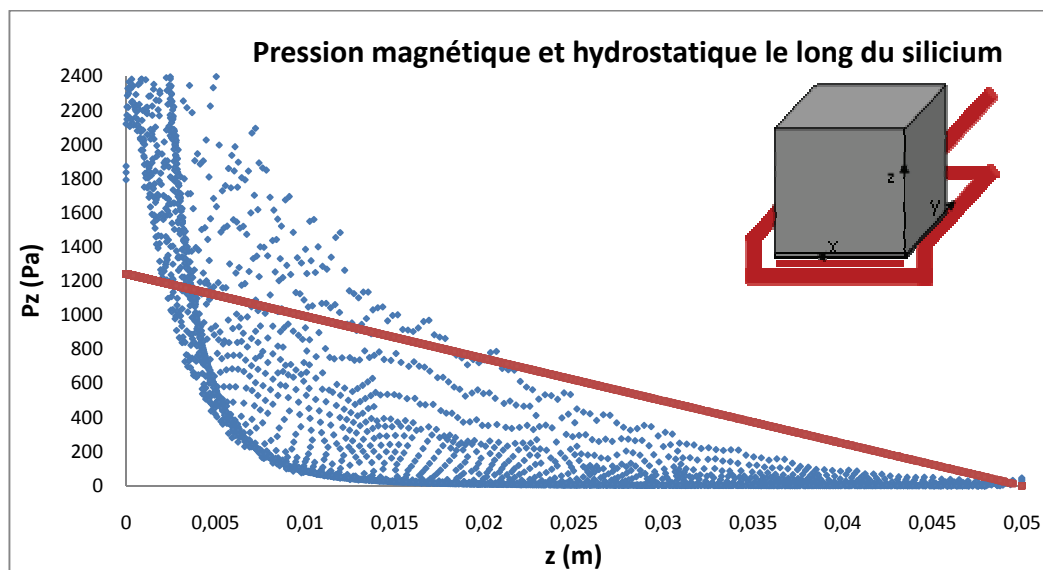


Figure 4–24 : Pression magnétique P_z (en bleu) et pression hydrostatique P_h (en rouge) pour tous les points (x, z) de la face avant du silicium. Configuration C, $1000A$, $25kHz$.

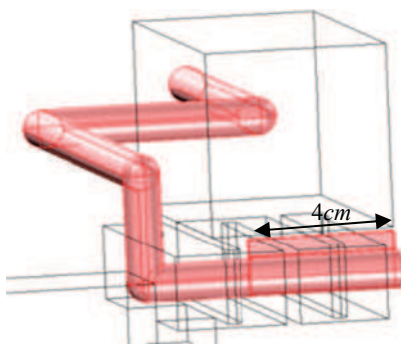
La hauteur pour laquelle la pression magnétique est supérieure à la pression hydrostatique augmente avec le courant inducteur (Tableau 4–4), comme on l'a vu dans les calculs de dimensionnement du Chapitre 3.

Courant	1000A	1300A	1470A
$h_{fente}(mm)$	2	3	3,7

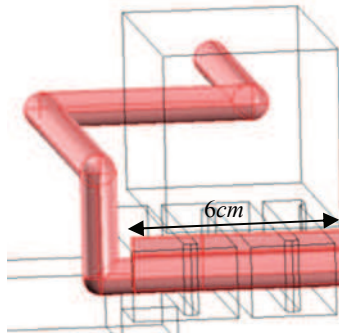
Tableau 4–4 : Hauteurs de fente correspondant à différents courants à $25kHz$, calculés pour la configuration C.

d. Effet de la longueur de plaque

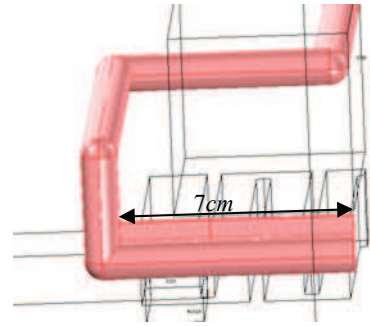
Intéressons nous maintenant à différentes dimensions de la plaque de l'inducteur (Figure 4–25) : $8cm$, $12cm$ et $14cm$, correspondant à différentes largeur de fente du creuset : de $5cm$ à $10cm$.



Config. C : plaque d'inducteur de 8cm de long



Config. D : plaque d'inducteur de 12cm de long



Config. E : plaque d'inducteur de 14cm de long, soudée aux tubes verticaux

Figure 4–25 : Différentes longueurs de plaque de l'inducteur.

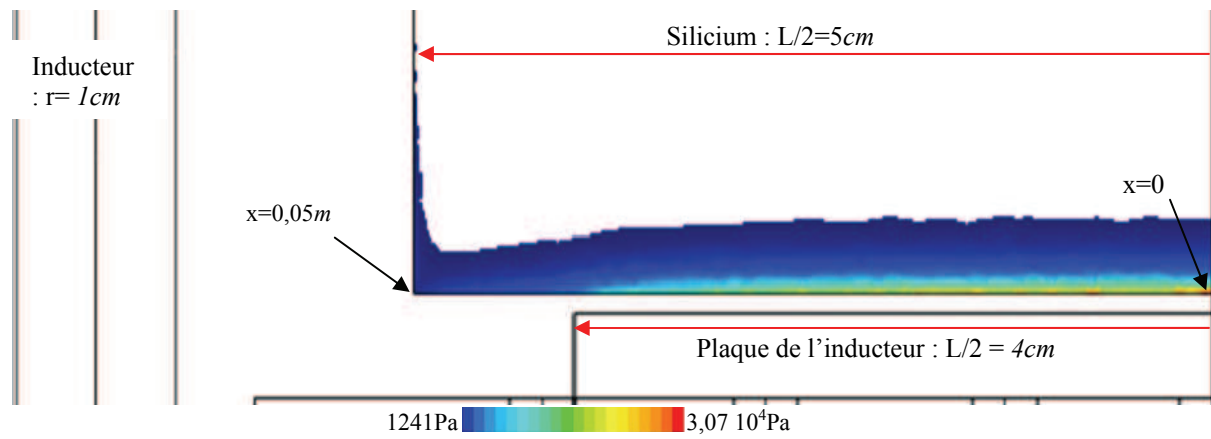
La modification de la longueur de la plaque de l'inducteur ne change que très peu la répartition du couplage avec le silicium. En effet, la puissance induite ne varie que de quelques centaines de watts dans le silicium : de 5,5 (plaque de 8cm) à 5,8kW (plaque de 14cm) pour 1000A et 25kHz. Cette petite augmentation est tout à fait normale puisque la plaque est positionnée très près du silicium.

La variation dans le graphite n'est pas significative, ce qui est logique étant donné que le changement des dimensions de la plaque ne change pas sa configuration par rapport à l'inducteur. Les valeurs comparatives des trois cas sont résumées dans le Tableau 4–5.

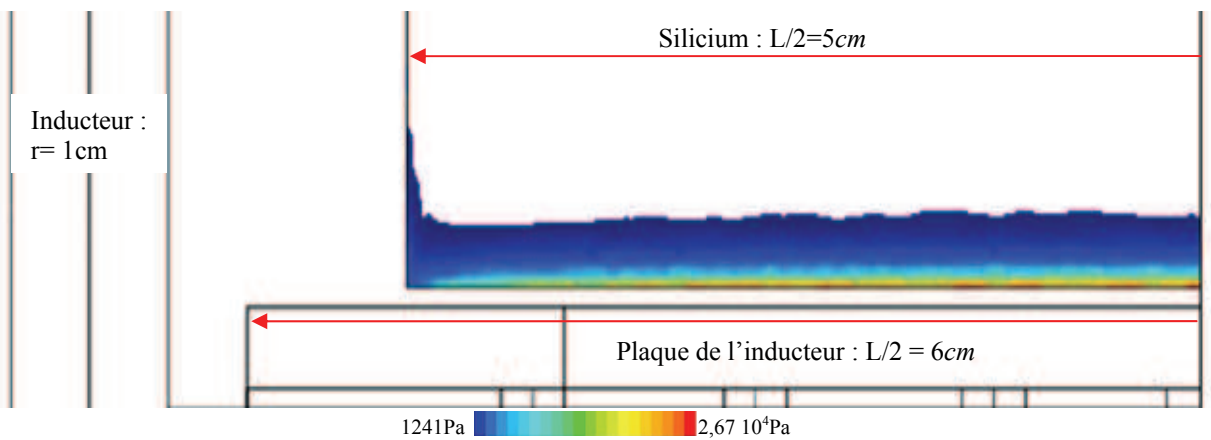
	F = 25kHz				F = 30kHz			
	$I_{eff}(A)$	$P_{silicium}(W)$	$P_{graphite}(W)$	$P_{inducteur}(W)$	$I_{eff}(A)$	$P_{silicium}(W)$	$P_{graphite}(W)$	$P_{inducteur}(W)$
Cas C	1058	5500	856	5290	1008	5614	1088	5213
Cas D	1051	5616	826	7453	1032	5867	1071	6280
Cas E	1043	5871	850	4290	997	6032	1083	4102

Tableau 4–5 : Valeurs pour les trois longueurs de plaque de l'inducteur : 8, 12 et 14cm.

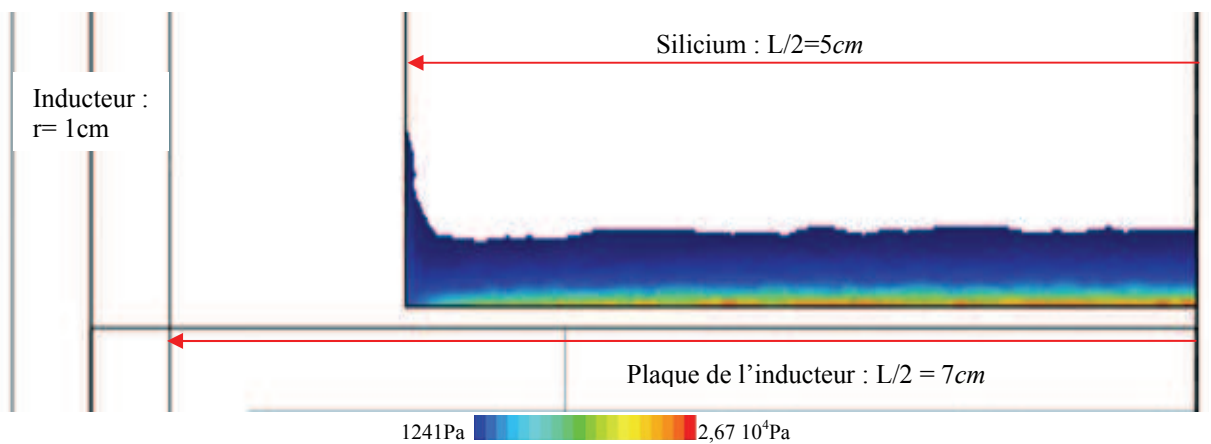
Par ailleurs, une longueur de plaque plus grande implique des forces électromagnétiques et donc des pressions magnétiques plus fortes sur une largeur plus étendue à la base du silicium (Figure 4–26).



Cas C : la pression magnétique est plus faible dans les coins du silicium, du fait de la longueur de la plaque de l'inducteur



Cas D : Les valeurs maximales de la pression magnétique s'étalent plus sur la largeur du silicium



Cas E : On ne note pas forcément de différence entre les cas E et D

Figure 4–26 : Pression magnétique à l'emplacement de la fente pour les trois longueurs de plaque de l'inducteur : 8, 12 et 14 cm.

La pression magnétique diminue de $x = 0$ (point situé sur le plan de symétrie) à $x = 0,05\text{ m}$ (bord du silicium) si on se déplace le long de l'arrête horizontale du creuset (bas de la fente et prolongement à $z = 0$). La Figure 4–27 montre l'effet de la longueur de plaque sur ce déséquilibre horizontal, ainsi que sur le niveau de répulsion électromagnétique : on constate que plus la plaque de l'inducteur est longue, plus la pression électromagnétique est élevée en un point donné, ce qui se traduit naturellement par une hauteur maximale de fente qui augmente avec la longueur de la plaque (Tableau 4–6).

Config.	A : L=8cm	B : L=8cm	C : L=8cm	D : L=12cm	E : L=14cm
$h_{fente}(m)$ pour I = 1000A à 25kHz	0,0055	0,005	0,023	0,022	0,02
$h_{fente}(m)$ pour I = 1000A à 30kHz	0,0056	0,006	0,024	0,014	0,018

Tableau 4-6 : de fentes estimées pour les cas A à E (F=25kHz, I~1000A).

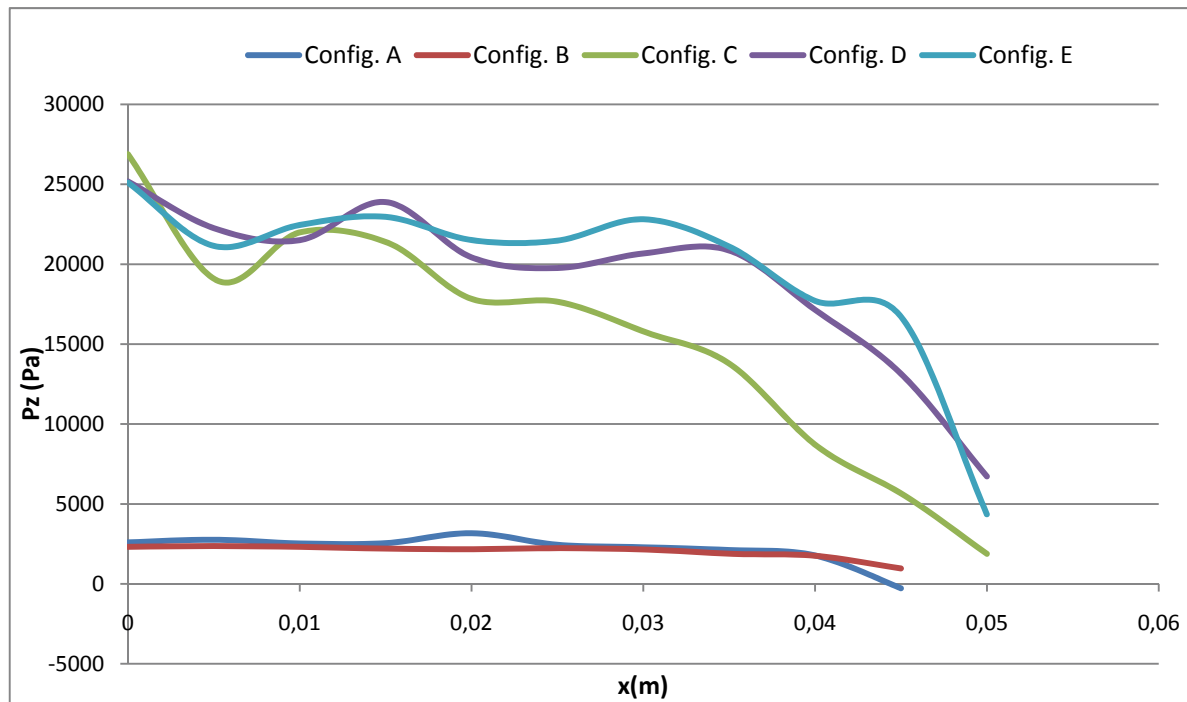


Figure 4-27 : Pression électromagnétique en fonction de x 'largeur du creuset) à z=0 pour les configurations A à E.

e. Puissance induite dans le résistor haut

Deux types de résistors hauts ont été utilisés lors des tests (Figure 4-28). Leur rôle est non seulement de fournir la puissance nécessaire à la fusion, mais aussi de contrôler la solidification. Ils ont une forme en serpentín qui permet d'avoir une grande résistivité électrique. Le second présente en plus une partie qui descend vers le bas du creuset afin de combler les pertes thermiques au niveau de la fente. Cette compensation est indispensable pour la cristallisation d'une fine couche de silicium (Chapitre 5).

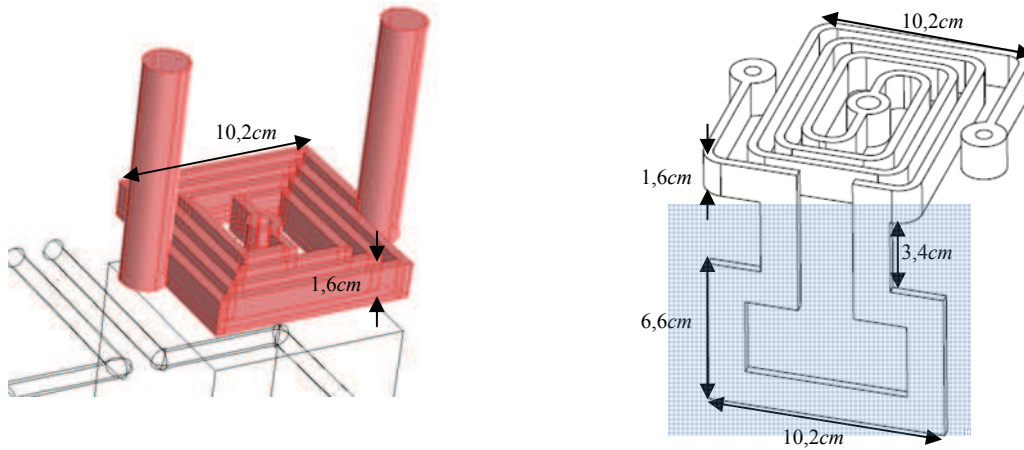


Figure 4–28 : Schéma Comsol (gauche) du premier résistor haut et schéma Catia (droite) du deuxième résistor haut.

Seule la partie basse du second résistor, mise en évidence sur la Figure 4–28 est modélisée. Ainsi, la puissance Joule effective de ce résistor est égale à celle induite dans la partie basse, plus celle induite dans le premier résistor haut.

Nous remarquons tout d’abord que la puissance induite dans le résistor haut est très faible par rapport à celle induite dans les autres charges : entre 40 et 50W. Il est donc suffisamment éloigné de l’inducteur et n’est pas perturbé par l’induction. Cependant, la partie basse du second résistor haut est suffisamment proche de l’inducteur (Figure 4–29) pour augmenter le couplage d’au moins un facteur 2 (Tableau 4–7), avec 47W de plus à 25kHz et 59W de plus à 30kHz.

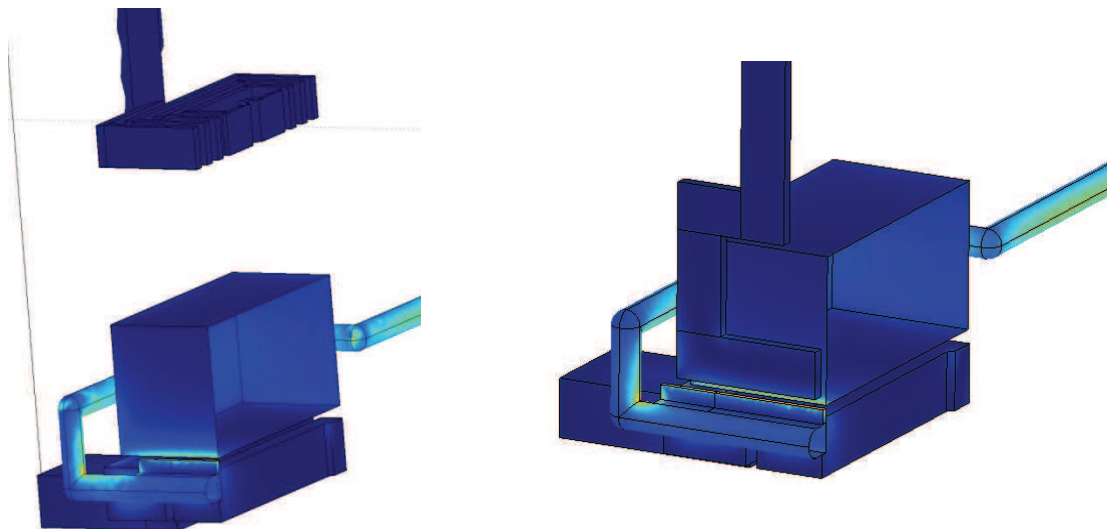


Figure 4–29 : Densité de courant de surface sur le silicium et l’inducteur et puissance induite dans les volumes résistors.

	F = 25kHz				F = 30kHz			
	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)
Config. C	1058	5500	RB : 856	5290	1008	5614	RB : 1088	5213
Config. F (1 ^{er} résistor haut)	1050	5521	RB : 857 RH : 43	5322	1027	5592	RB : 1090 RH : 52	5405
Config. G (2 ^e résistor haut)	1077	5303	RB : 809 RH : 90	5435	1030	5753	RB : 1028 RH : 111	5476

Tableau 4-7 : Puissances Joules calculées avec et sans les deux résistors haut.

- $h_{Si}=10cm$

La hauteur de silicium liquide effectivement utilisé en pratique dépend de façon aléatoire du remplissage du creuset en silicium solide. Il est intéressant de considérer le cas où on aurait la hauteur maximale pour le creuset utilisé : 10cm. Pour un courant inducteur ~1050A à 30kHz, on constate qu'il n'y a presque pas de différence entre le couplage pour 5cm et 10cm de hauteur de silicium (Tableau 4-8).

	Cas B $h_{Si}=5cm$	Cas B $h_{Si}=10cm$
P _{Si} (W)	3536	3459
P _{Graphite} (W)	7666	7500

Tableau 4-8 : Comparaison entre deux hauteurs de silicium liquide : 5cm et 10cm. Résultats calculés pour la configuration B (résistor en graphite massif et inducteur surélevé).

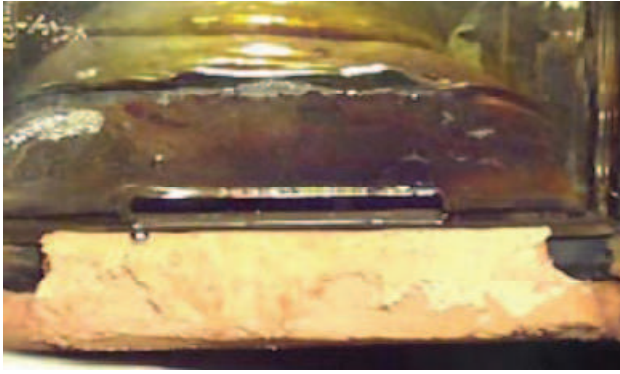
4.3 Validation expérimentale

Deux dimensions de fente ont été considérées : 5cm et 10cm de long pour des hauteurs (h) allant de 1 à 5mm. On a pu constater que pour h=1mm et h=2mm, la vidange du creuset est partielle, à cause des problèmes de tension de surface compliqués par l'oxydation du silicium dans la fente, sans doute lié à un dégagement d'oxygène lors de la fusion du silicium, ou à la désorption d'oxygène depuis certains éléments de l'enceinte, dont l'atmosphère reste légèrement oxydante en dépit de la circulation d'argon.

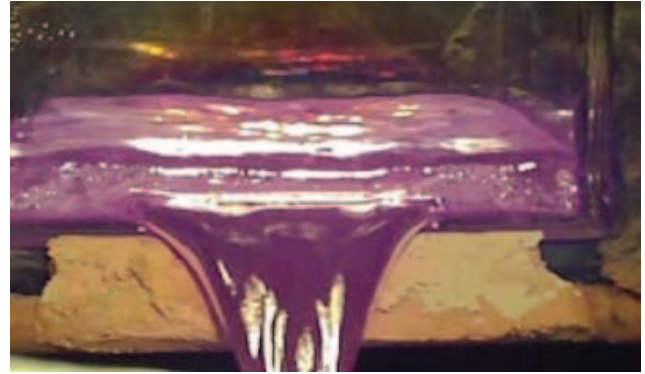
4.3.1 Fente de 5cm :

Ce test reproduit la configuration C que nous avons modélisée : inducteur surélevé avec la plaque placée juste en dessous de la fente et en présence du résistor bas. Il faut 1500A pour retenir ~2cm d'étain dans une fente de 4mm de haut (Figure 4-30).

Le modèle 3D au silicium (hauteur de métal =5cm), pour cette configuration C, prévoit pour un courant de 1470A et 25kHz une possibilité de rétention sur une hauteur de fente de 3,7mm (Tableau 4-4). Cela montre bien que la modélisation est fidèle à l'expérience (la différence de densité étain/silicium compense la différence de hauteur de métal).



$I=1600A$. Le liquide est refoulé dans le creuset



$I=0$: l'étain liquide coule par la fente

Figure 4–30 : Rétention et évacuation de 1kg d'étain dans un creuset avec fente de 5cm de large et 4mm de haut.

La présence du résistor bas n'influe pas sur les paramètres électriques nécessaires pour la rétention électromagnétique : il couple assez peu grâce à sa géométrie et sa position dans la configuration.

Malgré la grande hauteur de fente (4mm), il reste encore environ 2mm de liquide dans le creuset après vidange, soit une hauteur équivalente à la moitié de celle de la fente. On remarque que la fente n'est pas bouchée et que l'étain reste liquide pendant plusieurs minutes. Ceci montre que l'inducteur qui est assez froid (température de l'eau de refroidissement) est suffisamment isolé du creuset grâce au revêtement de céramique (Figure 4–31).



Figure 4–31 : Il reste 2mm de liquide dans le creuset après vidange.

Une bonne évacuation du fluide, une fois l'induction coupée est importante car, comme nous le verrons dans le chapitre suivant, le but de nos tests de fusion et cristallisation de silicium est en plus de retenir le fluide, de pouvoir l'évacuer une fois qu'une fine couche de silicium est cristallisée. Nous procédons à ces étapes de solidification partielle, suivies de vidange afin de nous rapprocher au plus près des conditions de cristallisation du procédé ruban dont cette étude est le précurseur, l'installation actuelle en reproduisant la plupart des paramètres sauf l'aspect tirage.

La solution envisagée pour mieux vider le creuset est d'incliner l'installation expérimentale. Nous l'avons donc penchée de 8° par rapport à l'horizontale.

4.3.2 Fente de 10cm :

Pour cette largeur de fente, nous avons testé deux inducteurs légèrement différents (il s'agit dans chaque cas de l'inducteur surélevé dont nous avons adapté la forme) : un premier inducteur présentant une plaque de 11cm de long (ne dépassant la fente que de 5mm de chaque côté, correspondant à la configuration D modélisée) et le second inducteur présente une plaque de 14cm de long (configuration E de la modélisation).

Plaque de 11cm : Le creuset est posé sur des plaques de silice lui servant de support. Lors de tests à l'étain, nous avons constaté que la rétention électromagnétique n'est pas effective : le liquide coule par les côtés (Figure 4–32), montrant une insuffisance de pression magnétique dans ces endroits, malgré les résultats de modélisation (configuration D), ce qui montre encore une fois que la modélisation n'est pas toujours en adéquation avec la réalité, surtout lorsqu'on compare des modèles magnétostatiques au silicium avec les expériences (en principe similaires) à l'étain (dans lequel la pression dynamique n'est sans doute plus négligeable).

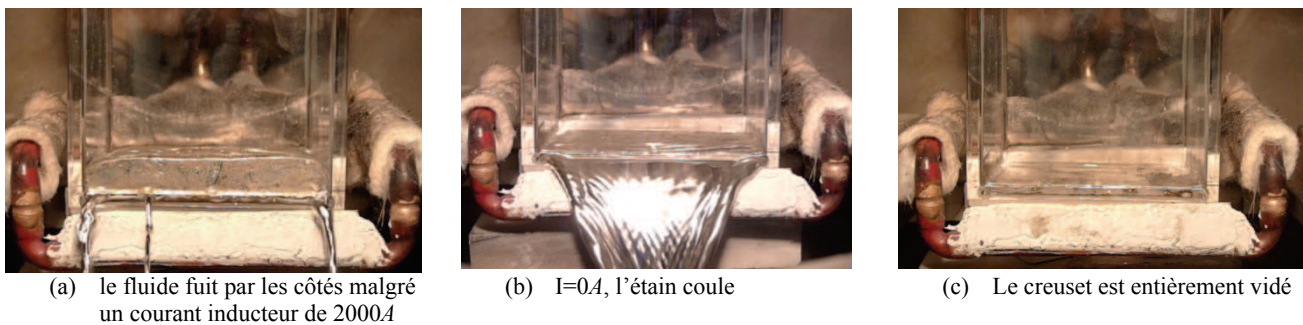


Figure 4–32 : Configuration expérimentale avec inducteur de 11cm.

Le creuset se vide entièrement une fois l'induction coupée, montrant l'efficacité de l'inclinaison de l'installation.

Plaque de 14cm : Malgré la plaque rallongée; il faut beaucoup plus de courant électrique qu'en théorie (modélisation) pour assurer la rétention électromagnétique. En effet, la position de la plaque de l'inducteur a légèrement changé par rapport à celle considérée pour la modélisation : une lamelle de quartz de 2mm d'épaisseur (minimale sous risque de fracturer le creuset durant les tests chauds) est pratiquée en dessous du creuset (Figure 4–33) afin de protéger la plaque du fluide chaud et aussi de rapprocher un peu plus la plaque de la fente.

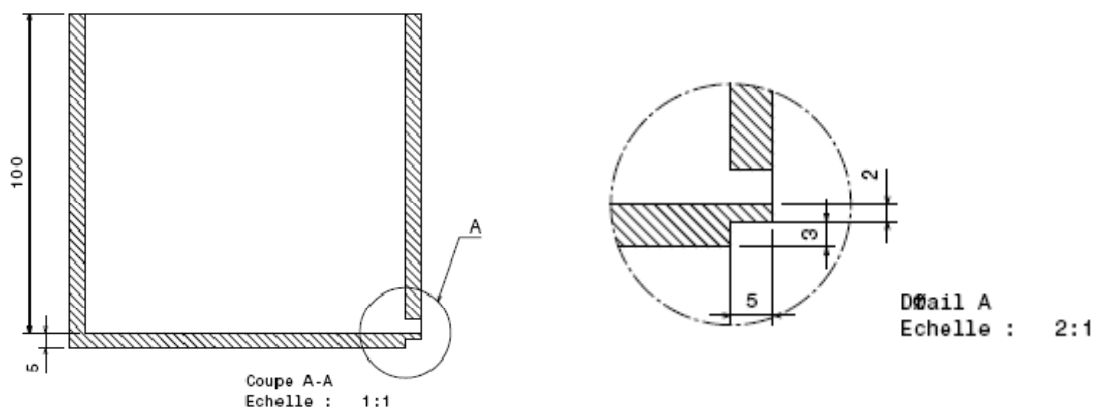


Figure 4–33 : Creuset avec petite lamelle de quartz servant d'encoche à la plaque de l'inducteur.

Cette nouvelle configuration a pour effet d'une part de rapprocher les forces électromagnétiques de la fente dans le sens où nous gagnons 5mm (suivant y). Mais d'un autre côté, le fait qu'on soit maintenant à 2mm en dessous de la fente (suivant z), les en éloigne dans cette même direction, ce qui se ressent sur les valeurs de courants de rétention.

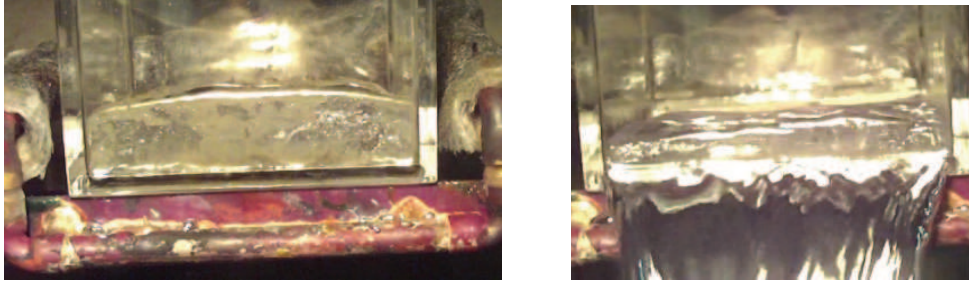


Figure 4–34: A gauche : Photo de rétention à 25kHz et 1900A . Le fluide est repoussé dans le creuset ; A droite : le liquide coule à $I=0$.

Il a fallu $\sim 1800\text{A}$ à 25kHz pour retenir l'étain liquide dans le creuset (Figure 4–34). Nous notons par ailleurs la grande sensibilité de la configuration expérimentale : toute modification inopinée de la position du creuset par rapport à l'inducteur (suivant y ou z) conduit à une petite variation des forces électromagnétiques, ce qui se traduit en général par un courant de rétention plus élevé.

La rétention électromagnétique a ensuite été validée sur du silicium liquide. Ces tests ayant été menés en parallèle avec les tests de cristallisation sous brassage, les résultats expérimentaux seront présentés au chapitre suivant (Chapitre 5).

4.4 Conclusion

Nous avons donc validé la rétention électromagnétique de l'étain liquide en configurations cylindriques ($\sim 1000\text{A}$ à 25kHz) et carrées ($\sim 1500\text{A}$ à 25kHz pour une fente large de 5cm et $\sim 1800\text{A}$ à 25kHz pour une fente large de 10cm). La hauteur de silicium retenue dans la fente a été estimée avec plus de précision qu'au Chapitre 2, grâce au calcul de la pression magnétique à cet endroit : on trouve respectivement 2 , 3.5 et 3.7mm de silicium retenu pour 1000A , 1300A et 1470A contre 1 , 5 et 6mm prédits par le calcul axisymétrique, malgré l'absence de la plaque de concentration de l'inducteur dans la modélisation. Nous avons vu que ces résultats de calculs ne représentent que qualitativement les expériences à l'étain, puisqu'avec 1000A d'induction, nous avons réussi à retenir le liquide dans un creuset présentant une fente de 4mm de haut ; ce qui est mieux que les 2mm du calcul en 3D.

Par ailleurs, les différentes modélisations 3D ont permis de comprendre la circulation du courant induit dans les charges, le résistor bas en particulier dont la géométrie est complexe. Nous avons également calculé la puissance Joule induite dans les charges selon la géométrie de l'inducteur et du support (résistor), justifiant ainsi le choix de la configuration la plus favorable pour une cristallisation en présence du système électromagnétique.

Chapitre 5 Brassage électromagnétique et ségrégation des impuretés

5.1 Introduction

Lors de la solidification d'un corps contenant des impuretés on constate que la répartition des impuretés dans le solide et dans le liquide n'est pas uniforme. Cette inhomogénéité s'explique par la faible solubilité des impuretés dans le solide, d'où l'augmentation de leur concentration dans le liquide au fur et à mesure que le front de solidification avance [Chalmers, 1967]. C'est la ségrégation chimique, phénomène bien connu en métallurgie. Plusieurs études en font état comme celles de [Gasparini et Rota, 1983], qui ont montré l'intérêt de la ségrégation lors de la solidification de différents échantillons de silicium dopés à des concentrations différentes de fer. Ils ont démontré que la ségrégation est un moyen de purification très efficace dans les procédés de solidification directionnelle.

Le dernier liquide solidifié est logiquement le plus chargé en impuretés par comparaison à la base du lingot, qui par contre peut être polluée par diffusion solide d'impuretés. Cette pollution est due à un contact trop prolongé à chaud entre le lingot et le creuset après solidification (Figure 5–1). Ces deux extrémités sont en général découpées et jetées, car trop polluées pour être utilisables. Cependant, les risques de diffusion solide d'impuretés sont plus faibles dans le cas des procédés de tirage de ruban où le solide reste moins longtemps en contact avec le creuset.

Les creusets utilisés sont souvent enduits d'un revêtement de nitrure de bore (BN) ou nitrure de silicium (Si_3N_4 , revêtement que nous avons utilisé lors de nos expériences). Ceci permet de réduire la contamination du matériau (principalement en Carbone dans le cas d'un creuset en graphite et en oxygène pour le creuset en quartz) et de faciliter l'extraction du lingot solidifié.

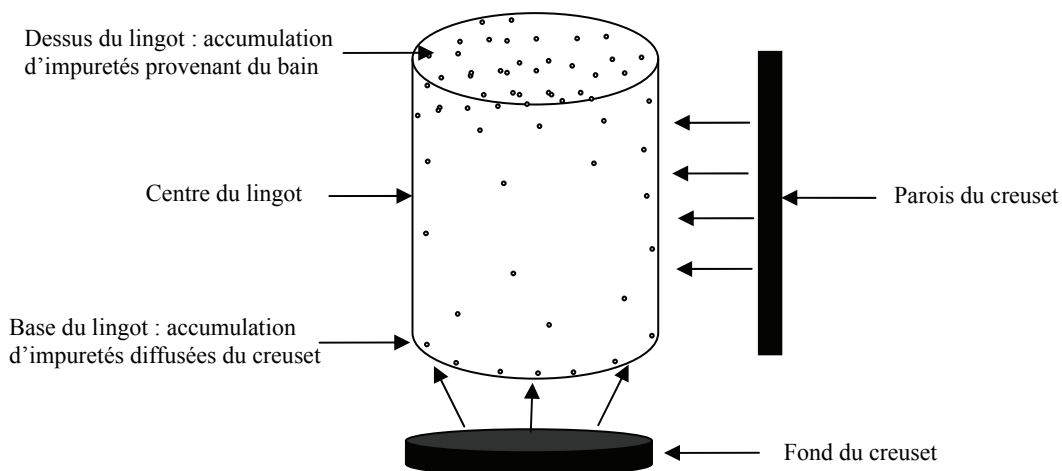


Figure 5–1: répartitions des impuretés dans un lingot après solidification directionnelle.

Nous proposons dans cette étude d'améliorer la ségrégation des impuretés grâce à un brassage créé par des forces électromagnétiques permettant l'homogénéisation des impuretés dans le bain.

L'intérêt des champs magnétiques pour l'amélioration de la qualité cristalline des semi-conducteurs est connu depuis de nombreuses années. L'application d'un champ magnétique constant à un fluide conducteur électrique permet de supprimer la convection dans le fluide et le transport des impuretés du creuset vers le liquide [Hurle et Chedzey, 1966], [Hurle, 1967], [Utech et Flemings, 1970]. [Vogel, 1977] et [Coriell, 1984] ont montré l'effet de la convection forcée sur l'homogénéisation (température et concentration) et la diminution de l'épaisseur de la couche limite solutale.

Des travaux plus récents traitent le couplage entre la ségrégation des solutés et un champ magnétique alternatif : [Stelian, 2005] et [Mitric, 2006] ont étudié l'effet d'un champ magnétique sur la ségrégation chimique (radiale) lors de la solidification Bridgman d'un alliage concentré semi-conducteur de GaInSb (Gallium-Indium-Antimoine). Leurs travaux ont montré que le champ magnétique permet de diminuer la ségrégation radiale (ce qui influe sur la courbure de l'interface pour ces alliages fortement concentrés...). Dans le cas d'un front dendritique avec une zone pâteuse, les travaux de Medina [2000] portant sur l'étude de l'influence de la convection forcée créée par un brassage électromagnétique sur la ségrégation de solutés lors de la solidification directionnelle d'un alliage métallique, ont montré que le champ magnétique modifie la distribution des solutés.

Ce chapitre se divise en trois parties : dans la première, nous présentons les différents tests de fusion et cristallisation de silicium sous brassage et rétention électromagnétique. Dans la seconde partie, nous exposons les résultats de ségrégation des impuretés obtenus dans ces expériences, et dans la troisième partie, nous présentons différents modèles de ségrégation en régime turbulent et leur comparaison aux expériences.

5.2 Expériences

5.2.1 Contrôle thermique

Comme décrit en Chapitre 2, le système nécessaire à la fusion et la solidification du silicium est composé de deux résistors en graphite ; Ces résistors servent de régulateurs thermiques et permettent de contrôler le gradient thermique et la température. Nous disposons aussi de quatre sondes de mesure de la température. Le flux est évacué par le bas du creuset tandis que la solidification a lieu en sens inverse : le gradient thermique est donc stabilisant ce qui favorise la solidification colonnaire. L'interface est stable (front plan) si ce gradient est suffisamment élevé.

L'étude du contrôle thermique s'est déroulée suivant plusieurs étapes :

- Calculs thermiques monodimensionnels de flux (Chapitre 2) démontrant la faisabilité du contrôle thermique du futur procédé ruban ;
- Calculs fluent en axisymétrique (Chapitre 3) pour évaluer le couplage électromagnétique du bloc de graphite servant de support au creuset. Ce calcul a permis de choisir la fréquence et de quantifier le courant nécessaire pour assurer la rétention sans perturber exagérément la thermique ;
- Intégration du support graphite chauffant dans l'expérience, évaluation expérimentale des pertes par la méthode du décrétement logarithmique [Ernst et Garnier, 1989] et comparaison aux calculs ;

- Tests au silicium avec les deux régulations thermiques et contrôle de température avec thermocouples.

La troisième étape de ce développement du contrôle thermique est liée à la conductivité électrique du graphite, dont l'intégration dans les tests provoque un couplage électromagnétique supplémentaire peu souhaitable. Au lieu d'avoir tout le courant induit dans le silicium, une partie sera déviée dans le graphite, ce qui nécessite plus de courant pour la rétention électromagnétique.

Les mesures au décrémenteur logarithmique (mesure de fréquence et amortissement de la tension du circuit oscillant évoluant librement après charge du condensateur, avec ou sans le support graphite) ont permis d'estimer le couplage avec le support graphite dans la configuration expérimentale de base en utilisant l'étain au lieu du silicium car il est conducteur électrique à l'état solide. Pour une puissance totale de $17kW$ dissipée dans le système (étain + support + inducteur), d'après nos mesures au décrémenteur on dissipe $5kW$ dans le graphite, $742W$ dans l'étain et $11kW$ dans l'inducteur. Ces résultats ont été retrouvés qualitativement par le calcul (Fluent + module d'induction, limité aux cas axisymétriques), et sont détaillés dans l'Annexe B.

Ce fort couplage vers le support nous a incité à segmenter le graphite pour diminuer le couplage, en y pratiquant des fentes de $5mm$ de profondeur séparées par une distance de $5mm$, et à l'éloigner de la bobine (distance horizontale = $1cm$ depuis la plaque verticale soudée à l'inducteur).

Des tests de chauffage ont été réalisés, avec le graphite ($110 \times 90 \times 30mm$) directement posé sur la sole de cuivre refroidie. Le graphite seul avec l'inducteur chauffe jusqu'à $1140^\circ C$ pour un courant dans l'inducteur de $1856A$. Nous avons également montré qu'il faut un courant de plus de $1700A$ pour assurer l'étanchéité électromagnétique dans un creuset carré avec support graphite contre $1500A$ sans graphite.

La quatrième étape de ce développement du contrôle thermique a nécessité quelques aménagements supplémentaires pour le silicium. En effet, contrairement aux tests à l'étain qui ne nécessitaient pas de contrôle thermique, une bonne isolation thermique de l'installation est requise pour les tests au silicium. Il faut isoler le creuset par rapport à l'atmosphère de l'enceinte grâce à des isolants graphites et par rapport à l'inducteur qui est un point froid car il est parcouru par une circulation d'eau de refroidissement. Pour cela, l'inducteur est protégé par un ciment réfractaire. Nous mettons un soin particulier à isoler la plaque de l'inducteur afin de ne pas refroidir la fente, ce qui pourrait la boucher par refroidissement du silicium à cet endroit.

Deux expériences de fusion de silicium ont été réalisées spécifiquement afin d'estimer les pertes thermiques dues à la fenêtre de visée pratiquée dans l'isolant au niveau de la fente du creuset. Nous avons bouché cette fenêtre visuelle lors de la première expérience (n°AX43) et l'avons laissée ouverte lors de la deuxième expérience (n°AX45). Le suivi des essais (voir paragraphe suivant) s'effectue grâce aux températures des résistors (mesurées par thermocouples et régulées), à la puissance de chauffe des résistors (courant mesuré par une sonde Rogowski, et tension lue sur l'alimentation régulée), et à la fréquence de l'induction.

Les données mesurées deux heures après le début de l'expérience, dans une phase où le silicium est encore solide (d'après la fréquence de l'induction), mais supposé stabilisé presque à température de fusion (d'après la température des thermocouples et le courant des résistors) sont rassemblées dans le Tableau 5–1. On obtient une puissance totale de chauffe plus élevée lorsque la fente est bouchée que lorsqu'elle est ouverte, alors qu'on s'attendait bien sûr à l'inverse. Ceci est sans doute dû à un équilibre thermique pas parfaitement atteint dans l'une des expériences (ou les deux), et donc un terme d'inertie thermique et/ou de consommation de chaleur latente qui fausse l'interprétation des puissances de chauffe comme une perte thermique.

	Résistor haut		Résistor bas	
	Fente bouchée	Fente non bouchée	Fente bouchée	Fente non bouchée
Courant (I)	125	137	278	231
Tension (V)	22	26	12	9.2
Puissance (W)	2750	3562	3336	2125
$\Delta P(W)$	+812		-1210	

Tableau 5–1 : Pertes thermiques de l'installation avec ou sans isolation de la fente.

Nous retenons cependant de ces expériences que les pertes thermiques globales de l'installation sont voisines de $6kW$. D'après les calculs 3D effectués avec le logiciel Comsol pour $25kHz$ et $1050A$ de courant inducteur (correspondant aux paramètres électriques utilisés pendant nos expérimentations) l'induction électromagnétique injecte une puissance Joule de $5,6kW$ dans le résistor du bas. Cette puissance induite, équivalente aux pertes thermiques totales, suffit donc largement à compenser les pertes thermiques par la fenêtre de visualisation, qui ne représentent qu'une partie des $6kW$ de pertes. Par contre, lorsqu'on arrête l'induction, on obtient une rapide cristallisation du silicium dans la fente, à cause des pertes locales non compensées, comme nous l'avons observé expérimentalement au cours d'une de nos expériences de cristallisation.

5.2.2 Cristallisation du silicium sous rétention et brassage électromagnétique

Les premiers tests au silicium réalisés suite aux dimensionnements thermique, électromagnétique et aux tests de validation de la rétention électromagnétique sur l'étain, nous ont permis d'adapter notre installation expérimentale pour la cristallisation du silicium. Il a fallu en particulier :

- Supprimer les points froids, dus à la proximité de l'inducteur refroidi et à l'ouverture (pratiquée dans l'isolant feutre de graphite) permettant de visualiser la fente. L'isolation thermique de l'inducteur peut se faire en utilisant de la laine de quartz, matériau souple et isolant pouvant tenir jusqu'à $1700^{\circ}C$. On peut également le mouler dans du ciment réfractaire (alumine), option que nous avons adopté. Pour la fente, nous avons limité au strict nécessaire l'ouverture dans l'isolant permettant la visualisation. La puissance joule induite qu'elle reçoit, particulièrement intense du fait de la plaque concentrateur de champ, contribue à combler la perte thermique par rayonnement.
- Homogénéiser la température au fond du creuset grâce à un disque de feutre de graphite placé sur la sole refroidie. On arrive ainsi à empêcher le trop fort refroidissement du silicium par rayonnement sur la sole à travers les « fentes » du résistor du bas. Nous avons constaté que le déséquilibre entre ce rayonnement et le

chauffage par le résistor crée d'importantes contraintes thermiques pouvant conduire à une rupture du creuset ;

- Mettre au point les mesures de température indispensables pour le pilotage des résistors graphite en atténuant les perturbations hautes fréquences de l'induction sur les thermocouples (filtres passe bas, blindages) ;
- Utiliser des creusets avec des finitions bien travaillées (bords et coins de la fente) afin d'éviter les fissures et allonger la durée de vie du creuset qui est d'environ une expérimentation. En particulier, la faible épaisseur de quartz laissée entre le fond du creuset et la plaque de l'inducteur (Figure 5–2), doit être supérieure à 1mm afin de permettre le « glaçage » des contours de la fente pendant l'élaboration du creuset. Sans cette opération de glaçage, des fractures provenant des coins du creuset apparaissent rapidement en cours d'expérimentation ;

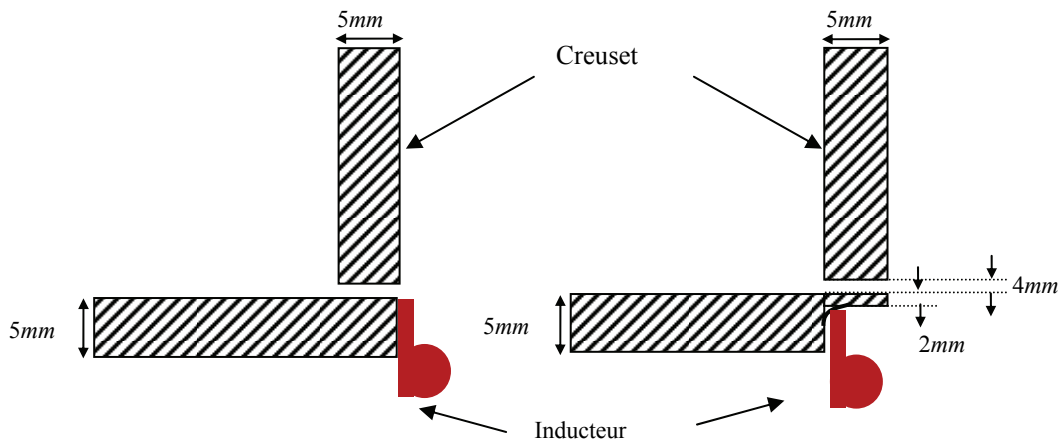


Figure 5–2 : Creuset classique à gauche, creuset avec encoche et lamelle de protection à droite.

Remarque : L'intérêt de cette lame de quartz est de former une encoche permettant de rapprocher la plaque de la fente tout en la protégeant du silicium chaud pendant la vidange du creuset.

- Incliner l'installation d'un angle de 8° et utiliser des creusets dont la hauteur de fente est d'au moins 4mm afin de parer aux problèmes de tensions de surface empêchant la vidange ;

Le protocole opératoire se déroule suivant trois grandes phases : la fusion, la cristallisation et la coulée du liquide restant. La phase de rétention électromagnétique accompagne les deux premières car elle est nécessaire tant que du liquide existe dans le creuset.

Les expériences ont lieu sous circulation d'argon, qui est un gaz neutre non réactif, afin d'évacuer tous les produits gazeux pouvant apparaître à la fusion d'un silicium métallurgique (en particulier l'oxyde de silicium SiO qui après réaction avec les éléments en graphite (CO) pourrait donner du carbure de silicium SiC).

L'inducteur en cuivre est alimenté en courant alternatif, à une fréquence autour de 25kHz . Les tests évoqués ici ont été effectués dans des creusets avec fente de $4 \times 50\text{mm}$ ou $4 \times 100\text{mm}$.

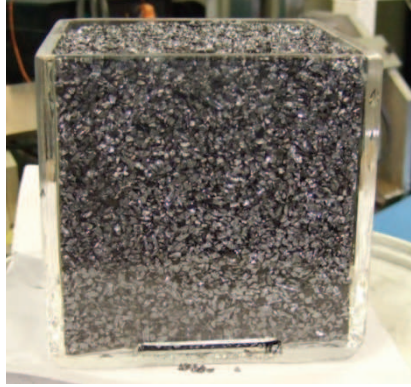


Figure 5–3 : Creuset carré rempli de silicium ; fente : $4\text{mm}\times 50\text{mm}$.

La durée d'une expérience varie de 4 à 8h selon que l'on veuille cristalliser une couche ou un lingot. Une consigne de 1500°C imposée aux deux résistors, permet de fournir au silicium la puissance nécessaire à sa fusion. Une fois cette consigne atteinte (au bout d'environ 50mn), nous mettons l'induction en marche, ce qui permet :

- d'accélérer la fusion en compensant les pertes thermiques par la fente dès apparition des premières gouttes de liquide. On met directement un courant inducteur supérieur à celui qu'il faut pour assurer la rétention électromagnétique (déterminée grâce aux calculs et tests préliminaires à l'étain) ;
- d'observer l'évolution de la courbe de fréquence de l'induction (acquisition sur l'ordinateur), ce qui permet de suivre l'état de la fusion et de la solidification. En effet, pendant la fusion (ou la solidification), le changement de conductivité électrique du silicium entraîne une variation de la section de passage du flux du champ magnétique. Cette variation se traduit par une augmentation de la fréquence pendant la fusion et une diminution de fréquence pendant la cristallisation.

La Figure 5–4 présente les données enregistrées durant l'expérience AX43, au cours de laquelle nous avons fondu puis cristallisé 850g de Si, de composition initiale connue (en phosphore (P), fer (Fe), cuivre (Cu) et aluminium (Al)). L'évolution des données (courant et fréquence inducteur, températures et courants des résistors) permet de décrire clairement les différentes phases de l'expérience.

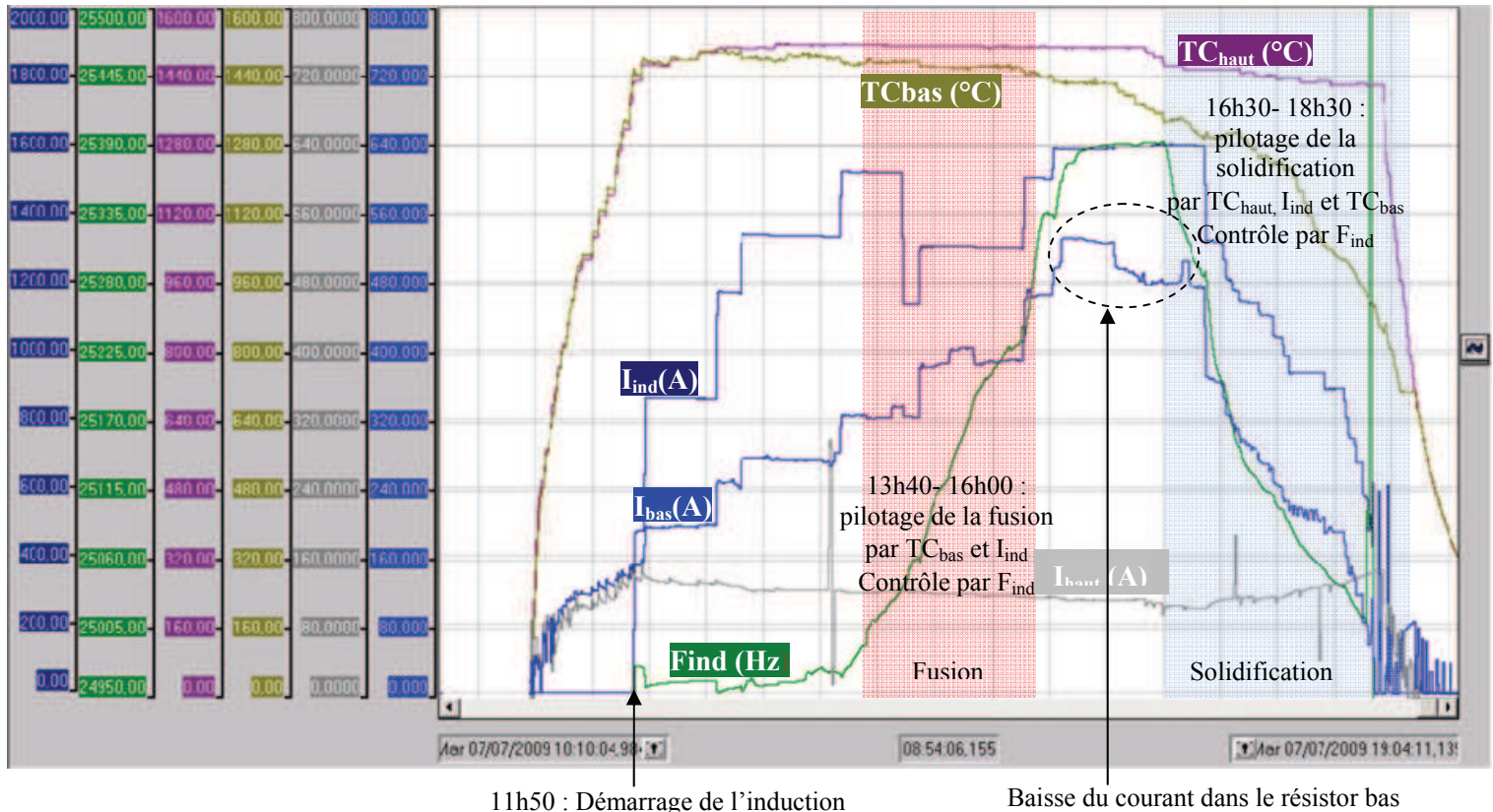


Figure 5-4 : Données acquises lors d'un test de fusion et cristallisation de Si sous brassage électromagnétique.

L'induction électromagnétique est activée lorsque les deux résistors atteignent une température de 1450°C . Le silicium est alors proche de sa température de fusion. Sa conductivité électrique variant d'une valeur quasi nulle à l'état solide à $1,25 \cdot 10^6 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ à l'état liquide, il est susceptible de coupler avec les forces électromagnétiques dès que la fusion commence. La rétention électromagnétique fonctionne donc dès qu'il y a risque de coulure du silicium liquide. La fusion débute au cours d'un palier à 1500°C pour les résistors, avec l'induction à 1330A et $24,9\text{kHz}$.

On remarque que la fréquence augmente de 430Hz pendant la fusion. Le palier à $25,39\text{kHz}$ montre que le silicium est entièrement fondu. On note également que la fin de fusion est marquée par une diminution de l'énergie fournie par le résistor du bas dont le courant baisse d'une cinquantaine d'Ampères alors que la consigne de température n'a pas changé. Cela s'explique par la réponse de la régulation en température face à la disparition du surplus d'énergie demandé par le silicium pour sa fusion.

La solidification correspond à la décroissance de la fréquence. Nous avons cristallisé en abaissant simultanément les consignes de températures (en maintenant un écart de 550°C entre le haut et le bas), et l'induction (baisse de $30\text{-}60\text{Hz} \sim$ toutes les 4mn) et la fin de solidification est marquée par le retour à la valeur initiale de fréquence, soit $24,9\text{kHz}$.

Le lingot de forme carrée obtenu est présenté sur la Figure 5-5. On peut voir l'impact du flux d'argon sur le dessus, provoquant un creux de profondeur $1,5$ à $1,7\text{cm}$, retrouvé sur plusieurs lingots, et s'expliquant par la grande vitesse d'arrivée de l'argon sur le silicium. En effet, l'argon est acheminé dans une canne d'alumine de 5mm de diamètre intérieur, avec un

débit autour de $2m^3/h$, ce qui correspond à une vitesse d'arrivée de $28m/s$. On peut retrouver la profondeur théorique de l'impact dans le silicium grâce à l'équilibre de l'énergie cinétique de l'argon et l'énergie potentielle du silicium : $1/2\rho_{Ar}V^2=\rho_{Si}gh$, ce qui donne $h=2.5cm$ (en prenant $\rho_{Ar}=1,6kg/m^3$)⁶.

On mesure une hauteur de lingot de près de $5cm$ (en $2h10mn$ soit $2,3cm/h$) à l'avant et $2cm$ à l'arrière, différence due à l'inclinaison de l'enceinte (8° par rapport à l'horizontale afin d'améliorer la vidange du creuset).

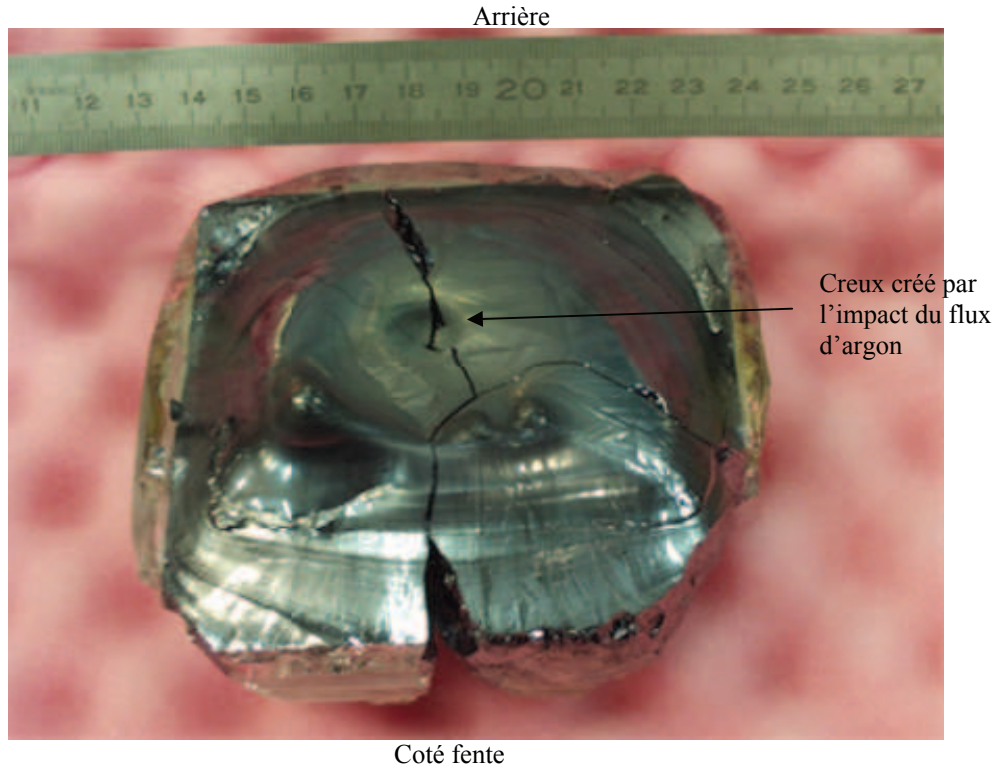


Figure 5–5 : Lingot de silicium carré cristallisé sous brassage électromagnétique.

La Figure 5–6 montre la coupe longitudinale du lingot. L'orientation des grains montre que la solidification eut lieu simultanément à partir de la paroi verticale et du fond, d'où l'existence d'une ligne de jonction sur la diagonale. Par ailleurs, on voit également qu'une partie du lingot, au dessus ne s'est pas solidifiée dans le même sens que le reste. Mais plutôt à partir du point froid créé par le jet d'argon. En effet, l'arrivée de ce gaz froid consomme une puissance $Q_{mAr} \cdot C_{pAr} (T_{si}-T_0)=650W$ à la surface du silicium.

⁶ Fluent material database

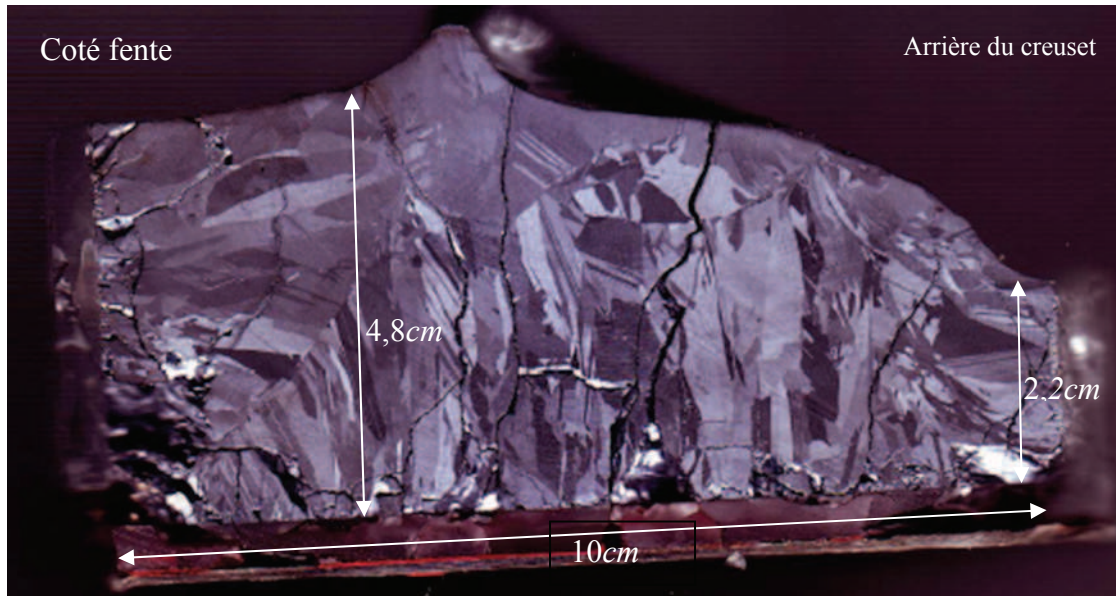


Figure 5-6 : Coupe longitudinale du lingot.

Le creuset utilisé présentait une fente de $5 \times 100 \text{ mm}$. Aucune fuite de silicium liquide n'a été observée durant l'expérience, ce qui montre que la rétention électromagnétique a été efficace pendant toute la durée du test. Cependant, nous ne pouvons pas dire à partir de ces tests de cristallisations quelle valeur minimale de courant inducteur correspond à la rétention, puisque nous ne testons pas la limite. Quelques tests de fusion et rétention électromagnétique du silicium (sans cristallisation) ont permis de connaître le courant minimal selon la quantité de silicium et la configuration utilisée (Tableau 5-2). Une liste détaillée des différentes expériences réalisées est présentée en Annexe C.

Expérience	Quantité silicium	I_{mini}	Hauteur de Si restant dans le creuset
AX35, $h=2 \text{ mm}$, $l=5 \text{ cm}$	$\sim 1 \text{ kg}$	1283 A	2 mm
AX38, $h=4 \text{ mm}$, $l=5 \text{ cm}$	847 g	1000 A	7 mm
AX42, $h=4 \text{ mm}$, $l=10 \text{ cm}$	$850\text{-}1 \text{ kg}$	1320 A	Vidange quasi-totale, cristallisation dans la fente

Tableau 5-2 : Limite de rétention électromagnétique du silicium liquide pour plusieurs géométries de fente, $F \sim 25 \text{ kHz}$.

Rappelons les résultats de modélisation présentés en Chapitre 2 (calcul axisymétrique) et Chapitre 4 (modélisation 3D) concernant la configuration où l'inducteur est placé sous la fente :

- Pour la configuration axisymétrique, nous montrions qu'il faut un courant inducteur de l'ordre de $1000\text{-}1100 \text{ A}$ pour une hauteur de fente de 2 mm , et 1200 A pour une hauteur de fente de 4 mm ;
- Pour la configuration 3D (inducteur de 8 cm de largeur de plaque, correspondant à 5 cm de largeur de fente), on trouvait 1000 A pour $h=2 \text{ mm}$ et 1300 A pour $h=4 \text{ mm}$.

Les calculs axisymétriques dont nous parlons ici (et en Chapitre 3) concernent l'inducteur modélisé sans la plaque de concentration des courants.

Les résultats du calcul axisymétrique sont en accord avec ceux du calcul 3D. En pratique, nous ne sommes pas loin de ces résultats, même si nous avons validé la rétention avec un peu plus de 1200 A pour la fente à $h=2 \text{ mm}$. Pour la fente à $h=4 \text{ mm}$ et $l=5 \text{ cm}$, nous sommes légèrement plus bas que la valeur prédite par la modélisation, alors que pour la fente à $h=4 \text{ mm}$ et $l=10 \text{ cm}$, le courant

est légèrement plus fort. Par comparaison, la modélisation 3D prévoit 1000A pour la rétention de 2cm de silicium liquide (Cas E du Chapitre 4), courant plus faible que les 1300A qu'il nous a fallu en pratique pour cette fente ($h=4mm$ et $l=10cm$).

Remarque : La hauteur de fente du creuset utilisé lors des expériences ne correspond pas exactement à la hauteur de silicium liquide retenue par la vanne électromagnétique. Nous avons souvent observé une zone de décollement visible contre la paroi transparente du creuset, au dessus du bord supérieur de la fente. Cette zone existe aussi bien dans les tests au silicium qu'à l'étain (Figure 4–7 et Figure 4–10 du Chapitre 4). La hauteur de fente du creuset expérimental est généralement plus faible que la hauteur de liquide effectivement retenue.

Le courant minimum expérimental est très sensible et dépend fortement de la façon dont on place l'inducteur, s'il est décalé de quelques millimètres en dessous de la fente, il faut augmenter le courant pour retenir la même quantité de silicium dans les mêmes conditions expérimentales.

L'arrêt de l'induction s'accompagne de la coulée du silicium hors du creuset, comme on peut le voir sur les deux images (Figure 5–7) tirées de deux expériences de rétention (AX35 à gauche et AX38 à droite, voir Annexe C). Le contact du fluide chaud sur l'inducteur froid provoque une rapide solidification du jet, aboutissant à la fermeture de la fente avant que tout le liquide ne soit purgé. Cet effet est corrigé en moulant l'inducteur dans du ciment réfractaire. Cela permet également d'isoler et protéger l'inducteur du fluide chaud.

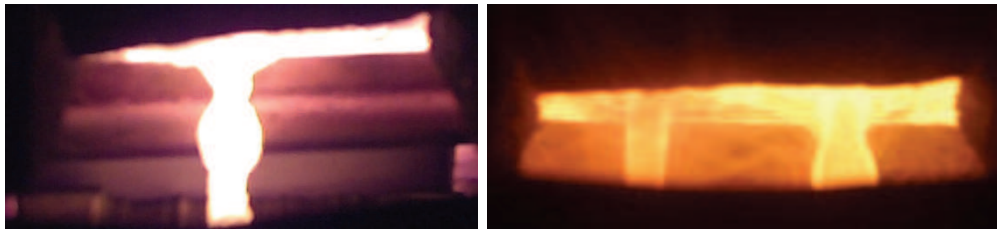


Figure 5–7 : $I = 0$, la rétention est stoppée et le silicium coule.

La coulée la plus fréquemment observée (quelque soit les dimensions de fente) est celle de l'image de droite, avec deux filets de liquide. Elle pourrait s'expliquer par la présence d'un minuscule film d'oxyde se formant dans la fente (Figure 5–8). Cette présence s'explique par le fait que le silicium utilisé (silicium métallurgique purifié) contient des oxydes qui peuvent réagir avec le silicium, et par la présence d'un creuset en quartz, qui peut lui aussi réagir avec le silicium si son revêtement est endommagé. Ces réactions donnent du SiO gazeux qui se condense en silice (SiO_2) chargé de Si dans les zones froides.

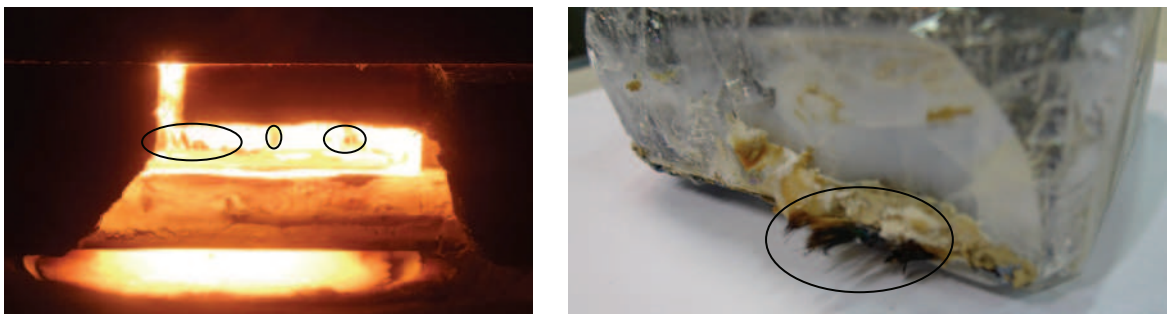


Figure 5–8 : Fine peau d'oxyde formée dans la fente.

Une canne d'alumine soufflant de l'argon a été mis en place au niveau de la fente (Figure 5–9), ce qui a nettement diminué la formation de ce film, mais sans modifier la coulée à deux filets.

Les expériences de cristallisation d'une fine épaisseur de silicium sous brassage électromagnétique sont plus délicates à effectuer que celles visant à cristalliser tout le volume liquide. Il s'agit de solidifier $\sim 2\text{mm}$ de couche (homogène) de silicium, en contrôlant la thermique et la rétention, pour ensuite évacuer le volume liquide restant.

Nous avons constaté lors de différents tests qu'une diminution de l'induction (à $T_{\text{résistor}}$ constante, 1500°C) entraîne une très rapide solidification ($T_{\text{liquide}} \approx T_{\text{fusion}}$) qui bouche la fente avant qu'on ait le temps d'évacuer le liquide, ce qui montre que la cristallisation au niveau de la fente est contrôlée par l'induction. Pour cristalliser par le fond, il ne faut baisser que la température du résistor du bas. Nous avons établi un mode opératoire consistant à baisser la température du résistor du bas d'environ 300°C par rapport à celle du résistor du haut afin d'obtenir une cristallisation homogène au fond du creuset. Un résistor haut de géométrie différente de celui utilisé lors des expériences précédentes est nécessaire pour cette cristallisation (résistor présenté en paragraphe 2.1.2 du Chapitre 2). L'induction et la partie inférieure de ce résistor haut fournissent suffisamment d'énergie dans la fente pour ne pas la boucher lorsque la consigne de température du résistor du bas est abaissée.

La solidification est suivie sur la courbe de fréquence. Les tests de cristallisation de lingot nous ont permis de quantifier la quantité de solide formée en fonction de la diminution de fréquence : sur la base d'une cristallisation homogène dans le fond du creuset, une baisse de fréquence de 10Hz correspond à une cristallisation de 1mm .

La Figure 5–9 montre le silicium liquide retenu dans la fente ($I=1600\text{A}$ et $F=25,4\text{kHz}$. Le courant est volontairement supérieur au courant minimal de rétention afin d'accélérer la fusion grâce à la puissance induite) une fois la fusion terminée. On peut remarquer la présence d'oxyde devant la fente, gênant la vue, malgré le balayage d'argon assuré dans l'enceinte et au niveau de la fente.

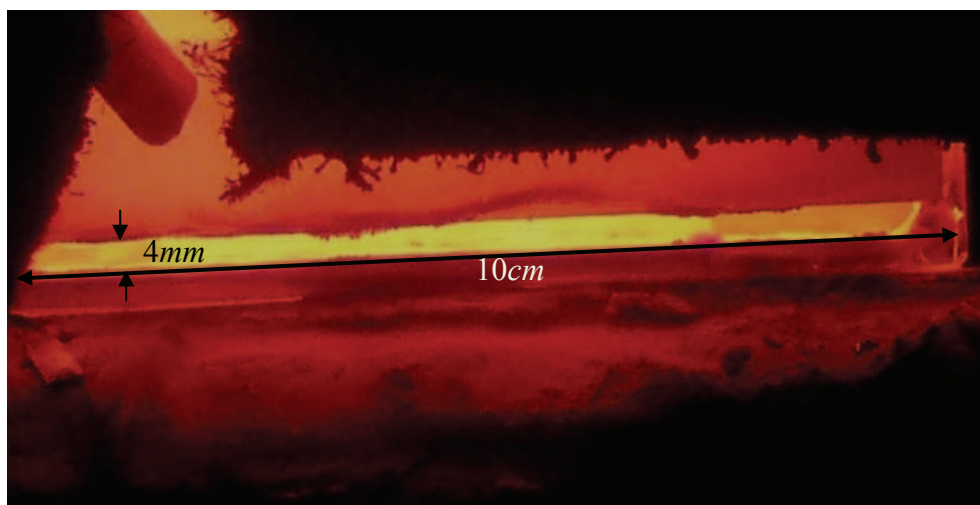


Figure 5–9: Silicium liquide retenu dans la fente grâce aux forces électromagnétiques (expérience AX47).

Nous avons cristallisé environ 2mm de silicium ; en refroidissant par le bas (diminution progressive de la température du résistor bas de 1450°C à 1200°C), ce qui a favorisé une solidification dirigée. Les impuretés rejetées lors de cette solidification ont effectivement été homogénéisées dans le liquide d'après les résultats d'analyse ICP et GDMS de la couche solidifiée.

Nous présentons ici les résultats de trois expériences de cristallisation de fine couche (la fente mesure à chaque fois $h=4\text{mm}$, $l=10\text{cm}$) :

- La première (AX46), a abouti sur une cristallisation assez inhomogène, avec des couches de silicium épaisses dans les coins et près des parois (Figure 5–10).

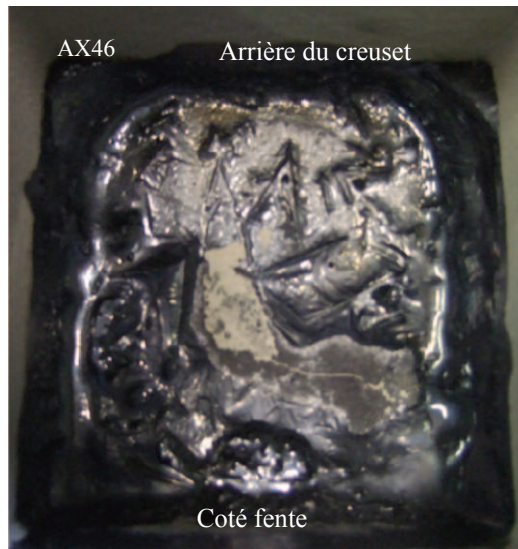


Figure 5–10 : cristallisation inhomogène dans le creuset.

Cette cristallisation est la conséquence d'une inhomogénéité de température au fond du creuset, due en partie au mauvais placement du feutre de graphite faisant écran à la sole refroidie. Dans les coins, nous avons cristallisé 16mm de silicium en 5minutes, soit une vitesse de croissance de 20cm/h, ce qui correspond à une croissance rapide par comparaison avec les vitesses de solidification habituellement observées en solidification directionnelle (entre 1 et 2cm/h). Un morceau de silicium extrait du coin est illustré en Figure 5–11.

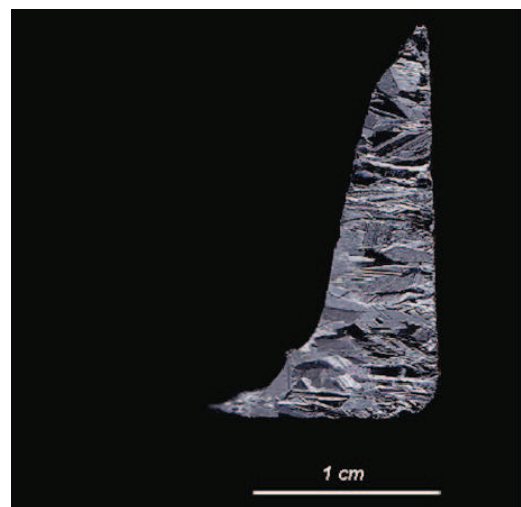
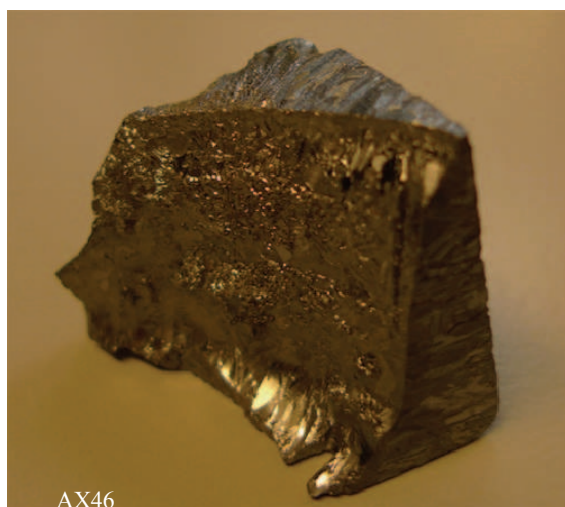


Figure 5–11 : Morceau extrait du coin.

La photo de droite montre que la cristallisation est dirigée de la paroi verticale vers le silicium, et non à partir du fond.

- Lors de la deuxième expérience (AX47), nous avons cristallisé uniformément une couche de 2mm d'épaisseur de silicium dans le creuset, Figure 5–12. Cette épaisseur correspond à une baisse de 30Hz de la fréquence.

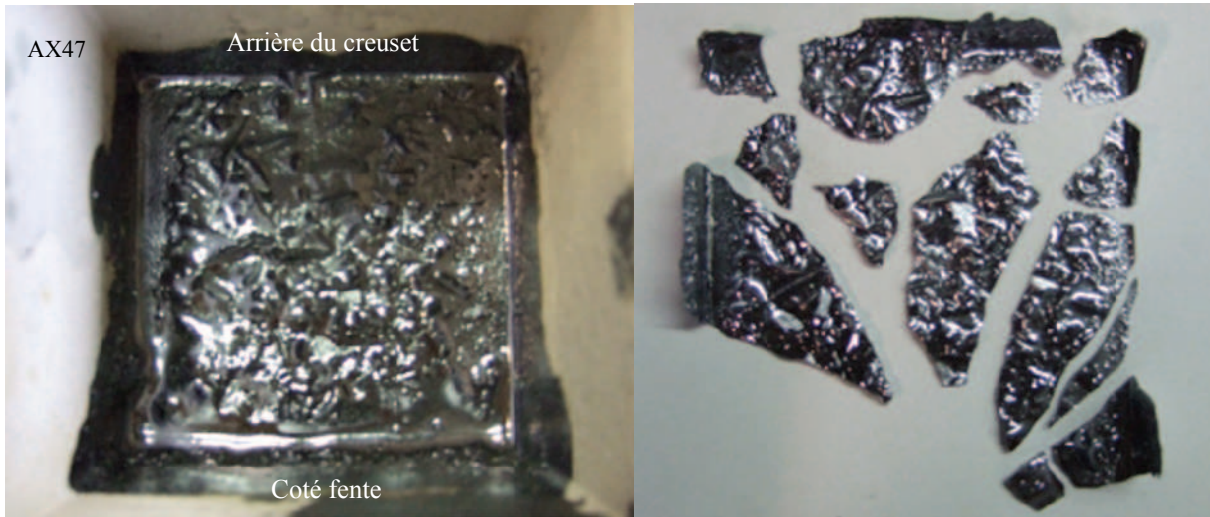


Figure 5–12 : 2mm d'épaisseur de silicium dans le creuset.

Une structure dendritique est visible sur la partie supérieure de la couche de silicium, témoin d'une cristallisation très rapide survenue certainement après la vidange du creuset : une faible quantité de silicium n'a donc pas été vidée. On a toujours une forte cristallisation dans les coins et contre les parois, signe de l'existence de zones moins bien isolées thermiquement.

La Figure 5–13 montre un morceau de silicium (zoom) issu de cette expérience, permettant de distinguer la frontière entre le silicium cristallisé sous brassage et en présence du liquide et la partie solidifiée après, démarquée par des pointillés.

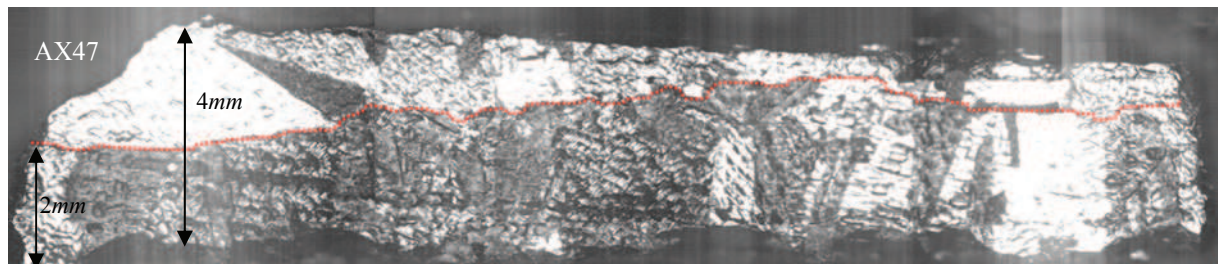


Figure 5–13 : Morceau de silicium provenant de l'expérience AX47.

- La dernière expérience (AX50) : la Figure 5–14 montre une cristallisation homogène dans le creuset, avec une épaisseur plus importante à l'avant (effet de l'inclinaison de l'enceinte).

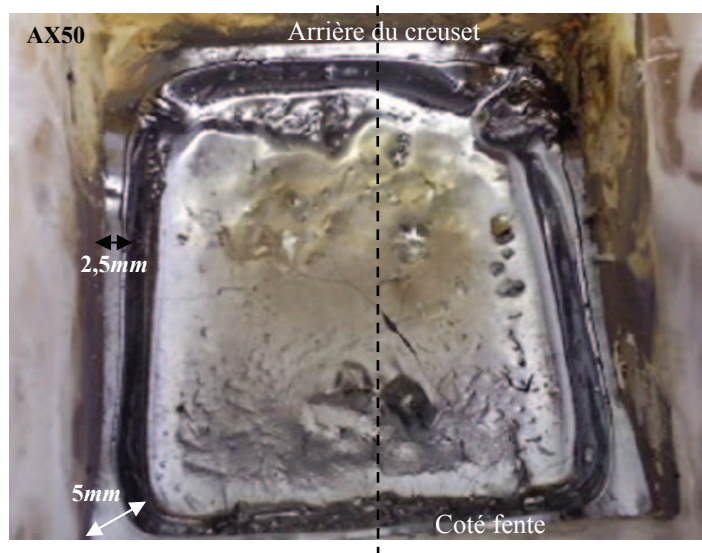


Figure 5-14 : Cristallisation homogène d'une couche de silicium.

540g de silicium ($\sim 3\text{cm}$ de silicium liquide) ont été fondus au cours du test, soit une augmentation de fréquence de $\sim 320\text{Hz}$ (ce qui correspond à l'équivalence $10\text{Hz} / 1\text{mm}$ dont nous parlons plus haut, vérifiée dans ce cas pour une fusion). 189g de silicium sont restés dans le creuset après cristallisation et vidange.

La cristallisation a lieu du creuset (parois et fond) vers le liquide; On mesure 2-2,5mm de Si cristallisé sur les parois du fond et des côtés contre 1mm sur celle de devant au dessus de la fente. L'épaisseur cristallisée est supérieure à 5mm dans les 4 coins. La cristallisation a duré 2mn (entre baisse de température et coupure de l'induction), mais on ne sait pas si les couches solidifiées observées ont toutes commencé à croître en même temps ou pas. En utilisant l'épaisseur maximale observée (au coin), on estime la vitesse de cristallisation à $2,5\text{mm/mn}$ (15cm/h), et on admet que la couche de 2mm au fond s'est formée à la même vitesse dans la seconde minute de cristallisation. Une fissure s'est propagée dans la plaque de silicium lors de l'extraction du creuset au démontage.

Les images de la Figure 5-15 montrent la coupe de la couche de silicium suivant le pointillé tracé sur la Figure 5-14.

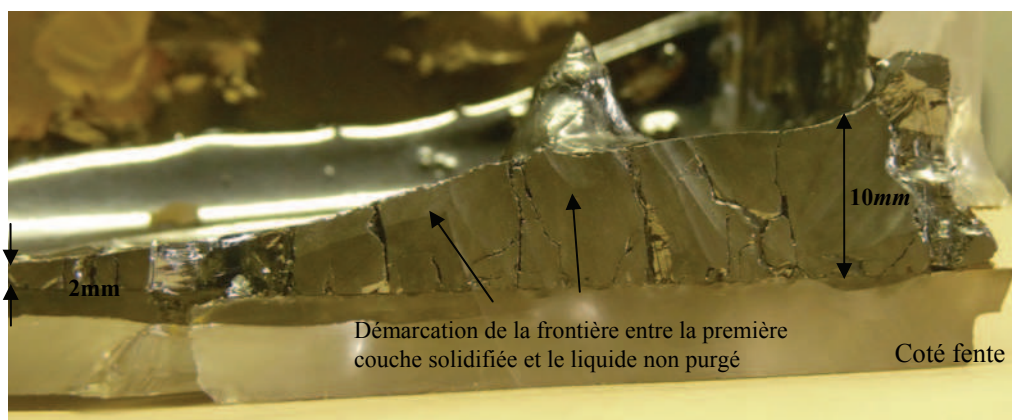


Figure 5-15 : Coupe longitudinale de la couche de silicium.

On peut constater que très peu de silicium est resté dans le creuset après vidange. Sur la tranche, l'épaisseur varie de 1mm (vers le milieu) à 10mm (à la fente).

5.2.3 Analyse des échantillons

Des échantillons provenant des tests AX43, AX46 (poids ~12g) et AX50 (poids~1g) ont été analysés par ICP-OES (Inductively Coupled Plasma with Optical Emission Spectrometry) dans le cadre de collaborations entre SIMaP et l'entreprise FerroPEM ou par GDMS (Glow Discharge Mass Spectrometry), par une sous traitance à la société SHIVA. Outre les échantillons prélevés, les analyses concernent aussi le silicium placé initialement dans le lingot, fourni par FerroPEM comme échantillon métallurgique amélioré (Upgraded Metallurgical Grade ou UMG).

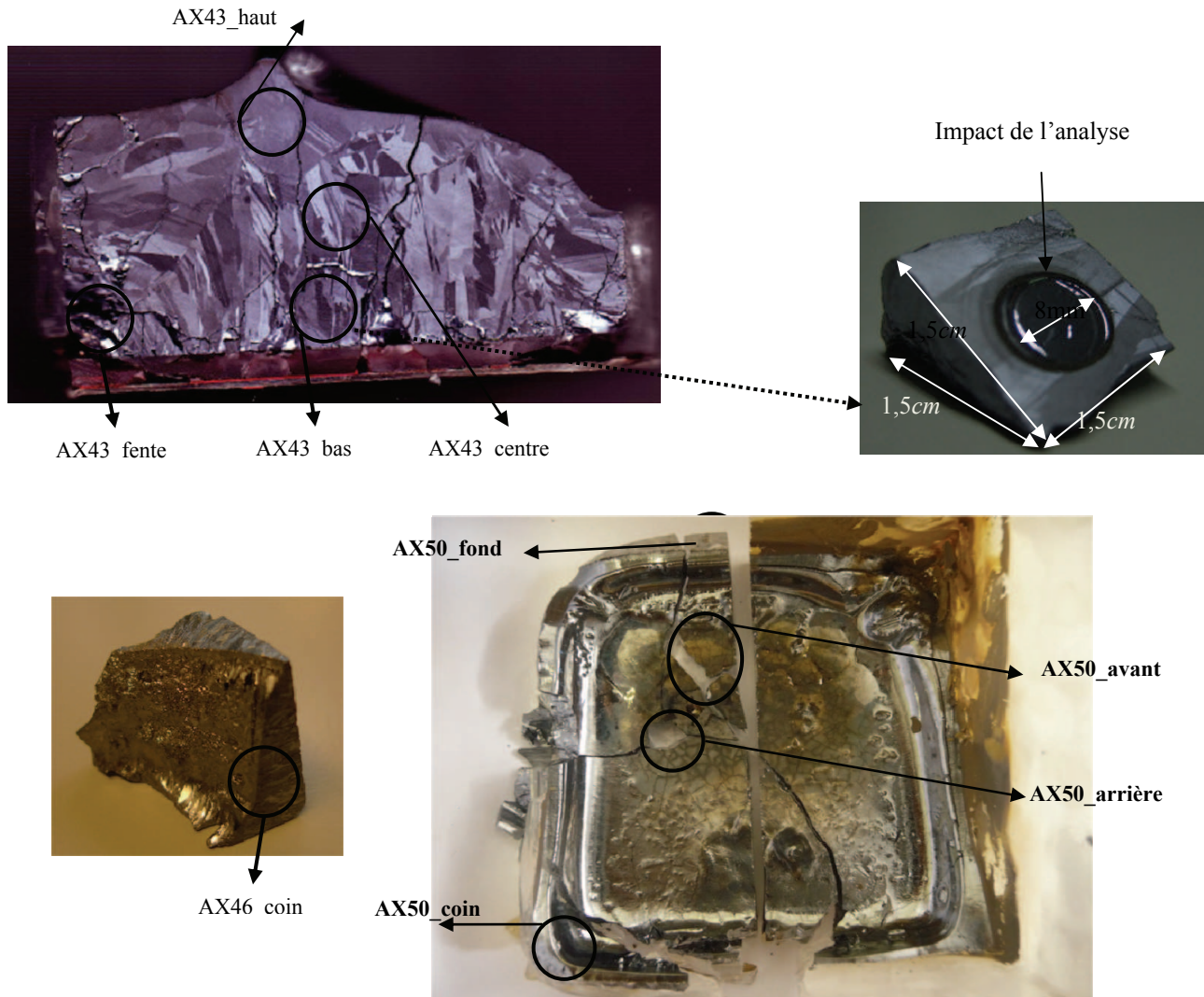


Figure 5-16 : Localisation des échantillons analysés et échantillon après analyse GDMS (en haut à droite).

Les vitesses moyennes de brassage calculées pour ces tests sont respectivement de 0,07-0,13m/s et les vitesses max de 0,55 à 0,87m/s (courant inducteurs de 1000-1700A, à 25kHz)

Les Tableau 5-3 et Tableau 5-4 récapitulent les résultats d'analyses des concentrations des impuretés contenues dans les échantillons prélevés. Il s'agit de voir si le brassage créé par les forces électromagnétiques a été efficace pour améliorer la ségrégation

des impuretés en les homogénéisant dans le liquide. Les analyses ont été effectuées par ICP et GDMS. Les concentrations sont en ppmw⁷. Les impuretés concernées sont le phosphore (de coefficient de ségrégation thermodynamique $k_0 = 0.3$, est l'une des impuretés qui ségrégent difficilement dans le silicium), l'aluminium, le fer et le cuivre.

Localisation	UMG Si	AX43_fente	AX43_fond	AX43_centre	AX43_haut	AX46_coin
Al ($k_0=2.10^{-03}$)	3,25±1	15	0,12	0,26	220	-
Fe ($k_0 = 8. 10^{-06}$)	15 ±3	<5	<0.05	<0.05	110	-
P ($k_0 = 0,35$)	6±1,7	9	2,7	7,6	86	1,7
Cu ($k_0=4. 10^{-04}$)	33,5±6	34	1,2	0,18	500	-
Méthode d'analyse	ICP	ICP	GDMS	GDMS	GDMS	GDMS

Tableau 5-3 : Analyse des impuretés contenues dans les échantillons des expériences AX43 et AX46.

On remarque que les concentrations d'impureté sont basses pour l'échantillon du fond. Le coefficient de partage effectif, rapport de cette concentration à la concentration initiale dans le silicium UMG est de 0,45 pour le phosphore, ce qui est proche de $k_0(P)$. Ce résultat, assez intéressant pour un élément qui ségrège mal pour les grandes vitesses de cristallisation est proche de celui publié par Degoulange [2008], où du silicium UMG avait été solidifié sous brassage après un processus de purification plasma. Ses résultats montrent des concentrations de polluant beaucoup plus faibles que les concentrations initiales avant plasma sur la moitié inférieure du lingot : diminution d'un facteur 4 pour le phosphore, 80 pour l'aluminium-et 24 pour le cuivre ; pour une vitesse de solidification $\sim 10\text{cm/h}$. Cette diminution est attribuée uniquement à la ségrégation sous fort brassage associée à la solidification en creuset froid, parce que le processus plasma (conçu pour le bore) peut difficilement enlever ces impuretés, particulièrement le Phosphore.

D'autre part, nous constatons que la ségrégation dans notre expérience n'a pas été efficace près de la fente, endroit mal isolé où le liquide était sans doute moins chauffé et la solidification chaotique dans cette région facilite l'encapsulation de liquides.

Pour l'expérience AX50 qui a produit la couche la plus homogène, l'analyse ICP du phosphore (Tableau 5-4) nous donne un coefficient de ségrégation effectif $k_{eff}=0,57$ pour l'échantillon AX50_avant et $k_{eff}=0,5$ pour AX50_arrière, lorsqu'on les compare à l'échantillon de charge 1, analysé le même jour. Pour les échantillons AX50_fond et AX50_coin, analysés plus tard en même temps que l'échantillon de charge 2, on obtient $k_{eff}=0.53$ et 0.57. On retiendra $k_{eff}(P) \sim 0,54$ pour cette expérience AX50 où la vitesse de cristallisation valait 15cm/h .

Localisation	Charge (1)	Charge (2)	AX50_avant	AX50_arrière	AX50_coin	AX50_fond
Al ($k_0=2.10^{-03}$)	9,9±3	20±4	6,4±2	6±2	3,3±1	3,2±1
Fe ($k_0 = 8. 10^{-06}$)	29±6	18±4	5,2±2	3,8±1	16±4	15±3
P ($k_0 = 0,35$)	14±3	12±3	8±2	7±2	6,3±2	6,9±2
Cu ($k_0=4. 10^{-04}$)	<2	<2	<2	<2	<2	<2

Tableau 5-4 : Analyse ICP des impuretés contenues dans les échantillons de l'expérience AX50 (en ppm poids).

Pour les autres impuretés, il est très difficile de conclure quantitativement au vu des résultats d'analyse que nous avons obtenu : en effet le cuivre est sous la limite de détection,

⁷ Pour Part Per Million by Weight

l'aluminium et le fer ont des concentrations non reproductibles dans deux échantillons d'une même charge. La charge nous est fournie en grains de quelques mm, nous en avons fait analyser deux séparément pour AX50, les différences témoignent de leur distribution non homogène dans la charge, sans doute sous forme d'inclusions d'alumine et de précipités de FeSi_2 . Qualitativement cependant, on remarque que la concentration d'aluminium et de fer dans les différents échantillons solidifiés sont plus faibles que dans la charge (il y a donc eu ségrégation). On retrouve cependant plus de fer que ne le laisserait prévoir son coefficient de partage ($k_0=10^{-6}$), surtout dans les échantillons AX50_coin et AX50_fond. On soupçonne qu'il y a eu un début de déstabilisation du front dans ces zones, donc un front cellulaire qui aurait encapsulé des composés intermétalliques (du type FeSi_2), à cause d'une vitesse de solidification très rapide sans brassage très efficace (car ces échantillons sont situés près d'une arrête ou d'un coin).

Le résultat de ségrégation du Phosphore pour AX50 est un peu moins bon que celui de l'analyse GDMS pour AX46_coin, montrant une diminution de la concentration en phosphore de 6 à 1,7ppmw, ce qui est une bonne ségrégation ($1.7/6 \sim k_0=0.31$). Cette bonne ségrégation est très difficile à réaliser à une si haute vitesse de solidification ($3,2\text{mm/min} \sim 20\text{cm/h}$).

En effet, [Khattak *et al.*, 2001] ont publié des analyses d'impuretés obtenue après deux étapes de purification et une solidification directionnelle de 1kg MG Si. Ils ont réalisé une diminution de la concentration de Phosphore de 27-30 à 12ppma soit un coefficient de partage effectif de 0,44 s'il est réalisé dans la dernière phase, ou de 0.76 par étape si chacune des trois étapes ségrègent autant.

[Wang *et al.*, 2008] ont utilisé le même niveau d'impuretés dans leur silicium initial que nous. Ils ont réduit la concentration du phosphore dans du silicium provenant des pertes de découpe de 7,3 à 1,7 ppmw après deux purifications, soit un coefficient de partage effectif de 0,48 pour chaque étape.

5.2.4 Conclusion

Cette étude expérimentale nous a donc montré qu'on peut ségréger correctement le phosphore, y compris à forte vitesse de cristallisation, à condition d'ajouter un fort brassage électromagnétique pendant la solidification.

Nous avons également montré qu'en contrôlant correctement la thermique du four, on peut faire cohabiter un procédé à gradient vertical avec une fente latérale et un inducteur refroidi autour du bas du creuset. Ceci nous a permis de cristalliser des couches de silicium relativement homogènes, y compris avec de grandes vitesses de solidification.

Afin que ces résultats soient extrapolables à de futures installations de cristallisation (par exemple au procédé ruban envisagé au Chapitre 1), il est nécessaire de savoir quantifier et expliquer le phénomène de ségrégation, ce qui est l'objectif du paragraphe 5.4. Nous verrons que notre procédé fonctionne en dehors des gammes de brassage couramment utilisées pour la croissance cristalline (qui fonctionne en général en régime laminaire, alors que nous sommes en turbulent).

Nous avons donc besoin d'un modèle d'écoulement turbulent, présenté en paragraphe 5.3, et de pouvoir en déduire des coefficients de partage effectif, comme nous le verrons dans la partie 5.4. Ce modèle étant basé sur le couplage entre les deux codes Comsol et Fluent, nous avons tout d'abord voulu vérifier qu'ils donnent tous deux des résultats comparables dans un cas qu'on peut traiter dans les deux codes (Annexe D).

5.3 Brassage électromagnétique

Les calculs de dimensionnement électromagnétique présentés en Chapitre 3 pour les deux configurations axisymétriques de l'expérience ont permis de quantifier le brassage électromagnétique dans le creuset, en fonction du courant et de la fréquence inducteur. Nous ne mesurons pas expérimentalement l'intensité des vitesses de brassage du silicium dans le creuset, d'où l'importance de la modélisation numérique de la dynamique du fluide couplée à l'électromagnétisme. L'objectif est donc de décrire le plus largement possible le brassage électromagnétique en fonction de l'induction, afin de faire le lien avec son influence sur la ségrégation des impuretés mesurée après solidification et analyse chimique des échantillons (paragraphe 5.2.3).

Rappelons que nous avons modélisé en axisymétrie le cas simplifié d'une charge cylindrique de silicium de 5cm de rayon et 5cm de haut, sans débit d'entrée et de sortie. L'écoulement observé au sein du silicium n'est dû qu'au brassage créé pour différentes valeurs de courant (800 à 2000A) et plusieurs fréquences, de 5 à 300 kHz. Les résultats qui suivent concernent le calcul effectué à 25kHz et 1000A. Des résultats relatifs à d'autres paramètres électriques sont relégués en Annexe E (images du champ de vitesse). Les résultats de modélisations présentés ici concernent les cas axisymétriques introduits en Chapitre 3 et le brassage 3D calculé en configuration C (présenté en Chapitre 4).

5.3.1 Turbulence

On est dans l'approximation d'écoulement permanent (stationnaire), de fluide newtonnien (viscosité dynamique $\mu=0,00088\text{kg/m.s}$) et incompressible ($\rho=2533\text{kg/m}^3$). Avec Fluent, nous utilisons le modèle de turbulence k- ϵ , introduisant deux équations de transport supplémentaires dans les calculs en plus des équations de Navier-Stokes, une pour l'énergie cinétique turbulente k, et l'autre pour ϵ , la dissipation visqueuse [Launder et Spalding, 1972]. Ce modèle permet de simuler des écoulements complexes, et tient compte de la sous couche visqueuse et la zone de paroi grâce à l'option "Enhanced wall treatment". Cette option active un modèle spécialisé dans la zone de paroi, divisant le volume fluide en deux régions distinctes : la première est définie par $\text{Re}_y < 200$, et correspond à la partie interne de la couche limite turbulente (sous couche visqueuse + zone logarithmique). La deuxième zone correspond à celle où $\text{Re}_y > 200$ (région de turbulence pleinement développée).

$\text{Re}_y = y.k^{1/2}/\nu$ est le nombre de Reynolds turbulent où y est la distance du centre de la cellule à la paroi, k l'énergie cinétique de la turbulence et ν la viscosité cinématique [ANSYS, 2009].

Le modèle calcule une viscosité turbulente par la loi $\mu_t = \rho C_\mu k^2/\epsilon$, où C_μ est une constante empirique du modèle valant 0.09. Le rapport viscosité turbulente/viscosité moléculaire permet de quantifier la turbulence dans le liquide. Les Figure 5–17 et Figure 5–18 montrent le taux de viscosité turbulente, calculé pour les deux configurations à 25kHz et 100 kHz (1000A). Dans les deux cas, la viscosité turbulente est jusqu'à quelques centaines de fois supérieure à la viscosité moléculaire, ce qui témoigne clairement d'un écoulement turbulent. Comme dans tout écoulement turbulent, la distribution de viscosité turbulente dépend de la structure de l'écoulement moyen, ici constitué d'une ou deux grosses structure(s) tourbillonnaire(s) provoquant des zones cisailées propices à la production de turbulence.

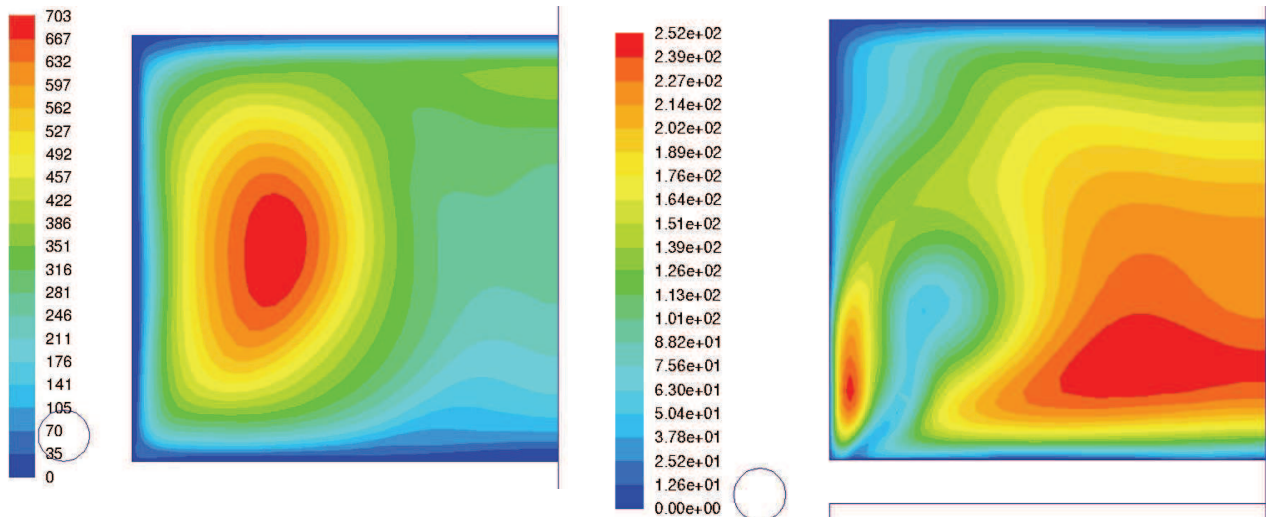


Figure 5-17 : Rapport μ_t/μ les pour les deux configurations axisymétriques (25kHz et 1000A).

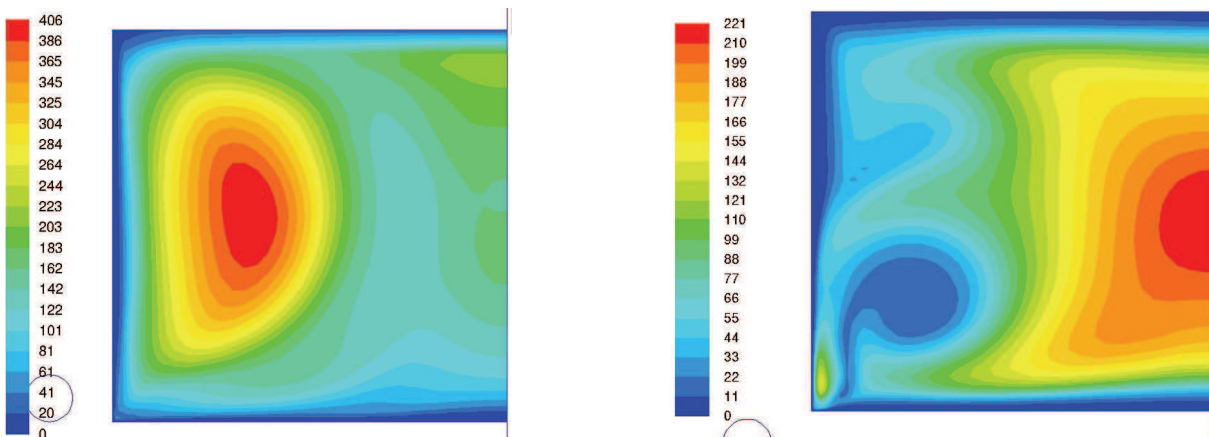


Figure 5-18 : Rapport μ_t/μ pour les deux configurations axisymétriques (100kHz et 1000A).

Pour la configuration 3D également, la viscosité turbulente μ_t est nettement supérieure à la viscosité moléculaire (appelée aussi viscosité dynamique) du silicium liquide $\mu=8.8 \cdot 10^{-4} \text{ kg/m/s}$, ce qui montre que la turbulence est pleinement développée dans notre calcul ($\mu_t/\mu \sim 400$, Figure 5-19). La différence entre les deux calculs 3D peut s'expliquer par la présence d'une condition aux limites d'entrée de fluide à la surface pour la figure de droite (partie 5.4.2 et 5.4.3).

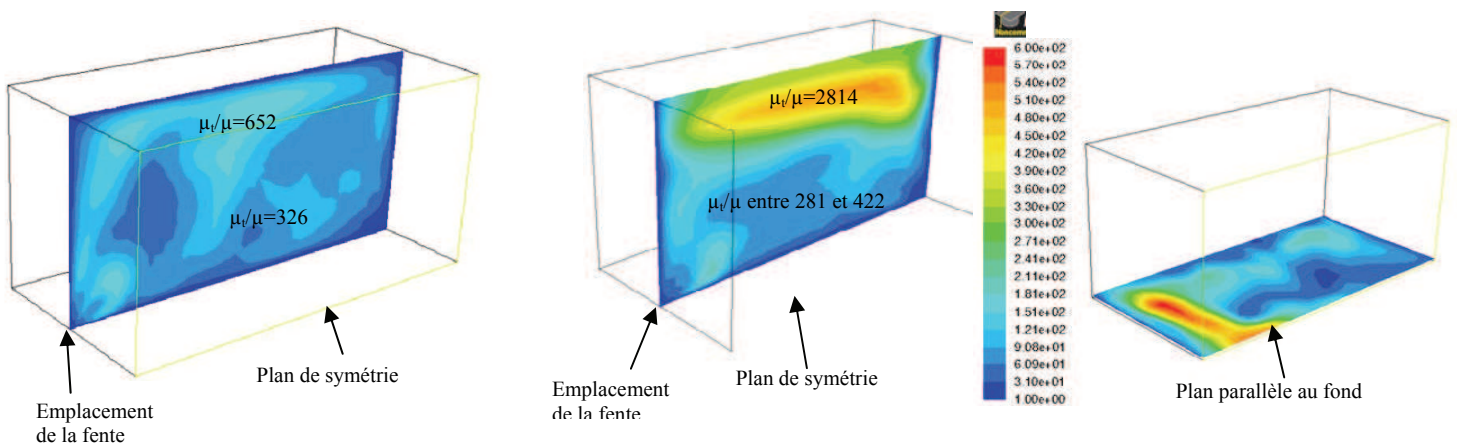


Figure 5-19 : Rapport viscosité turbulente/viscosité moléculaire représentée sur un plan tracé dans le silicium, dans le cas d'un calcul sans déplacement de la paroi du fond (à gauche), et avec une paroi tirée à 1m/mn (au centre et à droite).

5.3.2 Sens et intensité du brassage axisymétrique

Le sens du brassage dépend principalement de la position de la bobine par rapport au creuset. On a pu constater deux principaux sens de brassage selon que la bobine soit positionnée au dessus ou en dessous du bas du creuset.

a. 1^{er} cas, bobine au dessus

La Figure 5–20 représente le champ de vitesse et les lignes de courant calculés pour 25kHz et 1000A.

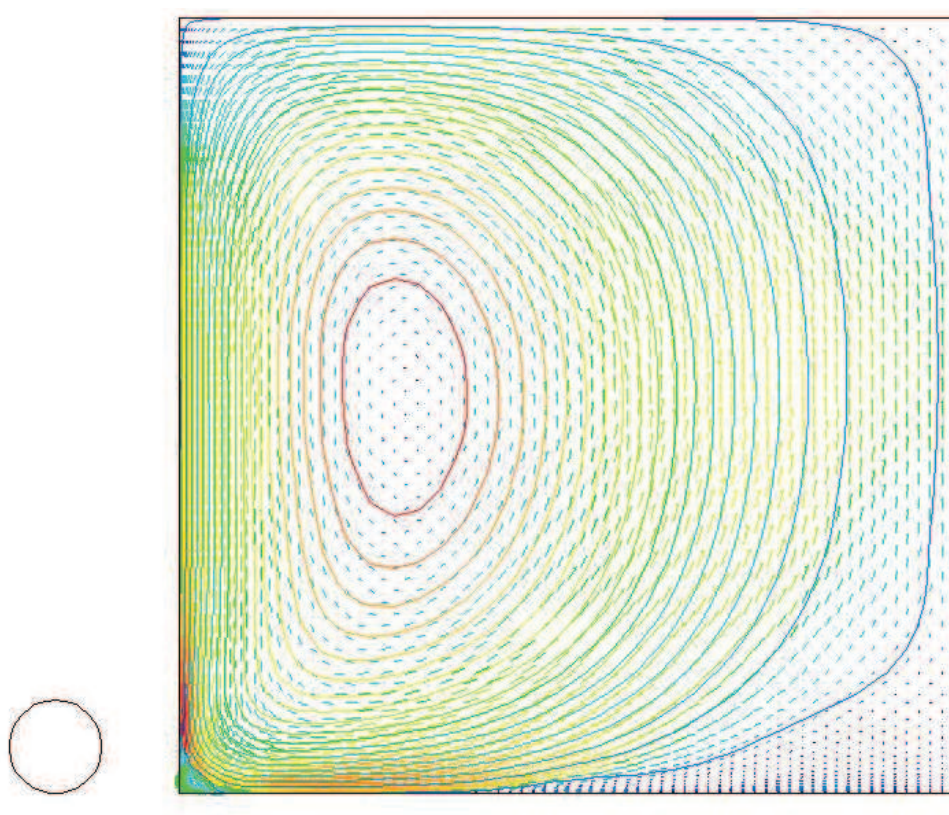


Figure 5–20 : Champ de vitesse et lignes de courant pour l'inducteur au dessus du fond du creuset.

On constate que le champ de vitesse forme une grande boucle, de sens antihoraire, ce qui a priori, n'est pas très favorable dans le cas de solidification d'une fine couche tirée vers l'inducteur sous forme d'un ruban, car faisant arriver du fluide chaud sur les zones déjà solidifiées. Une seconde boucle, de sens horaire, existe dans le coin inférieur gauche de la figure mais n'intervient que sur une toute petite partie du fond (où l'on souhaite solidifier).

Le brassage étant dû à la partie rotationnelle du champ de force électromagnétique F_{EM} , le tracé des forces dans le volume silicium nous permet de comprendre les raisons de cette orientation particulière des vitesses dans le fluide. En effet, comme on peut le voir sur la Figure 5–21, les forces électromagnétiques (globalement de l'ordre de $10^6 N/m^3$, valeur max à $1,15 \cdot 10^7 N/m^3$) ont tendance à pousser le fluide vers l'intérieur du creuset. Les flèches représentant la norme de F_{EM} sont maximales dans la zone située en regard de l'inducteur (et minimale quand on s'éloigne de l'inducteur le long de la paroi), ce qui explique très bien

l'orientation de la boucle ainsi que la zone peu brassée, située dans le coin inférieur droit de la Figure 5–20, correspondant à une région où les forces électromagnétiques sont pratiquement nulles (Figure 5–21).

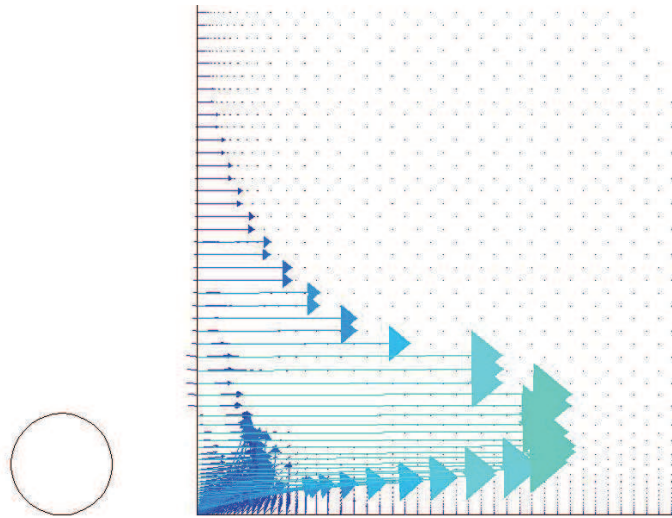


Figure 5–21 : Forces électromagnétiques s'exerçant sur le silicium liquide, zoom sur le coin gauche.

b. **2^e cas, bobine en dessous**

La Figure 5–22 illustre le champ de vitesse et les lignes de courant pour le cas de la bobine placée en dessous du fond du creuset. On observe que le champ de vitesse forme deux boucles à contresens:

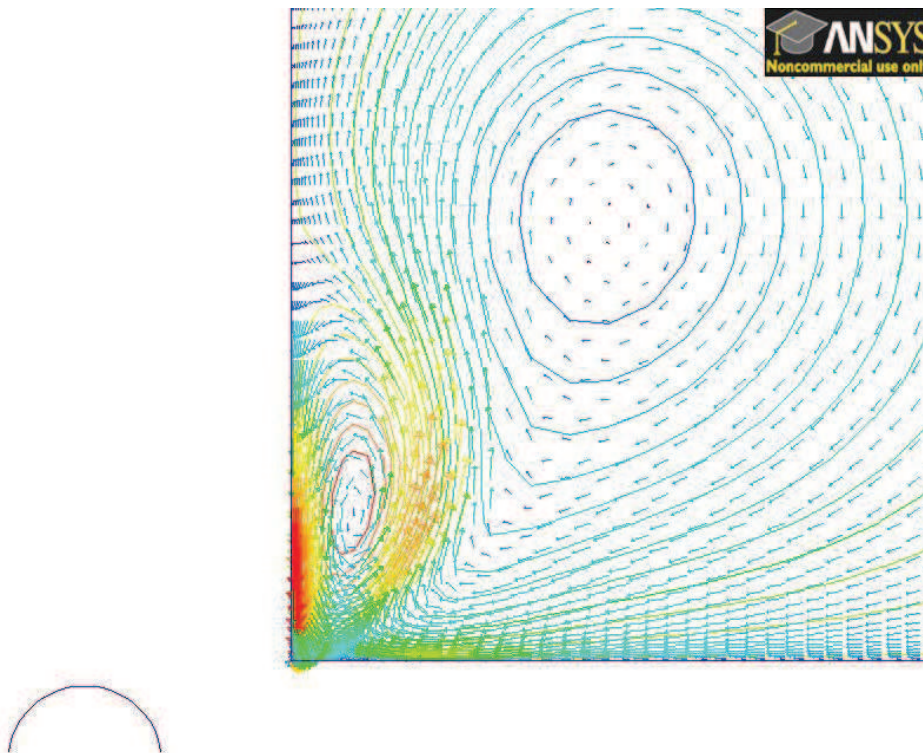


Figure 5–22 : Champ de vitesse et lignes de courant pour l'inducteur en dessous du fond du creuset.

La première boucle, petite et de sens antihoraire, est localisée juste au niveau de la sortie, elle correspond à une recirculation au sein du liquide alors que la seconde est beaucoup plus importante et est celle qui donne le sens du brassage près du fond (où se développe le front de solidification lorsqu'on cristallise). Là aussi, l'existence de ces deux circulations s'explique par les forces électromagnétiques qui sont maximales sur la diagonale partant du coin inférieur du silicium (Figure 5–23) (globalement de l'ordre de 10^6 N/m^3 , valeur max à $8,77 \cdot 10^6 \text{ N/m}^3$).

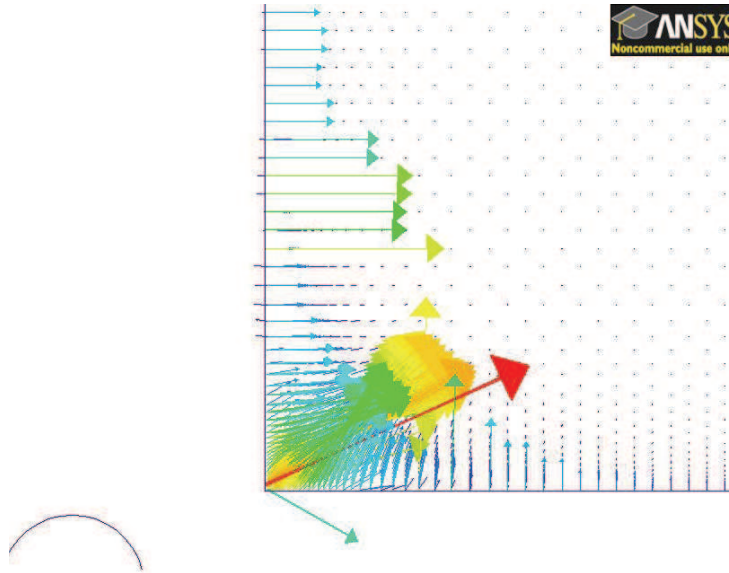


Figure 5–23 : Forces électromagnétiques (entre 0 et 10^6 N/m^3) s'exerçant sur le silicium liquide, zoom sur le coin gauche.

Le brassage correspondant à cette seconde configuration (bobine en dessous du fond du creuset) s'oriente dans le sens contraire de la première configuration. Le fluide se déplace en frottant contre l'interface solide/liquide et est moins chaud lorsqu'il arrive près de la sortie, ce qui favorise mieux la solidification par rapport à l'autre position de l'inducteur. Cette considération montre donc que cette deuxième configuration est plus intéressante expérimentalement, sous réserve d'une reproduction similaire de la circulation du fluide dans les mêmes conditions en pratique.

Par ailleurs, à courant fixé ($I=1000\text{A}$) et pour différentes fréquences, nous remarquons que la petite boucle de brassage notée dans la configuration présentant l'inducteur en dessous du fond du creuset est plus importante à basse fréquence (5kHz) qu'à notre fréquence moyenne de 25kHz . Inversement, elle est plus petite pour les hautes fréquences. La Figure 5–24 illustre les vitesses de brassage calculées pour respectivement 5, 25, 50 et 300kHz . Les quatre images sont représentées à la même échelle. Nous notons que la vitesse maximale au sein du silicium liquide augmente avec la fréquence, alors que la vitesse moyenne diminue quand la fréquence augmente. Ceci est représentatif des forts brassages habituellement observé quand on se situe en basses fréquences.

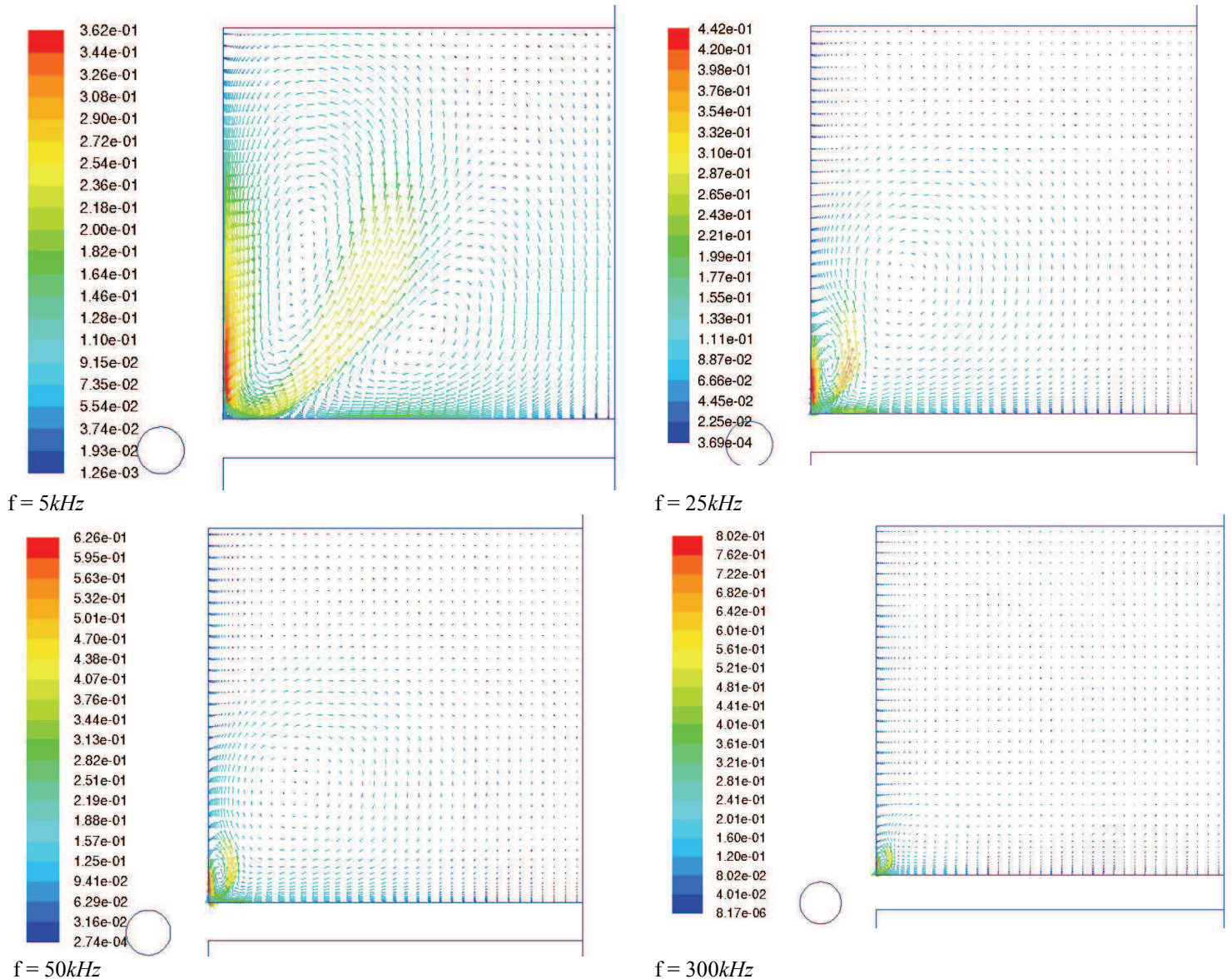


Figure 5-24 : Evolution des boucles de brassages pour un courant inducteur de 1000A et différentes fréquences, configuration de l'inducteur en dessous.

Comme nous le disions en Chapitre 3, la vitesse moyenne du brassage est plus élevée dans la première configuration, où l'inducteur est plus proche du silicium ($0,2\text{m/s}$ à 25kHz , 1000A) que dans la seconde ($0,07\text{m/s}$ à 25kHz , 1000A). On constate la même chose pour les vitesses maximales calculées qui sont respectivement $0,6$ et $0,5 \text{ m/s}$ pour 25kHz et 1000A .

On accède aux vitesses correspondant à différentes hauteurs dans le silicium grâce à la vitesse moyenne calculée sur la ligne située à une distance d du fond du creuset. La vitesse moyenne à $d=200\mu\text{m}$ est tracée sur les Figure 5-25 et Figure 5-26. (Voir tracés à $500\mu\text{m}$ et 1mm du fond du creuset en Annexe G).

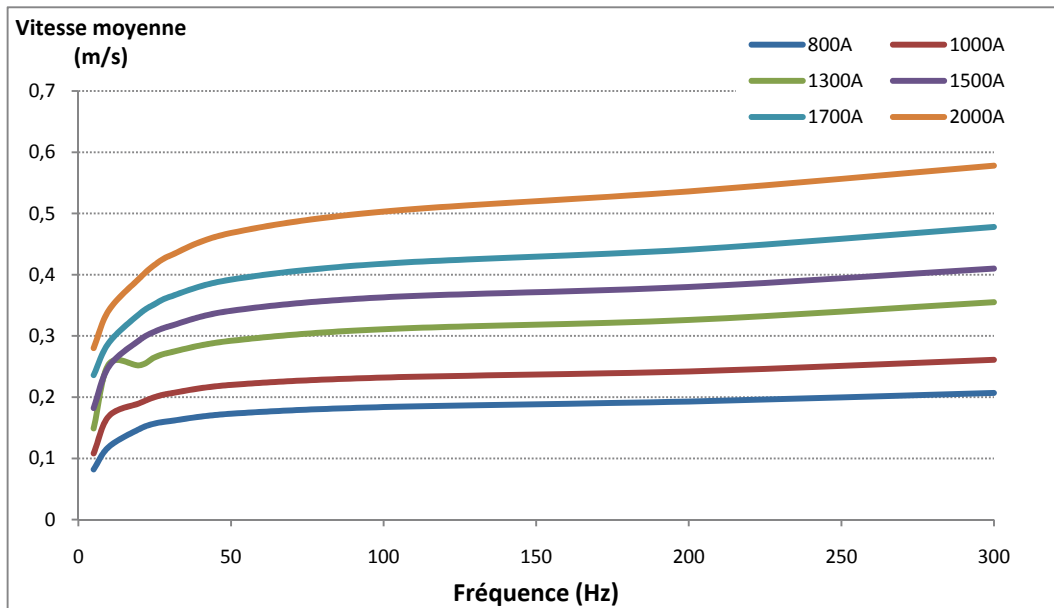


Figure 5–25 : Vitesse moyenne sur une ligne parallèle au fond, pour la configuration avec bobine au dessus du fond du silicium.

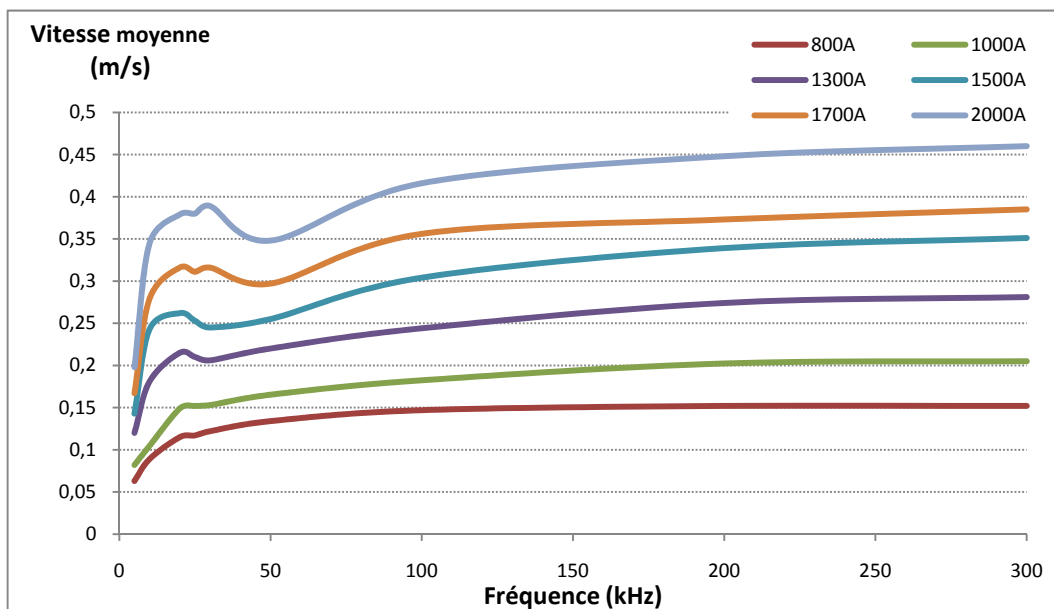


Figure 5–26 : Vitesse moyenne sur une ligne parallèle au fond, pour la configuration avec bobine en dessous du fond du silicium.

Globalement, la vitesse moyenne à $200\mu\text{m}$ du fond augmente avec la fréquence et le courant. Cette vitesse n'est pas vraiment représentative du champ de vitesse au cœur du fluide, mais plutôt de la vitesse balayant le front de solidification, qui intervient dans la ségrégation. L'augmentation de cette vitesse moyenne avec la fréquence (Figure 5–26) semble contraire à l'évolution des champs de vitesse (Figure 5–24), mais ces derniers montrent surtout la diminution de la taille des recirculations quand la fréquence diminue.

On remarque cependant pour I supérieur ou égal à 1300A (configuration de la bobine en dessous) que la vitesse moyenne du brassage est plus basse à 50kHz qu'à $20\text{--}30\text{kHz}$. On note également des irrégularités de ce genre pour la vitesse moyennée à $500\mu\text{m}$ et 1mm du fond du creuset. Ceci témoigne à nouveau du peu de stabilité de l'écoulement calculé lorsqu'on place la bobine en dessous du fond du creuset.

La modélisation a montré que le sens du brassage est très sensible aux conditions de l'écoulement. Les résultats de brassage présentés dans ce paragraphe peuvent ne pas être obtenus expérimentalement dans les mêmes conditions. En effet, nous avons modélisé quelques situations susceptibles de se produire lors d'une expérience comme le décalage de l'inducteur par rapport à la fente, en éloignant l'inducteur du creuset, de 1mm suivant l'horizontale. Les vitesses de brassages tirées du calcul effectué à $f=100\text{kHz}$, $I=1300\text{A}$ et pour un creuset de 20cm de diamètre sont consultables en Annexe H.

On constate que pour le cas de la bobine éloignée de 1mm vers le haut par rapport au fond du silicium, le sens du brassage reste le même, mais son amplitude diminue légèrement. Pour le cas de la bobine éloignée de 1mm vers le bas par rapport au fond du creuset, le sens du brassage est le même que pour le cas où la bobine est alignée sur le fond du creuset uniquement pour certaines valeurs de la fréquence (inférieures à 65kHz). En effet, pour les fréquences supérieures à cette valeur, la petite boucle décrite plus haut devient beaucoup plus grande et l'on se retrouve avec deux boucles de brassage en sens opposé. Au-delà, le sens est inversé.

Cette configuration semble être plus sensible à la disposition de l'inducteur par rapport au silicium pour des fréquences supérieures à 65kHz .

5.3.3 Brassage 3D dans le silicium liquide

La modélisation en configuration cubique permet de visualiser le champ de vitesse créé par le brassage en 3D.

La vitesse moyenne calculée dans le silicium pour 25kHz et 1000A (conditions expérimentales) est de 10cm/s . Le calcul 3D de la vitesse du fluide et de la turbulence donne une valeur plus réaliste que le calcul axisymétrique, puisque la plaque de l'inducteur, placée au niveau de la fente, est modélisée à sa bonne longueur. Le silicium est modélisé en volume (contrairement aux calculs du chapitre 3, où on se contentait d'une condition limite en impédance de frontière), ce qui est indispensable ici puisque l'interpolation se fait entre les points de maillage du silicium. Le résistor en graphite, support du creuset, fait également partie du maillage Comsol, afin de tenir compte de son couplage avec l'induction, mais sa présence n'est pas nécessaire dans le maillage Fluent, puisque c'est un solide (pas d'écoulement).

La Figure 5–27 suivante montre le courant inducteur et le courant induit dans le volume de silicium. On y voit bien la concentration des courants à la base du silicium, due à la présence de la plaque de l'inducteur qui concentre les forces électromagnétiques à cet endroit ; ce qu'on constate également sur la Figure 5–28, représentant la vitesse du fluide tracée sur un plan parallèle au fond du creuset (à 1mm au dessus). La répartition des vitesses de brassage ne varie pas trop, d'un cas sans déplacement de la paroi du fond du creuset (notre prototype de laboratoire) à un cas (représentatif du procédé de tirage de ruban) avec déplacement de cette paroi à 1m/mn ($0,016\text{m/s}$), puisque cette vitesse est faible devant l'amplitude du brassage, de l'ordre de 1m/s dans les deux cas.

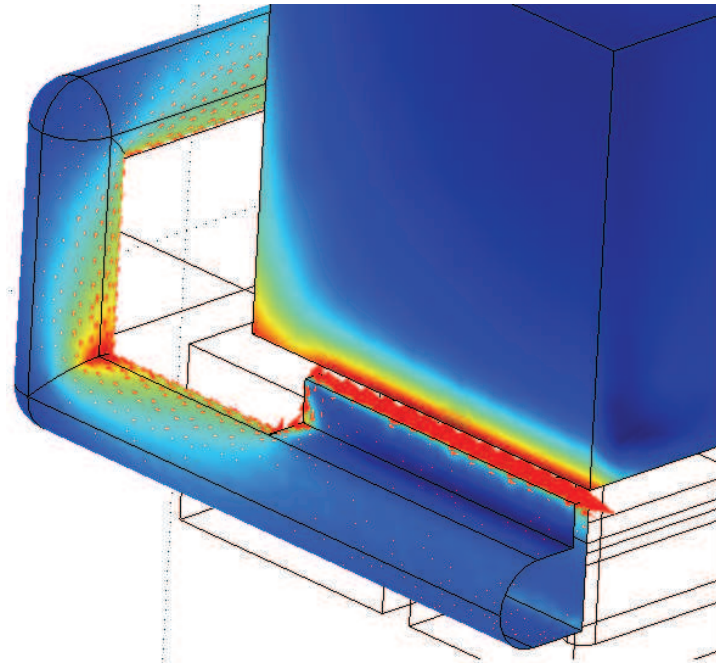


Figure 5-27 : Densité de courant induit dans le volume silicium et courant inducteur (Comsol).

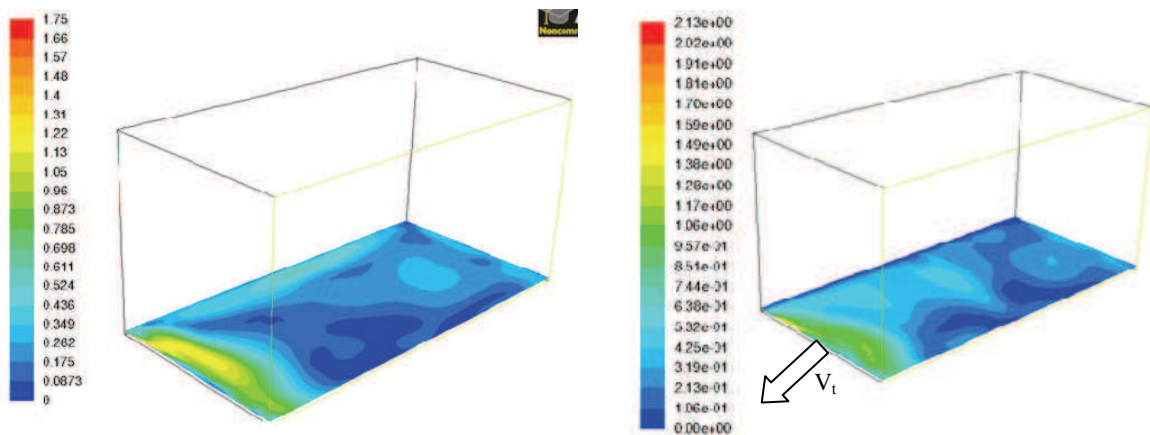


Figure 5-28 : Amplitude de la vitesse de brassage tracée à 1mm du fond (modèle sans tirage à gauche, et modèle avec $V_t=1m/mn$ à droite).

L'amplitude de la vitesse de brassage est maximale dans le fond du silicium au niveau de la fente, ce qu'on retrouve également sur la Figure 5-29, où une iso-surface située à $1,8m/s$ est tracée aux voisinages de l'emplacement de la fente.

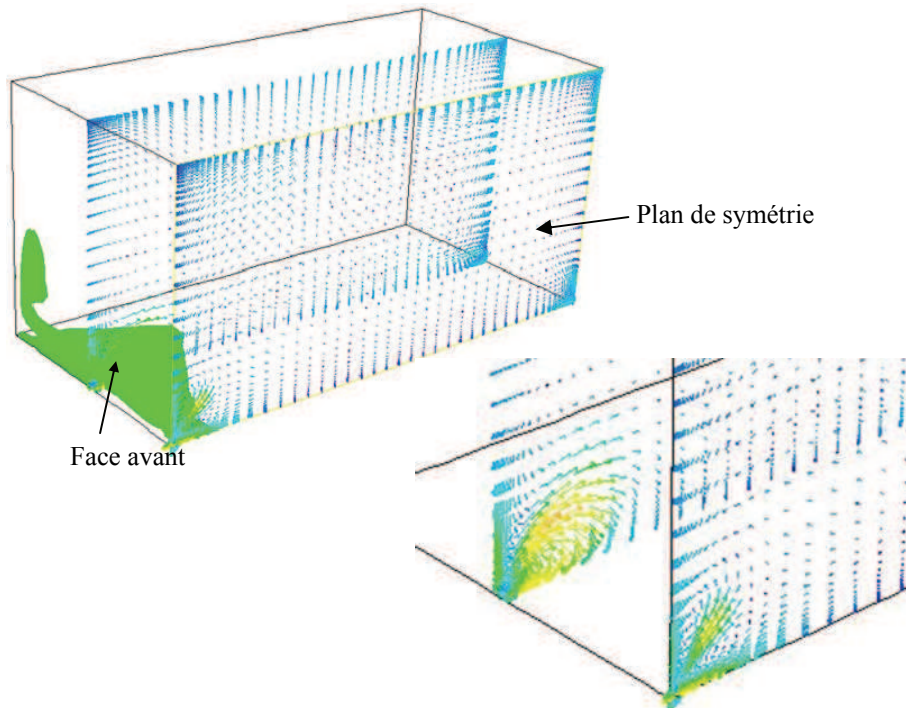


Figure 5-29 : Champ de vitesse dans la moitié de géométrie du silicium. $V_{max} = 1.8m/s$; isosurface à $0.8m/s$ et zoom de la base du creuset, emplacement de la fente (à droite).

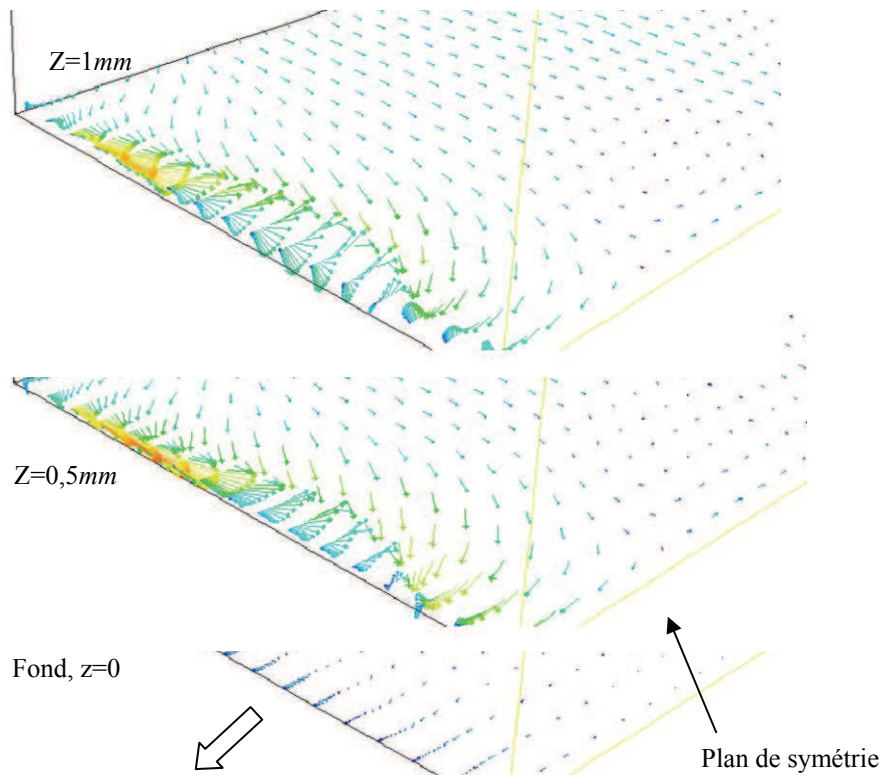


Figure 5-30 : Configuration avec tirage : $V_t=1m/mn$.

Les vecteurs vitesses tracées sur le fond du silicium et deux plans parallèles au fond et situées à une distance de respectivement $0,5mm$ et $1mm$ sont présentés sur la Figure 5-30.

Nous retrouvons dans le volume silicium les deux boucles de circulation du fluide que nous avons déjà notées en configuration axisymétrique, ce qui montre une bonne cohérence entre les résultats obtenus avec les deux configurations. La vitesse moyenne de brassage dans le volume silicium, calculée en configuration 3D est de $0,2m/s$ ($f=25kHz$, $I=1000A$), alors qu'on était à $0,07m/s$ dans la configuration axisymétrique présentant l'inducteur en dessous du fond du silicium (paragraphe 5.3.2b). On peut attribuer cet écart à l'absence de plaque de concentration du champ magnétique dans le calcul axisymétrique, alors que cette plaque existe face à la fente en 3D comme dans l'expérience.

5.4 Modélisation de la ségrégation des impuretés

5.4.1 Phénoménologie

Dans les procédés de croissance cristalline, on constate généralement que le solide, cristallisé progressivement à partir d'un liquide de composition uniforme présente une composition non uniforme, suivant les directions parallèles et perpendiculaires à la direction de solidification. C'est le phénomène de ségrégation des impuretés, qualifiée de ségrégation axiale pour les variations de composition le long de l'axe du lingot, et de ségrégation radiale, pour une différence de concentration (en impuretés) entre le centre du lingot et les bords (dépendant en général de la courbure de l'interface et du gradient de température).

Ce phénomène de ségrégation des impuretés dans le solide s'explique par une ségrégation des impuretés à la solidification, c'est-à-dire un partage inégal des espèces chimiques entre solide et liquide lorsqu'un volume élémentaire de mélange change de phase. On retrouve ce phénomène sur le diagramme de phase du composé en question, par l'écart entre le solidus et le liquidus, montrant la différence de composition entre le solide et le liquide (Figure 5–31). Ainsi, à l'équilibre, le rapport entre la concentration (en impureté) dans le solide à l'interface, et celle dans le liquide à l'interface, définit le coefficient de partage à l'équilibre où coefficient de ségrégation, propre à chaque impureté dans un mélange donné :

$$k_0 = \frac{C_{s,i}}{C_{l,i}} = \frac{\rho_s y_{s,i}}{\rho_l y_{l,i}} \quad (5-1)$$

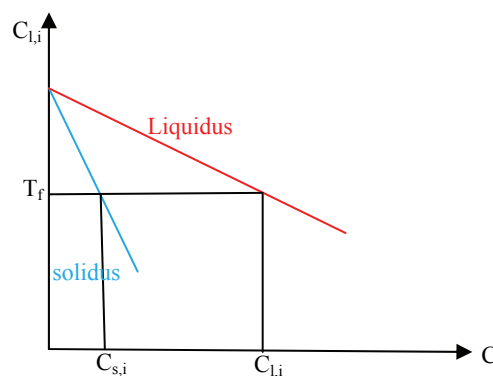


Figure 5–31 : Diagramme de phase d'un mélange binaire.

$C_{s,i}$, $C_{s,b}$, $y_{s,i}$ et $y_{l,i}$ sont respectivement la concentration en soluté dans le solide et dans le liquide à l'interface ($kg_{(de\ polluant)}/m^3$), et la fraction massique du soluté dans le solide et dans le liquide à l'interface ($kg_{(de\ polluant)}/kg$).

Lors de la solidification avec ségrégation, les impuretés sont rejetées à l'interface, avec une densité de flux $j_i = \rho(y_{li} - y_{si})U_s$ où U_s est la vitesse de cristallisation. La fraction massique dans le liquide à l'interface diffère de la fraction massique moyenne dans le liquide à cause de ce rejet de soluté. Il s'établit alors un flux dû au gradient de concentration dans le liquide, traduit par la loi de Fick : $\vec{j}_d = -\rho D \vec{\nabla} y$. Dans le cas où ce transport d'impuretés est également provoqué par le mouvement du fluide, un terme supplémentaire, tenant compte de cette convection s'ajoute à l'expression précédente du flux de diffusion, et on parle de flux de convecto-diffusion :

$$\vec{j}_{cd} = -\rho D \vec{\nabla} y + \rho \vec{U} y \quad (5-2).$$

On définit un coefficient de partage effectif, $k_{eff} = y_s / y_\infty$, y_s étant la fraction massique du solide formé, et y_∞ la fraction massique moyenne du liquide. k_{eff} permet donc de décrire la concentration en solutés dans le lingot.

La loi de Scheil-Gulliver [Scheil et Metallk, 1942] permettant de décrire la distribution de soluté dans le solide, peut s'écrire en fonction de la fraction solidifiée f_s $y_{jsi} = k_{eff} y_{jl} (1 - f_s)^{k_{eff}-1}$ avec pour coefficient de ségrégation effectif [Burton, *et al.* 1953] :

$$k_{eff} = \frac{k_0}{k_0 + (1 - k_0) e^{-\left(\frac{V\delta}{D}\right)}} \quad (5-3)$$

D étant le coefficient de diffusion de l'impureté dans le composé (m^2/s), et V la vitesse de croissance (m/s). δ est une épaisseur (m) représentant l'intervalle dans lequel la concentration en solutés dans le liquide à l'interface décroît vers la concentration moyenne C_0 du liquide (Figure 5–32). Lorsqu'il n'y a pas de convection dans le liquide autre que la vitesse $-U_s$ du liquide vers l'interface, l'épaisseur δ de Burton, Prim et Slichter [1953] est donnée par l'égalité des vitesses de diffusion et de croissance : $\delta = D/V$ [Stefanescu, 2002] ou $\delta_e = 2D/V$ [Kurz et Fisher, 1992].

On peut distinguer trois zones de gradient de concentration lors de la solidification :

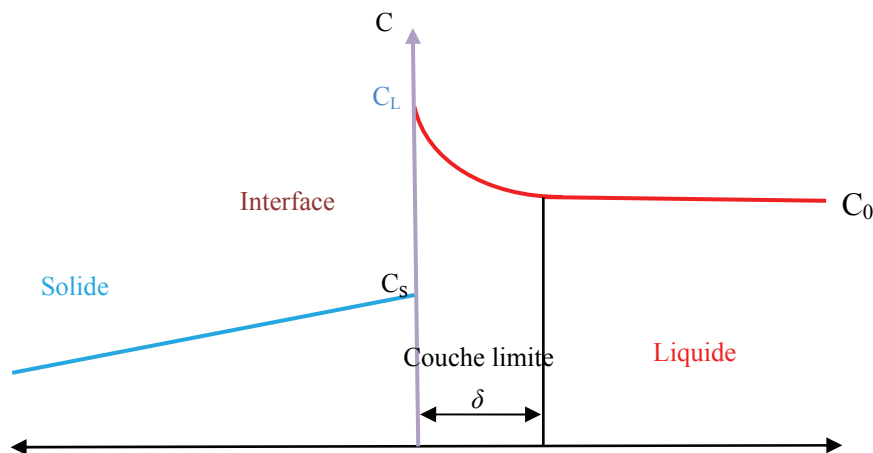


Figure 5–32 : profil de concentration pour $k < 1$.

a) une première zone dans le solide, où la distribution de concentration résulte surtout de l'histoire de la solidification. Dans cette zone à faible diffusivité (par rapport au liquide), le gradient est en général assez faible pour que le flux de diffusion soit négligeable ;

- b) la deuxième zone est la couche limite δ créée à l'interface par le rejet de soluté vers le liquide, siège du transport d'impuretés par diffusion ou convection-diffusion ;
 c) et enfin le liquide, siège d'un transport à convection dominante (en situation de convecto-diffusion, quand le fluide est en mouvement).

Lorsqu'il y a de la convection dans le bain liquide, la détermination du coefficient de partage k_{eff} passe par le calcul de l'épaisseur δ , qui n'est pas évident à calculer et pas toujours représentatif d'une réelle épaisseur de couche limite. Wilson [1978] a exprimé k_{eff} en fonction du coefficient de ségrégation à l'équilibre thermodynamique k_0 et d'une épaisseur de couche $\delta_W = (y_{li} - y_{\infty}) / (\partial y / \partial n)_0$ définie à partir de la dérivée normale de fraction massique à l'interface $(\partial y / \partial n)_0$; dont il déduit un paramètre convecto-diffusif $\Delta = U_l \cdot \delta_W / D$, où U_l est la vitesse normale du liquide à l'interface (m/s), reliée à la vitesse de solidification par $U_l = (\rho_s / \rho_l) U_s$.

Nous utiliserons ici l'expression équivalente $\Delta = \frac{\rho_s U_s}{\rho_l K}$, où $K = \frac{J_d}{\rho(y_{li} - y_{\infty})}$ (m/s) est le coefficient de transfert de masse de la couche limite convecto-diffusive, permettant d'écrire le flux de diffusion $j_d = \rho D (\partial y / \partial n)_0$ sous la forme $j_d = \rho K (y_{li} - y_{\infty})$. Comme c'est le cas pour Wilson [1978] l'équilibre entre le flux $j_d - \rho U_s y_{li}$ fourni par le liquide et le flux $-\rho U_s y_s$ emporté par le solide permet d'écrire le coefficient de ségrégation effectif en fonction du coefficient thermodynamique k_0 et du coefficient de transfert de masse K sous la forme :

$$k_{eff} = \frac{k_0}{1 - (1 - k_0) \Delta} \quad (5-4)$$

Le coefficient de transfert de masse K relie le flux de masse des impuretés diffusées à partir de l'interface J_d , à la concentration $\rho(y_{li} - y_{\infty})$ responsable de ce flux, tout comme le coefficient de transfert thermique convectif relie le flux de chaleur en paroi à la différence de température à travers la couche. Ce coefficient permet de décrire les couches limites laminaires ou turbulentes, en général par des lois empiriques ou semi-empiriques, au contraire des calculs analytiques cités précédemment [Burton *et al.*, 1953], [Winston, 1978], qui ne s'appliquaient qu'à un écoulement laminaire près d'un cylindre tournant (croissance cristalline en procédé Czochralski).

Partant de l'équation (5-4), nous avons calculé le coefficient de partage effectif k_{eff} , correspondant à différentes vitesses de solidification U_s (de 1cm/h à 100cm/h) et différentes valeurs du coefficient de transfert de masse K (Figure 5–33).

Pendant nos expériences de fusion et cristallisation de silicium, la fréquence varie entre 25 et 30kHz, et le courant inducteur injecté dans la bobine peut monter jusqu'à 1600A. Le Tableau 5–5 contient les valeurs du coefficient de transfert de masse correspondant à la gamme de brassage que nous provoquons au sein du silicium liquide lors de nos expériences. Ces valeurs du coefficient de transfert sont tirées des calculs de ségrégation sous brassage que nous présentons au paragraphe 5.4.2.c de ce chapitre.

Fréquence (kHz)	Courant (A)	K (m/s)
25	1000	$3,82 \cdot 10^{-04}$
	1500	$4,89 \cdot 10^{-04}$
30	1000	$3,94 \cdot 10^{-04}$
	1500	$4,95 \cdot 10^{-04}$

Tableau 5–5 : Coefficient de transfert de masse correspondant à notre gamme de brassage électromagnétique.

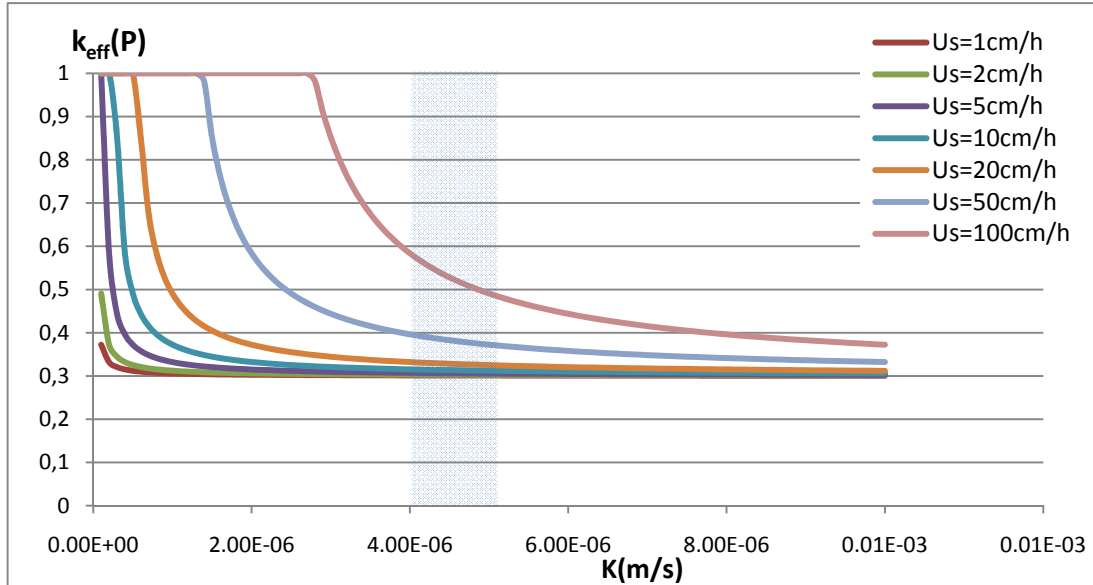


Figure 5-33 : Coefficient de partage effectif k_{eff} du phosphore en fonction du coefficient de transfert de masse K et de la vitesse de solidification U_s .

Interprétation : Coefficient de partage effectif k_{eff} varie entre 0,3 (ségrégation parfait) et 1 (pas de ségrégation). Le coefficient de transfert de masse traduit la qualité du brassage électromagnétique correspondant : plus il y a de brassage et plus ce coefficient est grand. On voit que quelque soit la vitesse de solidification U_s les grandes valeurs de K donnent une ségrégation qui tend vers le coefficient thermodynamique k_0 . Quand le transfert de masse et donc le brassage est faible, le coefficient de ségrégation tend vers 1.

Par ailleurs, on constate (comme c'est bien connu en croissance cristalline) que les faibles vitesses de cristallisation permettent d'obtenir une meilleure ségrégation. Nous avons cristallisé du silicium à 20 cm/h (paragraphe 5.2.2). En se plaçant sur la courbe correspondante et dans la gamme de brassage qui nous intéresse (indiquée par la bande bleue sur la Figure 5-33), nous pouvons idéalement nous attendre à obtenir une très bonne ségrégation, entre $k_{eff}=0,332$ pour $K=4.10^{-4}m/s$ et $k_{eff}=0,325$ pour $K=5.10^{-4}m/s$. En pratique, nous sommes loin d'être dans un cas idéal, puisque nous obtenons des coefficients de partage de l'ordre de 0,5 pour le phosphore et dans les mêmes conditions de brassage. Nous reviendrons sur cette différence en paragraphe 5.4.4.

Les calculs présentés ici sont basés sur le calcul du coefficient de transfert de masse, et permettent de remonter au coefficient de ségrégation effectif grâce à la loi de Scheil-Gulliver. Pour cela, nous avons développé différents modèles permettant de calculer l'écoulement turbulent et le coefficient de transfert de masse dans les deux configurations suivantes :

- la configuration cylindrique, modélisée en 2D axisymétrique (Fluent)
- la configuration cubique, modélisée en 3D (calcul électromagnétique réalisée sous Comsol et calcul hydrodynamique sous Fluent après interpolation de la force de Lorentz)

5.4.2 Calcul du coefficient de transfert de masse

a. Modèle basé sur les analogies de Reynolds et Colburn

Il s'agit d'exploiter l'analogie de Reynolds, qui permet d'écrire, pour un nombre de Prandtl $Pr=1$, une relation entre le frottement turbulent à la paroi, caractérisé par le coefficient de frottement C_f , et le transfert thermique, caractérisé par le nombre de Stanton thermique (rapport entre la densité de flux à la paroi et la densité de flux convectif). En effet si $Pr=1$, les diffusivités de quantité de mouvement et de température sont les mêmes ($\nu=\alpha$), donc les deux phénomènes sont régis par la même équation de couche limite $\tau_w = \mu \left(\frac{du}{dn} \right) \varphi_w = -k \left(\frac{dT}{dn} \right)$ [Rubesin et Inouye, 1973], [Bianchi *et al.*, 2004]. L'analogie de Reynolds s'écrit, $St = \frac{C_f}{2}$, où S_t et C_f sont définis au Tableau 5–6.

De même, l'analogie entre les nombres de Stanton en transfert thermique et en transfert de masse $St_y = K/U_\infty$ [Brodkey et Hershey, 1988], associée à l'analogie de Reynolds permet de tirer le coefficient de transfert $K = \frac{\tau_w}{\rho_l U_\infty}$.

Un simple calcul d'écoulement, avec brassage électromagnétique dans notre cas, permet de reconstituer le coefficient K à partir de la valeur du frottement à la paroi, τ_w . On peut aussi modéliser un écoulement avec transfert thermique ou un écoulement avec transfert de masse, ça ne change rien à la valeur du frottement à la paroi, mais dans ces cas là, on peut calculer le coefficient de transfert, et donc le coefficient de partage effectif d'une façon plus précise comme expliqué dans les paragraphes 5.5.2 et 5.5.3.

Cependant, cette analogie n'est juste que si le nombre de Prandtl de l'écoulement ($Pr=\nu/\alpha$), nombre adimensionnel du problème thermique, est voisin de 1 (analogue du nombre de Schmidt $Sc=\nu/D$ en transfert de masse). Pour des nombres de Pr et de Sc supérieurs à 0,5, il vaut mieux utiliser l'analogie de Colburn, qui intègre empiriquement les nombre de Prandtl et de Schmidt à l'analogie de Reynolds : $St = Pr^{-\frac{2}{3}} \cdot \frac{C_f}{2}$ pour la thermique et $St = Sc^{-\frac{2}{3}} \cdot \frac{C_f}{2}$ pour le transfert de masse. Les nombre de Prandtl est petit devant 1 pour le silicium liquide, comme pour tous les métaux liquides, mais le nombre de Schmidt est grand devant 1, ce qui permet d'utiliser cette analogie en transfert de masse.

b. Modèle basé sur l'analogie transfert thermique- transfert de masse

L'intérêt du brassage électromagnétique est d'améliorer la valeur du coefficient de transfert de masse K et donc du coefficient de ségrégation effectif k_{eff} à travers l'équation (5-4), en créant un écoulement turbulent. Dans ce modèle, nous proposons de calculer le coefficient de transfert de masse, grâce à un calcul stationnaire de la thermique de l'écoulement, sous brassage électromagnétique.

Les raisonnements utilisés dans ce paragraphe se basent sur l'analogie entre transferts thermiques et transferts de masse, alors qu'au paragraphe 5.4.3a nous avons utilisé l'analogie entre transferts thermiques et transferts de quantité de mouvement (Tableau 5–6) :

Transferts thermiques	Transferts de masse	Transferts de quantité de mouvement
$\varphi_w = -k \frac{\partial T}{\partial n} = -\rho \alpha \frac{\partial (C_p T)}{\partial n}$ Densité de flux thermique	$j_w = -\rho D \frac{\partial y}{\partial n}$ Densité de flux de masse	$\tau_w = \mu \frac{\partial U}{\partial n} = \rho \nu \frac{\partial U}{\partial n}$ Frottement
$St_T = \frac{\varphi_w}{\rho U_\infty (C_p T_w - C_p T_\infty)}$ Nombre de Stanton thermique	$St_y = \frac{j_w}{\rho U_\infty (y_w - y_\infty)}$ Nombre de Stanton de masse	$C_f = \frac{\tau_w}{1/2 \rho U_\infty^2} = 2 \frac{\tau_w}{\rho U_\infty (U_\infty - U_w)}$ Coefficient de frottement
$C_p T$ Enthaplie massique	y Fraction massique	U Vitesse (qdm massique)

Tableau 5-6 : Analogies transferts thermique, transfert de masse et transfert de QDM.

L'analogie entre le transfert thermique et le transfert de masse est rigoureuse si les diffusivités thermiques et solutales sont égales ($\alpha=D$). Elle se traduit alors par l'égalité des nombres de Stanton [Brodkey et Hershey, 1988]:

$$St_t = St_y \text{ soit } \frac{h(T_w - T_\infty)}{\rho U_\infty (C_p T_w - C_p T_\infty)} = \frac{\rho K (y_w - y_\infty)}{\rho U_\infty (y_w - y_\infty)} \text{ d'où } K = \frac{h}{\rho C_p} \quad (5-5)$$

Il suffit de calculer le coefficient d'échange de chaleur à la paroi pour remonter au coefficient de transfert de masse K . Dans l'hypothèse où la vitesse de solidification est faible (négligeable dans le calcul de l'écoulement), on peut assimiler le front de solidification à un mur. Il s'agit alors d'un problème de transfert thermique tout à fait classique, qu'on introduit dans Fluent en imposant une température T_w sur l'interface solide/liquide (représentée par le fond du silicium), et un puits volumique de chaleur $-Q(W/m^3)$, dans le volume de silicium (Figure 5–34). Le calcul de la thermique donne la température moyenne du silicium liquide (qu'on prend comme T_{ref}), ce qui permet de calculer le coefficient d'échange de chaleur $h=Q(V/S)/(T_w-T_{ref})$, où V est le volume de silicium et S la surface du fond.

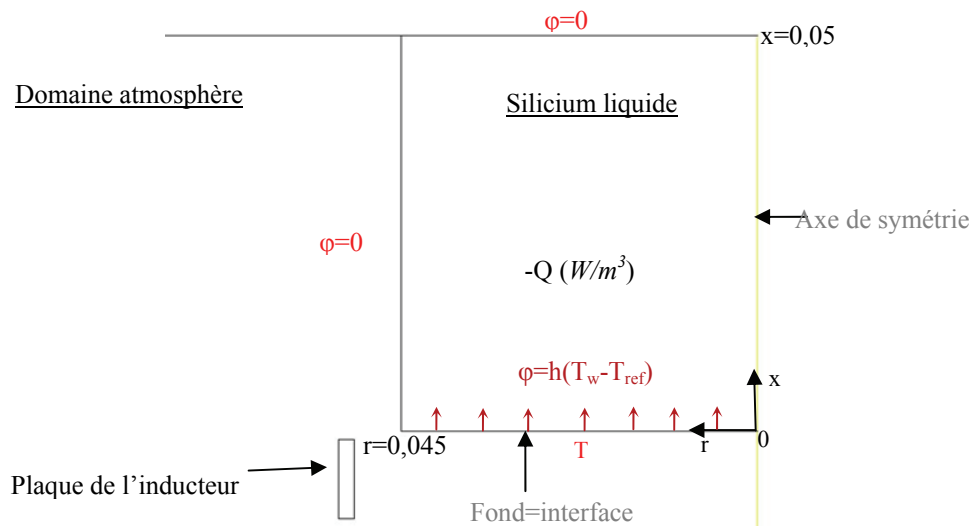


Figure 5-34 : Présentation de la géométrie et des conditions limite (en axisymétrique).

L'inducteur modélisé ici diffère légèrement de celui du Chapitre 3 : nous ne représentons que la plaque de l'inducteur, qui était absente dans la géométrie modélisée en Chapitre 2. Nous avons ajusté la conductivité thermique du silicium pour avoir une diffusivité thermique α égale à la diffusivité de masse D , prise ici égale à $10^{-8} m^2/s$.

Une fois qu'on a obtenu un coefficient de transfert de chaleur local h à partir du calcul thermique présenté ci-dessus, on peut calculer en tout point de l'interface le coefficient de transfert de masse $K=h/\rho C_p$, le paramètre convecto-diffusif $\Delta=(\rho_s/\rho_l)U_s/K$, puis le coefficient de ségrégation effectif $k_{eff}=k_0/[1-(1-k_0)\Delta]$. Par la suite nous ne tiendrons pas compte du rapport de densité solide/liquide, ce qui revient à nommer vitesse de cristallisation la vitesse du liquide par rapport à l'interface, au lieu de celle du solide (qui est égale à la vitesse de l'interface par rapport au solide fixe).

Plus le brassage créé sera important, et plus le coefficient d'échange de chaleur h et donc le coefficient de transfert K sera grand. Pour les grandes valeurs de K , le paramètre de convecto-diffusion Δ tend vers 0 et k_{eff} tend vers k_0 , ce qui correspond à une excellente ségrégation et un mélange parfait. Par contre, pour un régime purement diffusif, notre modèle sans vitesse normale au front (pour l'écoulement, le front est modélisé comme une paroi imperméable), donnerait une échelle caractéristique de variation de température (ou de concentration) selon la normal au front, de l'ordre de la taille L du domaine, donc un coefficient de transfert de l'ordre de D/L . Dans la réalité la présence d'une vitesse normale U_s du liquide vers l'interface limite cette taille à un maximum de D/U_s , soit un coefficient de transfert minimum $K_{min}=U_s$ et un paramètre convecto-diffusif $\Delta_{max}=1$: dans ce cas il n'y a pas de mélange, donc pas de ségrégation et $k_{eff}=1$; mais le modèle peut donner des paramètres convecto-diffusifs $U_s.L/D$ supérieurs à 1, ce qui n'est pas physique (cela peut donner $k_{eff}<0$!) et provient de l'hypothèse de paroi imperméable. Le modèle n'est donc valable que pour des faibles vitesses de cristallisation, plus exactement pour $U_s.L/D \ll 1$.

Ce modèle a été appliqué en configuration axisymétrique avec Fluent et le module d'induction, puis en configuration cubique, où nous avons choisi de calculer les forces électromagnétiques avec Comsol et ensuite de les interpoler aux centres des mailles du calcul d'écoulement de Fluent. Cette procédure permet d'utiliser chaque code de calcul dans le domaine qu'il maîtrise le mieux, et un maillage optimisé pour chaque problème (électromagnétique et mécanique des fluides). L'interpolation est confiée à un fichier de commandes pour Fluent, qui lance Comsol et utilise des commandes d'interpolation de Comsol. Ce fichier appelle ensuite un programme en C++ responsable de la traduction du fichier de coordonnées des centres de mailles entre les formats Fluent et Comsol.

c. Calcul du transport de masse

Pour relaxer l'hypothèse de faible vitesse de cristallisation, nous avons choisi d'imposer la vitesse du liquide normale au front de solidification, ce qui exige quelques aménagements car il s'agit d'une frontière interne au domaine, à travers laquelle nous avons besoin de transmettre des flux électromagnétiques (équations de transport du module d'induction). Il s'agit d'implanter ces conditions de sortie à débit imposé par des termes sources dans la première rangée de maille bordant le front.

De plus, nous utilisons ici le module de transport d'espèces du logiciel Fluent pour résoudre l'équation de conservation des espèces (ce qui libère l'équation thermique pour traiter dans le futur un problème thermique comme la solidification) :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho y_j) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} y_j) = -\nabla \cdot \vec{J}_j + S_j,$$

Où $\vec{J}_j = -\rho D_{jm} \nabla y_j$ est le flux transporté par diffusion et s'exprime en $kg_j/m^2/s$, y_j est la fraction massique du polluant j (kg_j/kg).

Les termes source et conditions au front

Le front de solidification (fond du creuset comme précédemment) étant un puits de masse pour le liquide qui se solidifie et une source de solutés pour les impuretés rejetés, nous allons modéliser la solidification en implantant un puits de masse volumique $S_m(\text{kg}/\text{m}^3/\text{s})$ dans la première maille du volume silicium, défini par $-\rho U_s dA = S_m dAh$ d'où $S_m = -\rho \frac{U_s}{h}$, où dA est la surface de la facette frontière de cette maille, et h sa hauteur selon la normale à l'interface. Ce débit masse sortant du domaine emporte avec lui une quantité de soluté correspondant à la fraction massique y_s passant en phase solide, soit un terme source $S_y = k_0 y_l S_m$ dans la maille voisine du front, y_l étant la fraction massique calculée par fluent du liquide au centre de la maille considérée. La différence entre ce terme source et l'apport de soluté $|S_m| y_l$ par convection depuis l'environnement liquide, constitue le rejet de soluté à l'interface qui sera équilibré par un terme de diffusion dans le liquide (nous imposons un flux de diffusion nul sur le front).

Ce débit extrait S_m (source de masse négative) impose de fait un terme de convection dans toutes les équations de transport résolues par le code : on contrôle la valeur de l'inconnue transportée par ce flux qui se solidifie au moyen d'un terme source supplémentaire qui est égal à S_m multiplié par la valeur des différentes variables sur le front, et on impose sur l'interface même une condition aux limites qui servira au calcul des flux de diffusion :

- pour l'énergie, terme source $S_m \cdot h_{ls}$ où h_{ls} est l'enthalpie liquide à saturation, et condition de température imposée égale à la température de solidification (1410°C)
- pour la quantité de mouvement verticale, terme source $S_m \cdot (-U_s)$ et condition de vitesse normale nulle ($-U_s$, plus approprié, n'est pas disponible sur un mur, mais le terme de diffusion de vitesse normale joue un très faible rôle)
- pour la quantité de mouvement tangente à l'interface, $S_m \cdot \mathbf{V}_t$, où $\mathbf{V}_t$ est la vitesse de tirage dans le cas d'un ruban ($\mathbf{V}_t = \mathbf{0}$ si pas de tirage), et condition de vitesse tangente égale à $\mathbf{V}_t$.
- pour k et ε , termes sources nuls, et conditions aux limites de type loi de paroi.

Les conditions limites sur les autres frontières

Le coté du domaine silicium est adiabatique ($\varphi=0$), ce qui assure une température constante du bain ; on implante une vitesse entrante égale à U_s sur la frontière représentant le dessus du fluide, ce qui équivaut à imposer un débit massique de solidification sur l'interface (compensé par le puits de masse le long du front de solidification). Cette entrée de liquide est fixée à une fraction massique de 10ppm , et à température de 1410°C . Un flux de diffusion nul du polluant est imposé sur les frontières latérales.

Taille de la première maille

Nous allons nous baser sur les coefficients de ségrégation effectifs obtenus expérimentalement pour calculer la taille de la première maille. Nous avons obtenu pour l'expérience AX50 (paragraphe 5.2.3), pour une vitesse de solidification de $U_s = 8 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$, $k_{eff}(P) = 0,57$. D'après l'équation 5-4, avec $D = 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ et $k_0 = 0,3$, l'épaisseur de la couche limite est

$$\delta_w = \frac{D}{U_s} \cdot \frac{1 - k_0 / k_{eff}}{1 - k_0} = 8,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}.$$

Nous prenons donc une taille de 10^{-5} m pour la première maille.

5.4.3 Résultats des trois modèles

a. Analogies de Reynolds-Colburn

Le coefficient de transfert, tiré de l'analogie de Colburn $\frac{K}{U_\infty} = Sc^{-\frac{2}{3}} \cdot \frac{C_f}{2}$ est $= Sc^{-\frac{2}{3}} \cdot \frac{\tau}{\rho U_\infty}$ m/s, Avec $Sc = \frac{3,5 \cdot 10^{-7}}{10^{-8}} = 35$, $\rho = 2533 \text{ kg/m}^3$ et U_∞ une vitesse caractéristique de l'écoulement hors de la couche limite, que nous prenons égale à la vitesse moyenne du fluide sur la ligne (plan en 3D) située à 1mm au dessus du fond du creuset. On en déduit le coefficient de partage effectif, $K_{eff} = \frac{k_0}{1 - (1 - k_0) \cdot \frac{U_s}{K}}$, où k_0 est le coefficient de ségrégation thermodynamique de l'impureté considéré et U_s la vitesse de solidification égale à $5 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$ (18cm/h), estimée à partir de nos expériences.

Le Tableau 5–7 résume la valeur moyenne du frottement calculée sur la paroi du fond du creuset et le coefficient de partage effectif (pour le phosphore et le fer), obtenus en modélisant un écoulement créé par le brassage électromagnétique (25kHz, 1000A) dans du silicium liquide en 2D axisymétrique (Fluent) et en 3D (Fluent+Comsol), sans déplacement (vitesse de tirage de 1m/mn) de la paroi du fond ou pas.

	τ (Pa)	K (m/s)	k_{eff} (P)	k_{eff} (Fe)
Config. 2D	1,887	3,82E-04	0,330	1,151E-06
Config. 2D-V _t	1,809	3,68E-04	0,332	1,157E-06
Config. 3D	4,189	5,19E-04	0,322	1,107E-06
Config. 3D-V _t	4,447	4,79E-04	0,324	1,117E-06

Tableau 5–7 : Frottement calculé à la paroi (brassage de 25kHz, 1000A), coefficients de transfert de masse et coefficient de partage effectif du phosphore (P) et du fer (Fe).

En 2D comme en 3D, on trouve un coefficient de ségrégation effectif très proche de la valeur thermodynamique ce soit pour le phosphore ($k_0=0,3$) ou le fer ($k_0=10^{-6}$), ce qui montre une très bonne ségrégation.

Nous illustrons l'évolution du coefficient de partage effectif en fonction de la fréquence d'induction, pour $I=1000A$ et $I=1500A$ sur la Figure 5–35. Comme nous le disions en paragraphe 5.3.3, le tirage du fond du creuset ne modifie pas le brassage. La seule différence entre calculs avec et sans tirage apparaît en 3D, où le maillage est beaucoup plus grossier, et cet écart n'est donc pas significatif. Il s'ensuit donc que les valeurs de coefficient de partage effectif calculés dans les calculs avec et sans tirage diffèrent assez peu. Nous retrouvons une meilleure ségrégation à $I=1500A$ qu'à $I=1000A$, ce qui est lié au fait que le brassage est plus important à courant plus fort. L'ordre de grandeur du k_{eff} calculé en 3D reste comparable à celui calculé en 2D, mais les configurations diffèrent, en particulier pour la plaque de concentration du champ.

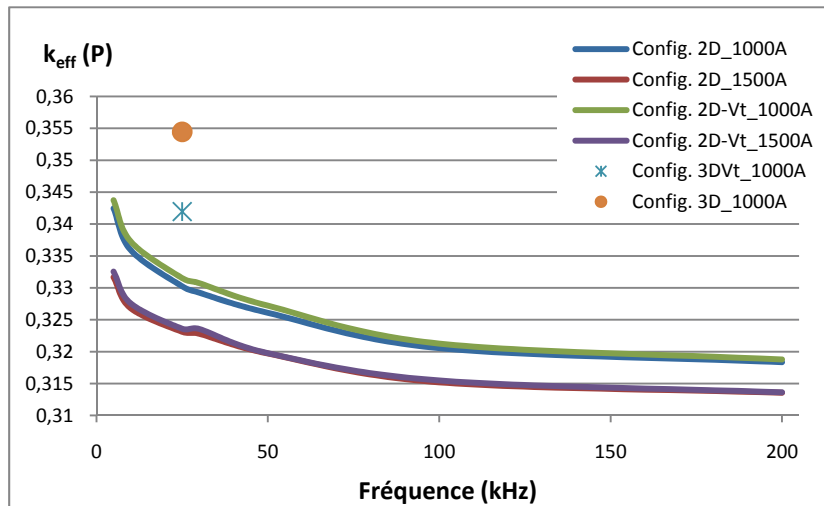


Figure 5-35 : Coefficient de partage effectif k_{eff} du phosphore en fonction de la fréquence.

b. Analogie transferts thermiques/transferts de masse

Les résultats présentés dans ce paragraphe concernent la configuration axisymétrique. Le résistor bas n'est pas modélisé dans ces calculs. Le rayon du domaine silicium est de $4,5\text{ cm}$. On utilise le modèle présenté au paragraphe 5.4.2b qui ajoute une équation de transport de chaleur aux calculs d'écoulement du paragraphe 5.3.

Le coefficient de ségrégation effectif résultant k_{eff} est proche de la valeur thermodynamique k_0 pour les impuretés qui ségrègent peu comme le phosphore, $k_0 \sim 0.3$ (Figure 5-36), aussi bien que pour celles qui ségrègent fortement comme le fer, $k_0 \sim 10^{-6}$ (Figure 5-37).

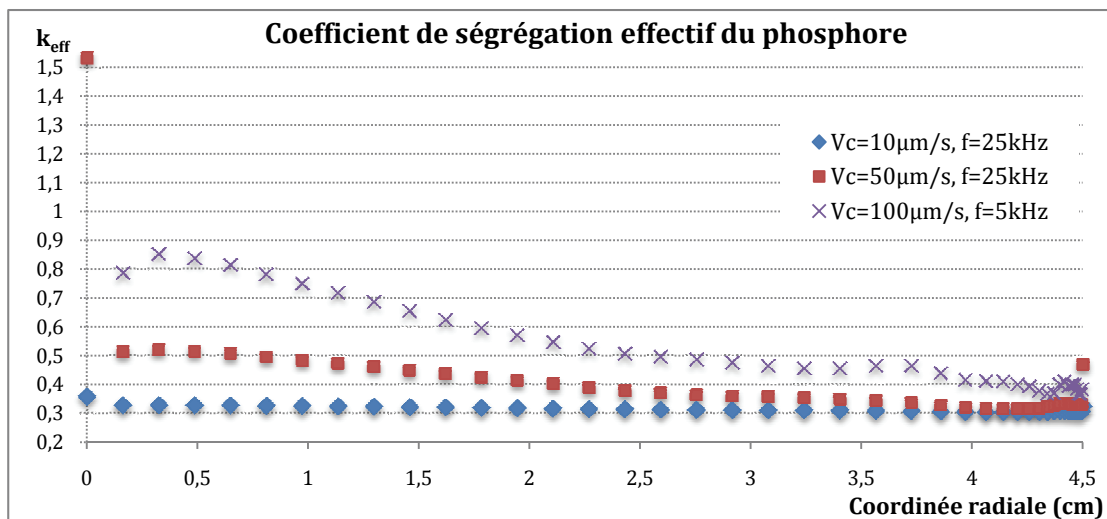


Figure 5-36 : Coefficient de ségrégation effectif k_{eff} calculé pour le phosphore ($k_0=0.3$) pour trois vitesses de solidification U_s , et un courant $I=1000\text{ A}$.

Pour les solidifications de solidification élevées comme $U_s=100\mu\text{m/s}$ ou plus, le calcul précédent donne un paramètre convecto-diffusif $\Delta=1$ ou plus au centre. En théorie, $\Delta=1$ correspond à une pure diffusion et $\Delta>1$ n'est pas physique. Ici, le transfert se fait par convection, mais la convection verticale est négligée dans la région proche paroi pour le calcul de la couche limite, ce qui fait que ce modèle se limite aux vitesses de solidification faibles devant K .

Les Figure 5–36 et Figure 5–37 montrent que la qualité de la ségrégation se dégrade quand la vitesse de solidification augmente, ce qui nous permet de définir le brassage nécessaire pour une bonne ségrégation et pour une vitesse de solidification donnée.

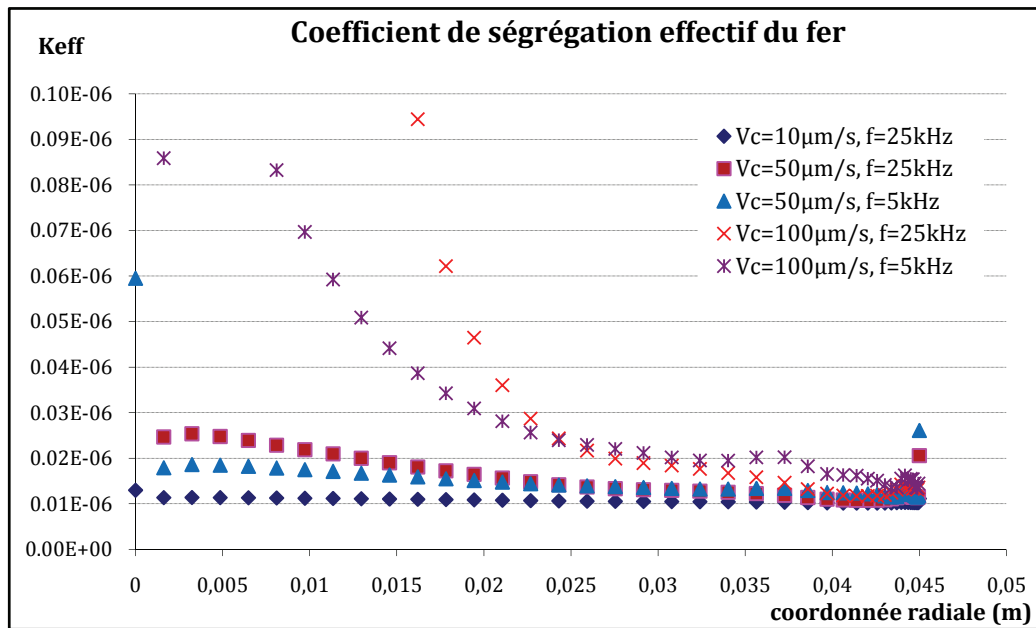


Figure 5–37 : Coefficient de ségrégation effectif k_{eff} calculé pour le fer ($k_0=10^{-6}$) pour différentes vitesses de solidification U_s et fréquences d'induction. $I = 1000A$.

On peut améliorer la ségrégation en augmentant le courant dans la bobine ou en modifiant la fréquence, ce qui augmente le brassage (Figure 5–37). L'effet de la fréquence dépend de l'épaisseur de peau électromagnétique, qui modifie le profil de vitesse dans la couche limite ainsi que la turbulence. Ainsi, pour $f=25kHz$, la vitesse de brassage est plus forte que pour $f=5kHz$, ce qui donne un coefficient de transfert de masse plus élevé, et donc une meilleure ségrégation.

On remarque également sur ces figures que le coefficient de ségrégation dans la zone centrale est plus élevé que la valeur moyenne : ainsi pour $1000A$ à $25kHz$ et $U_s=5.10^{-5}m/s$, on obtient $k_{eff} \sim 0.5$ dans la zone centrale (Figure 5–36), alors que la valeur de k_{eff} basée sur la moyenne du coefficient de transfert vaut dans ce cas $0,34$.

Le coefficient de ségrégation effectif calculé en 3D est présenté pour le phosphore en Figure 5–38.

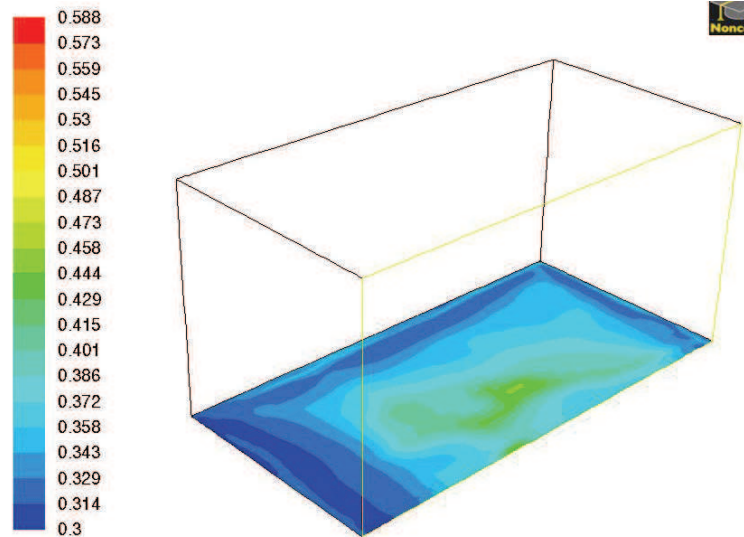


Figure 5-38 : Coefficient de ségrégation effectif du phosphore tracé sur le fond du volume silicium.
 $I=1000A$, $f=25kHz$ et $V_s=5 \cdot 10^{-5}m/s$ $V_t=0$.

Comme dans la configuration axisymétrique, la ségrégation très bonne dans les régions du silicium qui sont proches de l'inducteur, où on atteint pratiquement $k_0=0,3$ vers le bord. Le centre du silicium qui est la zone la moins brassée présente des coefficients plus grands, autour de 0,45.

c. Transport de masse

Cas test: diffusion pure avec termes sources

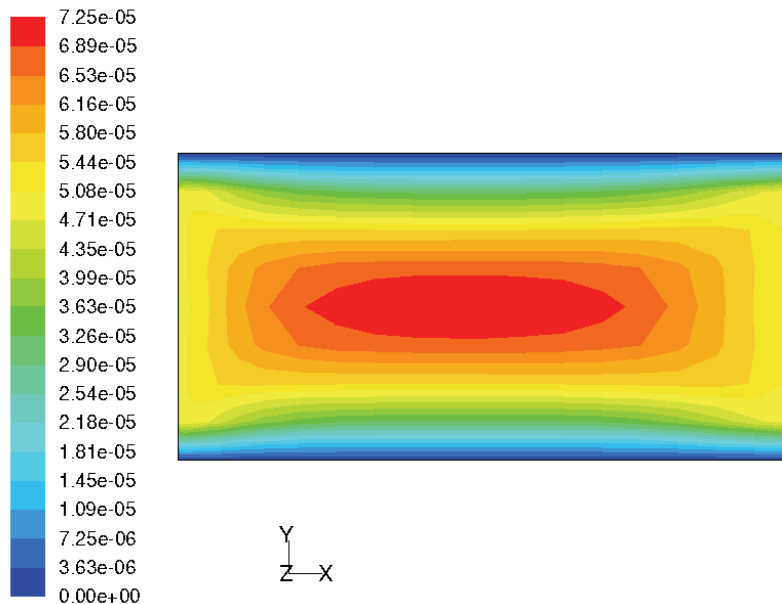


Figure 5-39 : Vitesse maximale au centre et nulle aux parois.

On retrouve bien un écoulement laminaire uniforme, avec une vitesse nulle à la paroi (condition limite de non glissement) et maximale au centre (Figure 5-39). Il n'y a pas d'autre mouvement au sein du fluide que cet écoulement quasi vertical, tendant vers un écoulement

de Poiseuille à mi-hauteur mais perturbé par les conditions aux limites d'entrée et de sortie à vitesse verticale uniforme. Le flux de soluté rejeté à l'interface se mélange au fluide par rétrodiffusion à contre courant de cet écoulement vertical, ce qui aboutit à la couche limite qu'on peut noter sur l'évolution de la fraction massique suivant l'axe (courbe grise de la Figure 5–40) :

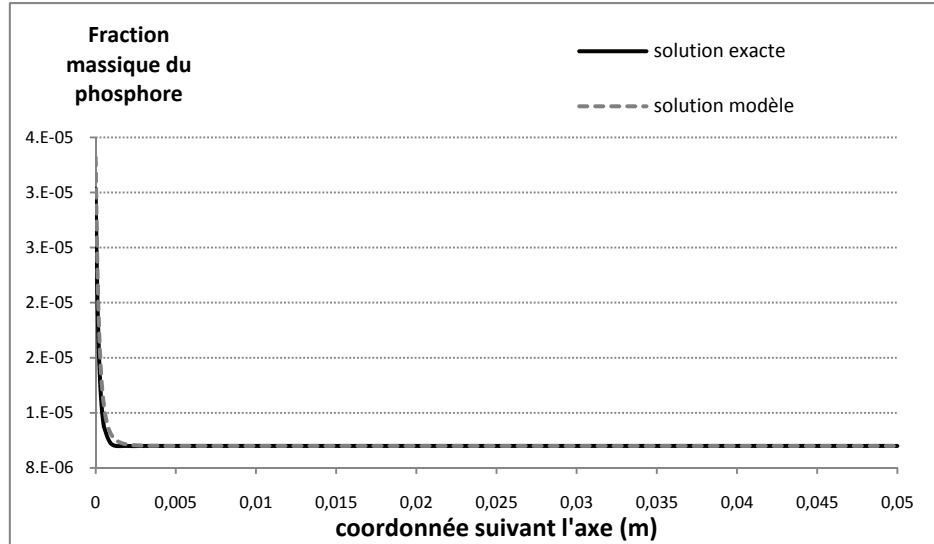


Figure 5–40 : Evolution de la fraction massique en diffusion pure, pour $V_c=50\mu\text{m/s}$.

Connaissant la fraction massique moyenne à l'interface $y_{li}=3,318.10^{-5}$ et la fraction massique moyenne du bain $y_{\infty}=10^{-5}$, on peut calculer le paramètre convecto diffusif

$\Delta = \frac{U'_s}{K} = \frac{(y_{li}-y_{\infty})}{y_{li}(1-k_0)} = 0,998$, ce qui correspond à $k_{eff}=0,995\sim 1$. On retrouve bien un fluide très peu mélangé et donc une mauvaise ségrégation.

La solution de l'équation de diffusion en régime stationnaire monodimensionnel ($D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + V \frac{\partial C}{\partial z} = 0$) est $C = C_0 \left[1 + \frac{1-k_0}{k_0} e^{-\frac{V}{D}z} \right]$, [Kurz et Fisher, 1992], z étant l'axe perpendiculaire au plan de solidification.

Cette solution (fraction massique $y=C/\rho$) est tracée en noire sur la Figure 5–40. On constate que la solution que nous avons calculée est très proche de la solution exacte. Les termes sources et les conditions aux limites sont justes, nous pouvons les transposer à la modélisation axisymétrique et 3D de notre configuration expérimentale (avec brassage).

Les éléments modélisés sont le silicium, la plaque de l'inducteur et le graphite, dans les configurations 2D axisymétrique et 3D, avec et sans tirage de la paroi du fond. Le modèle de ségrégation a été ajouté, avec pour paramètres :

- Le coefficient de ségrégation thermodynamique, $k_0(\text{P})=0,3$;
- La vitesse de solidification $U_s=5.10^{-5}\text{m/s}$;
- La masse volumique du silicium, $\rho_s=\rho_l=2533\text{kg/m}^3$;
- La concentration du polluant à l'infini, $y_{\infty}=10^{-5}$.

Le Tableau 5–8 contient les principaux résultats obtenus pour les différentes configurations considérées (résultats basés sur la moyenne de concentration sur tout le front de solidification). Les variations sont assez faibles d'une configuration à l'autre. On reste globalement très proche de k_0 .

	y_{li}	J	Δ	k_{eff}
2D, pure diffusion	3,33E-05	2,96E-06	1,00E+00	1,00
2D, brassage à 25kHz et 1000A	1,24E-05	1,10E-06	2,75E-01	0,37
2D, brassage à 25kHz et 1000A, $V_t=1\text{m/mn}$	1,20E-05	1,07E-06	2,40E-01	0,36
3D, brassage à 25kHz et 1000A	1,18E-05	1,05E-06	2,19E-01	0,35
3D, brassage à 25kHz et 1000A, $V_t=1\text{m/mn}$	1,14E-05	1,01E-06	1,75E-01	0,34

Tableau 5–8 : Résultats de ségrégation obtenus pour différents cas de calculs axisymétrique et 3D.

La carte de couleur du coefficient de partage effectif (Figure 5–41) montre une moins bonne ségrégation au centre du silicium, par comparaison avec les zones proches de l'inducteur.

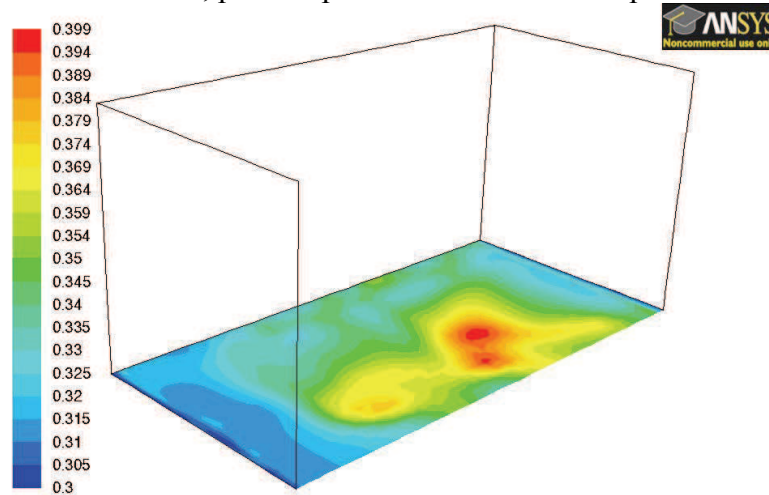


Figure 5–41 : Coefficient de partage effectif du phosphore.

Bien que le coefficient de partage effectif soit en moyenne égal à 0,34 ou 0,35 (avec ou sans tirage), on voit sur cette figure qu'il peut atteindre 0,4 lorsqu'on s'éloigne de l'inducteur. En effet, comme on peut le voir sur la Figure 5-42, le coefficient de partage effectif du phosphore présente des valeurs plus élevées au centre, là où le transfert de masse est plus faible (voir inexistant, ce qui correspond à $k_{eff}=1$ en $r=0$ pour un brassage à 25kHz et 1000A).

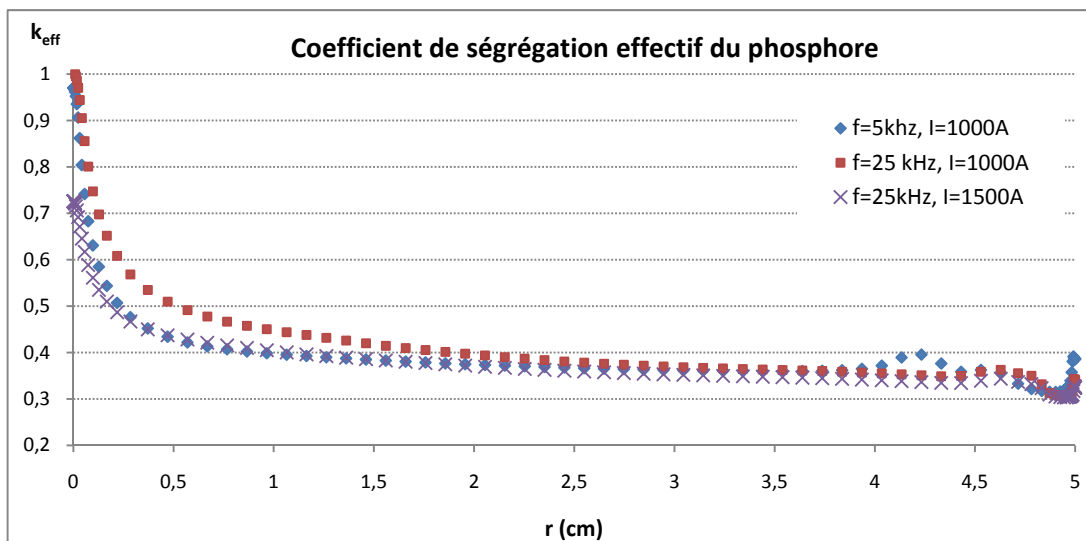


Figure 5–42 : Coefficient de partage effectif du phosphore (issu de calculs axisymétriques) pour différentes fréquences et courants inducteurs. $V_c=50\mu\text{m/s}$. $r=0$ correspond au centre du creuset.

En augmentant le courant ou en diminuant la fréquence, on crée un brassage plus important et ainsi une meilleure ségrégation au centre.

5.4.4 Confrontation des modèles

Les différents modèles présentés dans ce chapitre nous ont permis de calculer le coefficient de partage effectif correspondant à un brassage donné. Les trois modèles ont confirmé que la ségrégation s'améliore avec le brassage. L'écoulement est turbulent dans le fluide, ce qui permet l'amélioration du coefficient de ségrégation sans pour autant nécessiter des vitesses de fluide très grandes.

Le modèle basé sur l'analogie de Reynolds-Colburn est un modèle semi empirique qui permet de prédire assez facilement la ségrégation, à partir d'un calcul d'écoulement indépendant de la vitesse de cristallisation U_s du coefficient de diffusion solutale D , et du coefficient de ségrégation k_0 . Le même calcul de brassage peut donc être exploité pour plusieurs conditions de ségrégation.

L'analogie de Colburn est adaptée à des écoulements de couche limite au dessus desquels on retrouve une vitesse uniforme U_∞ , ce qui n'est pas notre cas : le choix de U_∞ représente donc une approximation importante de ce modèle. De plus, cette analogie n'est pas exacte quand le nombre Schmidt s'écarte de 1.

Ce modèle ne prend pas en compte la vitesse du liquide $-U_s$ normale au front de solidification, et de ce fait peut donner un paramètre convecto-diffusif supérieur à 1, ce qui n'est pas physique. Il est donc limité au cas d'un fort brassage et/ou d'une faible vitesse de solidification ($K > U_s$).

Le modèle basé sur l'analogie de transfert thermique et du transfert de masse a permis d'obtenir les variations du coefficient de ségrégation effectif pour les moyennes et faibles vitesses de solidification. Comme le modèle précédent, il ne nécessite qu'un calcul pour plusieurs conditions de solidification (U_s et k_0), mais il faut connaître D (donc le fluide utilisé) pour ajuster la diffusivité thermique utilisée dans le calcul.

Ce modèle thermique utilise cette fois une analogie exacte (contrairement à l'analogie de Colburn), qui n'est pas limitée à des cas de couche limite : il n'y a donc pas besoin d'imposer une valeur estimée de U_∞ .

Comme le modèle précédent et pour les mêmes raisons, ce modèle est limité au cas d'un fort brassage et/ou d'une faible vitesse de solidification ($K > U_s$).

Le modèle basé sur le transport d'espèces, au contraire, reste valable à faible brassage et/ou grande vitesse de solidification. Ceci fait que ce dernier modèle est le plus précis. En effet, il prend en compte la sortie du liquide à l'interface contrairement aux deux autres modèles.

Dans ce modèle, le coefficient de ségrégation thermodynamique et la vitesse de cristallisation sont des conditions indispensables au calcul : il faut donc un nouveau calcul à chaque changement des conditions de solidification.

Pour nos conditions expérimentales, les résultats des trois modèles, calculés à partir de valeurs moyennes, sont très proches des cas de mélange parfait ($k_{eff} = k_0$), quelque soit la configuration considérée. Ceci est dû au fait que les zones bien mélangées sont plus étendues que les zones moins bien mélangées. Cette valeur moyenne $k_{eff} \sim 0.3$ semble donc sous-estimée

comparée à la valeur que nous obtenons expérimentalement. Cependant, on trouve localement une bonne ségrégation vers le bord du creuset et une moins bonne ségrégation au centre. L'exploitation des résultats doit donc se faire localement, les valeurs moyennes n'étant pas représentatives de la variation de k_{eff} suivant les régions considérées.

Pour d'autres conditions, il serait nécessaire d'adapter le courant et la fréquence inducteur à la vitesse de solidification pour chaque cas considéré afin d'avoir suffisamment de turbulence pour une bonne ségrégation. Les modèles développés ici permettent ce type d'optimisation.

5.4.5 Conclusion

Nous avons donc validé notre installation expérimentale pour du silicium liquide, donc à haute température (1410°C). Nous avons développé des méthodes de contrôle thermique adaptées à la fusion et la cristallisation du silicium, en tenant compte des actionneurs électromagnétiques définis précédemment. Le prototype de laboratoire a alors permis d'étudier le phénomène de ségrégation sous un fort brassage ($V_{max} \sim 1m/s$) et pour une grande vitesse de solidification ($U_s \sim 20cm/h$). Par des analyses chimiques, nous avons montré qu'on pouvait obtenir une bonne ségrégation du phosphore ($k_{eff} \sim 0.3$ à 0.5) dans ce régime turbulent.

Sur la base des modèles numériques électromagnétiques et magnéto-hydrostatiques des chapitres précédents, nous avons étudié numériquement le brassage électromagnétique dans notre installation en 2D et en 3D. Trois types de modélisation de la ségrégation en régime turbulent ont été développés, de complexité croissante mais avec des domaines d'application de moins en moins limités. Pour nos cas expérimentaux, ces modèles donnent, en moyenne sur le front, des coefficients de ségrégation effective k_{eff} voisins du coefficient de partage thermodynamique k_0 soit 0.3 pour le phosphore et 10^{-6} pour le fer. Localement, les résultats donnés par les modèles varient en fonction de la distance à l'inducteur, avec une bonne ségrégation vers le bord et une moins bonne ségrégation au centre.

Les résultats expérimentaux donnent $k_{eff} = 0.54$ pour le phosphore, lors d'une solidification à vitesse estimée $U_s \sim 15cm/h$ et $I = 1600A$. Pour ces conditions, le modèle 3D peut donner localement jusqu'à $k_{eff} = 0.45$ loin de l'inducteur, c'est-à-dire là où nous avons prélevé les échantillons. Le modèle 2D (transport de masse) donne $k_{eff} \sim 0.4$ à 3cm du bord du creuset. La différence entre calcul et expérience peut provenir d'une mauvaise estimation de la vitesse de cristallisation expérimentale, d'une mauvaise estimation du brassage par le modèle, ou de phénomènes de déstabilisation du front non prévus par le modèle.

Ces phénomènes de croissance cellulaire pourraient également expliquer la ségrégation observée pour le Fer, qui reste beaucoup plus faible que les valeurs théoriques avec différentes intensités de brassage et différentes vitesses de solidification.

Conclusion et perspectives

Au cours de nos travaux, nous avons réalisé un prototype de laboratoire, précurseur d'un procédé pilote industriel innovant d'élaboration de silicium sous forme de ruban pour le photovoltaïque. Le prototype nous a permis d'étudier les points durs du procédé, valider les solutions techniques, et en outre d'étudier scientifiquement un domaine non couvert par les installations classiques de cristallisation de silicium. Les études techniques et scientifiques, numériques et expérimentales, ont donc été complémentaires tout au long de cette thèse :

- **Aspect technologique de la thèse**

Des calculs de dimensionnement thermique et électromagnétique ont permis la réalisation du prototype de laboratoire, ce qui nous a permis d'étudier et de régler les deux points durs identifiés au lancement du projet Asterics (développement du procédé ruban, en collaboration avec l'entreprise Apollon Solar). Ces points sont :

La rétention électromagnétique

Nous avons dimensionné le prototype du point de vue électromagnétique grâce à des calculs de modélisation numérique en diverses configurations 2D axisymétrique et 3D. La réalisation et la mise en œuvre de ce prototype ont permis de valider expérimentalement le concept de rétention électromagnétique sur de l'étain puis du silicium liquide. Cette vanne de rétention électromagnétique est totalement opérationnelle et transposable sur le procédé de tirage de ruban Asterics.

Ce système de vanne électromagnétique a d'autre part été utile à notre étude scientifique de la ségrégation (projet Gensi, dans le cadre de l'institut Carnot « Energies du Futur »), en permettant de cristalliser une fine couche de silicium dans un creuset fendu à sa base (fente parallèle au fond du creuset) et en évacuant ensuite le liquide restant.

Le contrôle thermique de la cristallisation

Que nous avons mis au point grâce à un contrôle précis de la régulation thermique du système de chauffage résistif, à travers le calcul numérique des puissances thermiques injectés dans ce système de chauffage par l'induction électromagnétique. Le calcul thermique a également permis de démontrer la faisabilité du procédé ruban dans des conditions voisines de celles de notre prototype, mais avec tirage.

Après optimisation du prototype, le contrôle thermique de la fusion et la cristallisation du silicium est opérationnel en présence et indépendamment du système électromagnétique. Le contrôle précis de l'induction électromagnétique (pilotage de l'intensité, mesure de la fréquence) nous a permis de pouvoir déclencher et arrêter la cristallisation d'une couche homogène de 2mm de silicium en 2mn.

- **Aspect scientifique de la thèse**

Nous avons étudié dans notre prototype la ségrégation des impuretés lors de la solidification directionnelle du silicium, avec des vitesses de cristallisation de l'ordre de 15 à 20cm/h, ce qui constitue une nouveauté en croissance cristalline, dont les vitesses de croissance se situent habituellement entre 1 et 2cm/h. La création d'un fort brassage grâce à l'action des forces électromagnétiques créées par le système d'induction électromagnétique, conduit à un

écoulement turbulent du silicium liquide. Ceci empêche l'accumulation des impuretés à l'interface liquide/solide pendant la cristallisation en les homogénéisant dans le fluide. On obtient ainsi une meilleure ségrégation. Ce phénomène a été étudié :

Expérimentalement : grâce à des tests de fusion et cristallisation de lingots et de couches de silicium dans le prototype de laboratoire, à partir d'une charge de composition connue en Phosphore, Fer, Aluminium et Cuivre. L'induction électromagnétique, fonctionne à une fréquence entre 25 et 30kHz et un courant entre 1000 et 1600A pendant nos expériences, ce qui correspond à un régime turbulent, de vitesse estimée autour de 1m/s d'après nos calculs en axisymétrique. L'analyse d'échantillons prélevés sur ces couches et lingots de silicium montre qu'avec ce brassage, pour une vitesse de cristallisation est estimée à 15cm/h, nous obtenons un coefficient de partage effectif $k_{eff}=0,54$ pour le phosphore, une des impuretés qui ségrégent mal dans le silicium en général.

Numériquement : grâce à la modélisation du brassage électromagnétique dans notre installation en 2D axisymétrique et en 3D (calculs électromagnétiques et magnéto-hydrodynamiques) à travers le développement de trois modèles de calcul du coefficient de partage effectif k_{eff} en régime turbulent et pour les mêmes conditions expérimentales. Les valeurs de coefficient effectif de partage k_{eff} données par les modèles sont localement voisins de nos résultats obtenus à partir de l'analyse chimique des échantillons cristallisé.

Les travaux réalisés ont conduit à la mise en place du procédé pilote chez l'industriel Cyberstar. Les perspectives envisagées sont les suivantes :

Pour le pilote industriel du procédé ruban

- Réalisation des tests de tirage de ruban de silicium, au moyen du pilote en cours de réalisation par extrapolation de notre prototype ;
- Prise en compte les problématiques liées à l'adhérence du ruban de silicium au substrat utilisé. Nous proposons notamment d'intégrer un système d'injection de gaz sous le ruban, dont il faudra également tenir compte pour le contrôle thermique de la cristallisation ;
- Mise en place d'un moyen de nettoyage mécanique ou automatique de la fente du creuset durant les expériences, afin d'éviter le dépôt d'oxyde ;

Pour l'aspect scientifique

- Mesure des vitesses de brassage du silicium : les vitesses relatives à notre procédé de laboratoire ont été estimées à partir de calculs numériques. Mesurer la vitesse réelle permettrait de s'affranchir des incertitudes pour l'exploitation des résultats de ségrégation qui en dépendent directement.
- Mesure précise de la vitesse de cristallisation : dans le prototype de laboratoire, on dispose des fréquences, qui varient en fonction de la quantité solidifiée, mais la configuration de la zone solide intervient aussi. Les estimations a posteriori sont elles aussi difficiles à cause des incertitudes sur la vidange du liquide restant, et sur l'instant du début de cristallisation en chaque point. Une mesure plus précise est capitale pour la ségrégation, qui dépend beaucoup de cette vitesse de cristallisation.

- Etude de la qualité cristalline du silicium cristallisé : orientation et taille des grains, évolution vers l'obtention de grains plus gros sous brassage électromagnétique. Ce point risque de devenir crucial pour l'obtention de rubans fins à grande vitesse de tirage.
- Intégrer nos modèles de calculs de la ségrégation avec transport d'espèces à un calcul de solidification complet, prenant en compte les effets de déstabilisation du front de solidification, afin de mieux prédire les cas de solidification rapide sous fort brassage électromagnétique, qui pourraient apparaître prochainement dans les procédés de purification (donc, sans souci de qualité cristalline).

L'ensemble de ces travaux méritent, de notre point de vue, aussi bien des études scientifiques plus poussées (ségrégation rapide, qualité cristalline), que des développements technologiques (procédé ruban). La synergie entre ces études procédé et ces études scientifiques devient évidente si on considère les difficultés techniques de mise en œuvre (hautes températures, vitesses rapides, contrôle thermique fin), qui justifient pleinement de futurs programmes en collaboration recherche-industrie.

Bibliographie

- [Ai *et al.*, 2004] AI B., SHEN H., BAN Q., WANG X., LIANG Z. et LIAO X.: Preparation and characterization of Si sheets by renewed SSP technique. *Journal of Crystal Growth*, Vol.270, p. 446–454, 2004.
- [Alemany *et al.*, 2002] ALEMANY C., TRASSY C. LI K.-I. et DELANNOY, Y.: Refining of metallurgical-grade silicon by inductive plasma. *Solar energy Material and Solar Cells*, Vol.72, p.69–75, 2002.
- [Amick *et al.*,1985] AMICK J. A., DISMUCKES J.P., FRANCIS R.W., HUNT P., RAVISHANKAR P.S., SCHNEIDER M., MATTHEI K., SYLVAIN R., LARSEN K. et SCHEI A.: Improved Hight purity arc furnace silicon for solar cells. *J. Electrochem. Soc.: Electrochemical science and technology*, 2, Vol. 132, 1985.
- [ANSYS, 2009] ANSYS Inc. *ANSYS FLUENT 12.0 Theory Guide*, 2009.
- [Ashry, 2009] EL-ASHRY M. (chairman): REN 21 Renewables global status report, 2009 update. 2009. Disponible sur:
http://www.ren21.net/pdf/RE_GSR_2009_Update.pdf
- [Bagnall *et Boreland*, 2008] BAGNALL D. M. et BORELAND M.: Photovoltaic technologies. *Energy Policy*, Vol. 36, p. 4390–4396, 2008.
- [Bathey *et Cretella*, 1982] BATHEY B. R. et CRETELLA M. C.: Solar-grade silicon. *Journal of materials science*, Vol. 17, p. 3077–3096, 1982.
- [Becquerel, 1839] BECQUEREL A. E. *Comt. Rend. Acad. Sci.*, vol.9 p.561, 1839.
- [Bell *et et Kalejs*, 1998] BELL R. O. et KALEJS J. P.: Growth of silicon sheets for photovoltaic applications. *J. Mater. Res.*, No. 10, Vol. 13, 1998.
- [Bianchi *et al.*] BIANCHI A. M., FAUTRELLE Y. et ETAY J. *Transferts thermiques*. Presses polytechniques et universitaires romandes, 2004.
- [Bildl *et al.*,1984] BILDLE E., DIETL J., BAUEREGER, R. et SEIFERT D.: *US Patent 4,588,571*, 1984.
- [Bobin *et al.*, 2001] BOBIN J.-L., NIFENECKER H. et STEPHAN C.: *L'énergie dans le monde: bilan et perspectives*. EDP Sciences, 2001. ISBN 2-86883-503-1
- [Bobin *et al.*, 2005] Bobin J. L., Huffer E. et Nifenecke H.: *L'énergie de demain: Technique, Environnement, Economie*, EDP Sciences, 2005. ISBN 2-86883-771-9
- [BP, 2009] BRITISH PETROLUM: *BP Statistical Review of World Energy*. Disponible sur:
<http://www.bp.com/statisticalreview>

- [Brodkey et Hershey, 2005] BRODKEY R. S. et HERSHEY H. C.: *Transport phenomena, a unified approach*. McGraw-Hill Chemical Engineering Series, 1988.
- [Burton *et al.*, 1953] BURTON J. A., PRIM R. C. et SLICHTER W. P.: *J. Chemical Physics*, 428, p. 21, 1953.
- [Chalmers, 1967] CHALMERS B.: *Principles of solidification*. New York, London, Sydney, John Wiley & sons, Inc., 319p, 1967.
- [Chapin, 1954] CHAPIN D.M., FULLER C. S. et PEARSON G.L.: A new silicon p-n junction photocell for converting solar radiation into electrical power. *Journal of Applied Phys.*, Vol. 25, p. 676, 1954.
- [Chiaro *et al.*, 2008] del CHIARO B., PAYNE S. et DUTZIK T.: *On the rise Solar thermal power and the fight against global warming Environment*. America Research and Policy Center, 2008.
- [Chu *et al.*, 1978] CHU T. L., van der LEEDEN G. A. et YOO H. I.: Purification and Characterization of Metallurgical silicon. *J. Electrochem. Soc.: SOLID-STATE SCIENCE AND TECHNOLOGY*, Vol. 125, p. 661–665, 1978.
- [Ciszek, 1984] CISZEK T. F.: Techniques for the crystal growth of silicon ingots and ribbons. *Journal of Crystal growth*, Vol. 66, p. 655–672, 1984.
- [Claverie, 2008] CLAVERIE A.: *Photovoltaic technology status and prospects* : IEA - PVPS Annual report 2008, p.56, 2008. Disponible sur: <http://www.iea-pvps.org/>
- [Comsol, 2007] COMSOL ACDC user's guide: *Review of electromagnetics*. 2007.
- [Cordier, 2007] CORDIER D. *Cours de physique Electromagnétisme 2. Phénomènes d'induction et ondes électromagnétiques*. Dunod, 316p, 2007.
- [Coriell, 1984] CORIELL S. R., MCFADDEN G.B. et BOISVERT R. F.: Effect of a Forced Couette Flow on Coupled Convective and Morphological Instabilities during Unidirectional Solidification. *J. of Cryst. Growth*, 69, p. 15, 1984.
- [Dash, 1959] DASH W.C. Growth of silicon crystals free from dislocations: *J of Appl. Phy.*, n°4, Vol. 30, p. 459–474, 1959.
- [Davis *et al.*, 1980] DAVIS J. R. JR., ROHATGI A., HOPKINS R. H., BLAIS P. D., CHOUDHURY P. R., MCCORMICK J. R. et MOLLENKOPF H. C.: Impurities in Silicon Solar Cells. *IEEE TRANSACTIONS ON ELECTRON DEVICES*, n° 4, Vol. ED-27, 1980.
- [Degoulange, 2008] DEGOULANGE J. : *Purification et caractérisations physico-chimiques et électriques de silicium d'origine métallurgique destiné à la conversion photovoltaïque*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, 2008.
- [Degoulange *et al.*, 2008] DEGOULANGE J., PERICHAUD I., TRASSY C. et MARTINUZZI S.: Multicrystalline silicon wafers prepared from upgraded. *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 92, p. 1269–1273, 2008.

[Delannoy *et al.*, 2002a] DELANNOY Y., PELLETIER D., ETAY J. et FAUTRELLE Y. : Stirring and mass transfer in a monophasic induction system. *5th int.conf. Fund. & Appl. MHD*, Ramatuelle, France, p II-39-II-45, 2002.

[Delannoy *et al.*, 2002b] DELANNOY Y., ALEMANY C., LI K. I., PROULX P. et TRASSY C.: Plasma-refining process to provide solar grade silicon. *Solar energy Material and solar cells*, Vol. 72, p. 1–4, 2002.

[Department Of Energy, 2008] Department Of Energy: *International statistics-Energy Information Administration* [En ligne], 2008. Disponible sur :
- <http://tonto.eia.doe.gov/cfapps/ipdbproject/IEDIndex3.cfm?tid=5&pid=54&aid=2>

[Dosaj et Hunt, 1981] DOSAJ V.D. et HUNT L. P. : *US Patent 4,247,528*, 1981.

[Duffar, 2009] DUFFAR T. : Soliditice [En ligne]. 2009. Disponible sur :
<http://soliditice.inpg.fr/>

[Ehret *et al.*, 1995] EHRET E., ALLAIS V., VALLARD J.-P. et LAUGIER A.: Influence of extended defects and native impurities on external gettering in polycrystalline silicon. *Materials Science and Engineering B*, Vol. 34, 210–215, 1995.

[Einhaus, 2004] EINHAUS R. LISSALDE F., et RIVAT P.: Crucible for a device used for the production of a block of crystalline material, and production method”, *International Patent, No WO2004/094704*, 2004.

[EPIA, 2010] EPIA-European Photovoltaic Industry Association. *Global market outlook for photovoltaics until 2014*, Mai 2010. Disponible sur :
http://www.epia.org/fileadmin/EPIA_docs/public/Global_Market_Outlook_for_Photovoltaics_until_2014.pdf

[Ernst et Garnier, 1989] ERNST R. ET GARNIER C. : Mesure numérique des caractéristiques d'un circuit oscillant pour le chauffage à induction. *Revue général d'électricité*, Vol. 8, p. 1–8, 1989.

[EurObserver, 2007] EurObserver : *3.4GWp installed in european union* Baromètre photovoltaïque-Le journal des énergies renouvelables, N°178, 2007. Disponible sur :
http://www.energies-renouvelables.org/observ-er/stat_baro/observ/baro178.pdf

[Rabensteiner , 2007] RABENSTEINER G. (dir.): European Solar Thermal Industry Federation *Solar thermal markets in europe (Trends and market statistics 2006)*, Juin 2007.

[Eyer *et al.*, 2001] EYER A., HAAS F., KIELIBA T., OSSWALD D., REBER S., ZIMMERMANN W. et WARTA W.: Crystalline silicon thin-film (CSiTF) solar cells on SSP and on ceramic substrates *Journal of Crystal Growth*, Vol.225, p. 340–347, 2001.

[Flynn et Bradford, 2006] FLYNN H. et BRADFORD T.: *Polysilicon supply, demand and implications for the PV industry* . Prometheus Institut, 2006.

Gale W. F. et Totemeier T. C. Smithells Metal reference book, 8th edition, *General physical properties*, p. 14-8, 2004, ISBN 0-7506-7509-8.

[Gampel, 1961] GAMPEL W.V.: *US Patent 2,972,521*, 1961.

[Gasaparini et Rota, 1983] GASAPARINI M. et ROTA F. Crystal growth techniques and segregation effects in solar grade silicon. *Material chemistry and physics*, 9, p. 79-86, 1983.

[Geiger et Hahn, 2003] GEIGER G et HAHN G.: Record Efficiencies for EFG and String Ribbon Solar Cells *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, Vol.11, p. 341–346, 2003 (DOI: 10.1002/pip.498).

[Geun et al., 2006] GEUN H. L., CHANG K. R. et KOENG S. L.: A study on the fabrication of polycrystalline Si wafer by direct casting for solar cell substrate. *Solar Energy*, Vol.80 p.220–225, 2006.

[Goetzberger, 2003] GOETZBERGER A.: Schock christopher Hebling et Hans-Werner Photovoltaic Materials, history, status and outlook. *Materials Science and Engineering*, 2003.

[Goodfellow, 2009] GOODFELLOW: Alumine (Al₂O₃) Material Information [En ligne], 2009-2010. Disponible sur:
www.goodfellowusa.com/A/Aluminum.html

[Green, 2005] GREEN M. A.: Silicon Photovoltaic modules: a brief History of the first 50 years. *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, Vol.13 p.447–455, 2005.

[Green, 2009] GREEN M. A.: Polycrystalline silicon on glass for thin-film solar cells. *Appl Phys A*, Vol. 96, p. 153–159, 2009.

[Green, 2007] GREEN M. A.: Thin-film solar cells: review of materials, technologies and commercial status. *J Mater Sci: Mater Electron.*, Vol. 18, S15–S19, 2007.

[Hahn et Scönecker, 2004] HAHN G. et SCÖNECKER A.: New crystalline silicon ribbon materials for photovoltaics. *Journal of Physics Condensed Matter*, Vol. 16, R1615-R1648, 2004.

[Hammond et Sykulski 1994] HAMMOND P. et SYKULSKI J. K.: *Engineering Electromagnetism Physical Processes and Computation*. Oxford University Press, 1994.

[Hanoka, 2001] HANOKA J. I.: An overview of silicon ribbon growth technology *Solar Energy Materials & Solar Cells*, Vol.65, p. 231-237, 2001.

[Harada et al., 1995] HARADA K., TANAKA H., MATSUBARA J., SHIMANUKI Y. et FURUYA, H. : Origins of metal impurities in single crystal Czochralski silicon. *Journal of crystal growth*, 154, p. 47-53, 1995.

[Hausonne et al., 2005] HAUSONNE J. M., BOWEN P., BARTON J. L. et CARRY C. P. : *Traité des matériaux; Céramiques et verres*. Presses polytechniques et universitaires Romandes, 2005.

[Hirshman et al., 2007] HIRSHMAN W. P., HERING G. et SCHMELA M.: *Gigawatts – the measure of things to come*. Photon International, mars 2007.

[Hoffmann, 2006a] HOFFMANN W.: PV solar electricity industry: Market growth and perspective *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 2006, 90 p. 3285–3311.

[Hoffmann, 2006b] HOFFMANN V.: *Chances and obstacles of silicon feedstock purity for solar cells from the Q-cells perspective*, Conférence Rio 2006.

[Hofstetter *et al.*, 2009] HOFSTETTER J., LELIÈVRE J.F., DEL CAÑIZO C. et LUQUE A. : Acceptable contamination levels in solar grade silicon: From feedstock to solar cell. *Materials Science and Engineering B*, Vol. 159–160, p. 299–304, 2009.

[Hopkins et Rohatgi, 1986] HOPKINS R. H. et ROHATGI A. Impurity effects in silicon for high efficiency solar cell. *Journal of crystal growth*, 75 p. 67–79, 1986.

[Hurle et Chedzey, 1966] HURLE D. T. J. ET CHEDZEY H. A.: Avoidance of growth-strae in semiconductor and metal crystals grown by zone melting techniques. *Nature*, Vol. 210 p. 933–934, 1966.

[Hurle, 1967] HURLE D.T.J.: *Crystal Growth*. Ed. H.S. Peiser (Per-gamon. Oxford, 1967) p. 659.

[Nowak , 2008] NOWAK S. (chairman): PVPS annual report 2008. Disponible sur : www.iea-pvps.org.

[Istratov A. *et al.*, 2003] ISTRATOV A. A., BUONASSISI T., MCDONALD R. J., SCHMIDT A. R., SCHMIDLER R., RAND J. A., KALEJS J. P. et WEBER E. R.: J. Appl. Phys., Vol. 94, p. 5552, 2003.

[Istratov A. *et al.*, 2006] ISTRATOV A. A., BUONASSISI T., PICKETT M.D., HEUER M. et WEBER E.R.: Control of metal impurities in “dirty” multicrystalline silicon for solar cells *Materials Science and Engineering B*, , 134 p. 282–286, 2006.

[Istratov A. *et al.*, 2000] ISTRATOV A. A., HIESLMAIR H. et WEBER E.R.: Iron contamination in silicon technology. *Appl. Phys. A*, Vol. 70, p. 489-534, 2000.

[Jester, 2002] JESTER T. L.: Crystalline Silicon Manufacturing Progress. *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, 10, p. 99–106, 2002 (DOI: 10.1002/pip.414).

[Juquois et Chabot, 2007] JUQUOIS F. et CHABOT B. : Le marché du solaire photovoltaïque en france et dans le monde: État des lieux, rentabilité financière des systèmes, *La lettre ADEME & vous - Stratégie & études* N° 3, 12 juin 2007 .

[Kalejs, 2002] KALEJS J. P. Silicon ribbons and foilsF - state of the art. *Solar Energy Materials & Solar Cells*, Vol.72, p. 139–153, 2002.

[Kazmerski, 2006] KAZMERSKI L. L. Solar photovoltaics R&D at the tipping point:A 2005 technology overview. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, Vol. 150, p. 105–135, 2006.

[Khattak *et al.* 2001] KHATTAK C. P., SCHMID D. B. et JOYCE F.: Production of solar grade (SoG) silicon by refining liquid metallurgical grade (MG) silicon: Final Report, April 19 2001.

[Kurz et Fisher, 1992] KURZ W. et FISHER D.J.: *Fundamentals of solidification* 3rd ed. Trans Tech Publications, 1992, ISBN 0-87849-522-3.

[Lange et Schwirtlich, 1990] LANGE H et SCHWIRTLICH I.: Ribon Growth on Substrate (RGS) A new Approach to high Speed Growth of Silicon Ribbons for Photovoltaics. *Journal of Crystal Growth*, 104, p. 108, 1990.

[Launder et Spalding, 1972] LAUNDER B. E. ET SPALDING D. B. *Lectures in Mathematical Models of Turbulence*. London, England : Academic Press, 1972.

[Loyen, 2008a] LOYEN R. (Del. G). ENERPLAN-Association Professionnelle de l'Energie Solaire. *L'actualité du solaire en France: état des lieux et perspectives*. Juin 2008. Disponible sur :
http://www.enerplan.asso.fr/index.php?option=com_content&task=view&id=243&Itemid=202

[Loyen, 2008b] LOYEN R. (Del. G). ENERPLAN-Association professionnelle de l'énergie solaire. *Le photovoltaïque: un marché à très fort potentiel pour positionner la France dans les leaders mondiaux du secteur. Panorama du photovoltaïque en France et prospective 2020*, Octobre 2008. Disponible sur :
http://www.solagora.fr/downloads/Synthese_Etude_PV_Oct2008.pdf

[Luque et al., 2003] LUQUE A. et HEGEDUS S.: A.: Status, Trends, Challenges and the Bright Future of Solar Electricity from Photovoltaics. *Handbook of Photovoltaic Science and Engineering*, p. 1–43, 2003, ISBN 0-471-49196-9.

[Mackintosh B. et al. 2006.] MACKINTOSH B., SEIDL A., OUELLETTE M., BATHEY B., YATES D. et KALEJS J.: Large silicon crystal hollow-tube growth by the edge-defined film-fed growth (EFG) method. *Journal of Crystal Growth*, Vol. 287, p. 428–432, 2006.

[Mauk, 2003] MAUK M. G.: Silicon Solar Cells: Physical Metallurgy Principles. *Physical metallurgy*, p. 38–42, 2003.

[Maycock, 2005] MAYCOCK P.: *PV news: World Solar PV Market Continues Explosive Growth*, 2005. Disponible sur:
www.re-focus.net

[McHugo et al., 1997] MCHUGO S.A., HIESLMAIR H. et WEBER E.R. Gettering of metallic impurities in photovoltaic silicon. *Appl. Phys. A*, Vol. 64, p. 127–137, 1997.

[Mabel , 2000] MABEL M. : *Ségrégation par solidification en présence de convection naturelle ou forcée*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble 2000.

[Mitric, 2006] MITRIC A. : *Effet d'un champ magnétique alternatif sur la solidification bridgman des alliages semi-conducteurs concentrés*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble 2006.

[Möller H.J. et al., 2005] MÖLLER H.J., FUNKE C., RINIO M. et SCHOLZ S. : Multicrystalline silicon for solar cells . *Thin Solid Films*, , Vol. 487, p. 179– 187, 2005.

[Moncomble, 2009] MONCOMBLE J. E. : Conseil Français de l'Energie *Conséquences de la crise sur le secteur de l'Energie* [En ligne] World Energy Council, 2009. Disponible sur :
http://www.worldenergy.org/documents/crise_document.pdf

[Moreau, 1990] MOREAU R. : *Magnetohydrodynamics*. Kluwer Academic Publishers, 1990.

[Morita *et al.*, 2003] MORITA K., KONGOLI F., THOMAS B.G., et SAWAMIPHAKE K.: Effects of Ca addition on the thermodynamic properties of P and B in molten silicon alloys. *Proceedings of Modeling, Control and Optimization in Ferrous and Nonferrous Industry Symposium, Minerals, Metals & Mater. Soc.*, Warrendale, PA, USA. - p. 49, 2003.

[Mukashev *et al.*, 2009] MUKASHEV B. N., ABDULLIN K. A., TAMENDAROV M. F., TURMAGAMBETOV T. S., BEKETOV B. A., PAGE M. R. et KLINE D. M.: A metallurgical route to produce upgraded silicon and monosilane. *Solar Energy Materials & Solar Cells*, Vol. 93, p. 1785–1791, 2009.

[Müller *et al.*, 2006] MÜLLER A., GHOSH R., SONNENSCHNEIDER P., WODITSCH P.: Silicon for photovoltaic applications. *Materials Science and Engineering B*, Vol. 134, p. 257–262, 2006.

{Nakayashiki *et al.* 2006] NAKAYASHIKI K., ROUSAVILLE B., YELUNDUR V., KIM D. S., ROHATGI A., CLARK-PHELPS R. et HANOKA J.: I.: Fabrication and analysis of high-efficiency String Ribbon Si solar cells. *Solid-State Electronics*, Vol 50, p. 1406–1412, 2006.

[Norman *et al.*, 1985] NORMAN C.E., ABSI E.M. et THOMAS R.E. : *Can. J. Phys.*, Vol. 63, p. 859, 1985.

Observatoire de l'Energie. *Les énergies renouvelables en France 1970-2005*. Ed. Direction Générale de l'Energie et des Matières Premières (Ministère français de l'économie, des finances et de l'industrie), 2006.- 44 p. Localisation : CDAT 14365

<http://www.livrespourtous.com/e-books/detail/Les-energies-renouvelables-en-France-1970-2005/onecat/0.html>

[Perrier *et al.*, 2003] PERRIER D., FAUTRELLE Y. et ETAY J. : 4th Int. Conference on Electromagnetic Processing of Materials, Lyon (France) , p. 279-283, 2003.

Photowatt International, [En ligne], 2007. Disponible sur : www.photowatt.com

[Pizzini, 2009] PIZZINI S.: Bulk solar grade silicon: how chemistry and physics play to get a benevolent microstructured material. *Appl Phys A*, Vol. 96, p. 171–188, 2009.

[Pizzini et Calligaris, 1984] PIZZINI S. et CALLIGARIS C. : *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 131, p. 2128, 1984.

[Pizzini *et al.*, 2005] PIZZINI S., ACCIARRI M. et BINETTI S. : From electronic grade to solar grade silicon: chances and challenges in photovoltaics. *phys. stat. sol. (a)*, n° 15, 202, p. 2928–2942, 2005 (DOI 10.1002/pssa.200521104)

[Pizzini, 1982] PIZZINI S.: Solar grade silicon as a potential candidate material for low cost terrestrial solar cells. *Sol Energy Mater.*, Vol. 6, p. 253–297, 1982.

[Planck, 2005] PLANCK M. : *Electromagnetisme*. Ed. Jacques Gabay, 2005.

- [PROMES, 2009] PROMES-Laboratoire des Procédés Matériaux et Energie Solaire, [En ligne], 2000. Disponible sur : <http://www.promes.cnrs.fr/MOYENS/Concentrateurs/concentrateur1.htm>
- [Ravi, 1977] RAVI K.V.: The Growth of EFG Silicon Ribbons. *Journal of Crystal Growth*, Vol.39, p. 1—16, 1977.
- [Rea, 1981] REA S. N.: Czochralski silicon pull rate limits. *Journal of Crystal Growth*. Vol. 54, p. 267—274, 1981.
- [Rubesin et Inouye, 1973] RUBESIN M. W. et INOUE M. *Handbook of heat transfert- Forced convection, external flows, section 8*. Mc Graw-Hill, 1973.
- [Sachdeva et al., 2001] SACHDEVA. R., ISTRATOV A. A. et WEBER E. R.: Recombination activity of copper in silicon. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 2001, Vol. 79, p. 18.
- [SARK et al., 2007] van SARK W.G., BRANDSEN G.W., FLEUSTER M. et HEKKERT M. P.: Analysis of the silicon market: Will thin films profit? *Energy Policy*, Vol. 35, p. 3121—3125, 2007.
- [Scheil et Metallk, 1942] SCHEIL E. et METALLK Z. Vol. 34, P. 70, 1942.
- [Seidenstickers et Hopkins, 1980] SEIDENSTICKERS R.G. et HOPKINS R.H.: Silicon Ribbon Growth by the Dendritic Web Process. *Journal of Crystal Growth*, Vol.50, p. 221—235, 1980.
- [Seren, 2007] SEREN S.: *Low Cost Solar Cells from Fast Grown Silicon Ribbon Materials*. - Thèse Universität Konstanz 2007. Disponible sur: <http://www.ub.uni-konstanz.de/kops/volltexte/2007/3312/>
- [Shirasawa, 2001] SHIRASAWA K.: Mass Production Technology for Multicrystalline Si Solar cells. *Progress in Photovoltaics: research and application*, Vol. 10, p. 107—118, 2001.
- [Siemer, 2007] SIEMER J.: Customers regain the trump card: Market survey on solar modules 2007. *Photon International*, p. 110—139, 2007.
- [Stefanescu, 2002] STEFANESCU D. M.: *Science and Engineering of casting solidification*. Kluwer Academic/ Premium publishers, 2002.
- [Stelian, 2005] STELIAN C.: *Convection thermo-solutale et ségrégation chimique lors de la solidification Bridgman d'alliages semiconducteurs concentrés sous champ externes*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble 2005.
- [Surek, 2005] SUREK T.: Crystal growth and materials research in photovoltaics: progress and challenges. *Journal of Crystal Growth*, Vol. 275, p. 292—304, 2005.
- Total. Les énergies fossiles [En ligne], 2009. Disponible sur : <http://www.planete-energies.com/contenu/energie/consommation/fossiles.html>

[Trégouët, 2009] Trégouët B. (ed.) : Commissariat général au développement durable - Service de l'observation et des statistiques. *Chiffres clés de l'énergie* édition 2009. Disponible sur :

http://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/Repere_energie_2009_BAT_01-12_cle05161b.pdf

et sur

<http://www.developpement-durable.gouv.fr/Donnees-de-reference,13355.html>

[Vogel et Cantor, 1977] VOGEL B. et CANTOR A.: Dendritic Solidification and Fluid Flow. *J. of Cryst. Growth*, Vol. 41, p. 109, 1977.

[Shockley et Read] SHOCKLEY W. et READ W. T.: Statistics of the recombinations of holes and electrons. *Phys. Rev.*, Vol. 87, p. 835, 1952.

[Wang *et al.*, 2008] WANG T. Y., LIN Y.C., TAI C.Y., SIVAKUMAR R., RAI D. K. et LAN C. W.: A novel approach for recycling of kerf loss silicon from cutting slurry waste for solar cell applications. *Journal of crystal Growth*, Vol. 310, p.3403–3406, 2008.

[Wautelet, 2001] WAUTELET M. : *Sciences Technologies et Société: Questions et réponses pour illustrer les cours de science*, De Boek, 2001.

[Wilson, 1978] WILSON L. O.: On interpreting a quantity in the Burton, Prim and Slichter equation as a diffusion boundary layer thickness. *J.Cryst.Growth*, 44 p. 247-250, 1978.

[Witt *et al.*, 2001] WITT C. E., MITCHELL R. L., THOMAS H. P. et SYMKO-DAVIES M.: Terrestrial photovoltaic technologies update. *Renewable Energy*, Vol. 23, p. 349–353, 2001.

[Woditsch et Koch, 2002] WODITSCH P. et KOCH W.: Solar grade silicon feedstock supply for PV industry *Solar Energy Materials & Solar Cells*, Vol. 72, p. 11–26, 2002.

[Wu *et al.*, 2008] WU B., STODDARD N., MA R. et CLARK R.: Bulk multicrystalline silicon growth for photovoltaic (PV) application. *Journal of Crystal Growth*, Vol. 310, p. 2178–2184, 2008.

[Yuge *et al.*, 2001] YUGE N., ABE M., HANAZAWA K., BABA H., NAKAMURA N., KATO Y., SAKAGUCHI Y., HIWASA S., ARATANI F.: Purification of metallurgical grade silicon up to solar grade. *Progress in photovoltaics: research and application*, Vol. 9, p. 203–209, 2001.

[Zahedi, 2006] ZAHEDI A.: Solar photovoltaic (PV) energy; latest developments in the building integ

Annexes

**Annexe A. Etude bibliographique sur le mouillage du silicium
sur différents substrats et méthode de sustentation par film de gaz
ou lévitation aérodynamique**

A.1. Introduction

Dans le cadre de la production de cellules solaires à faible coût, il est intéressant de trouver des creusets ou revêtement de creusets qui n'adhèrent pas au silicium lors de la cristallisation afin qu'on puisse facilement séparer le lingot (ou la feuille) du creuset (ou du substrat) sans trop de dommages. Ceci permettrait de faire des économies de creuset en se débarrassant des problèmes d'adhérence et également de se débarrasser de certains problèmes de pollution par le creuset qui est généralement en graphite ou en quartz. Dans le cadre de notre procédé pilote de cristallisation, il est nécessaire de disposer d'un substrat qui ne colle pas le silicium si on veut tirer le ruban sans incidents.

Dans les bibliographies que nous avons consultées, les matériaux testés comme substrats sont surtout le nitrure de bore (BN), le nitrure de silicium (Si_3N_4), le quartz (SiO_2).

A.2. Mouillage et angle de contact

L'angle de contact est une valeur qui se mesure entre la tangente au point de contact de la goutte et l'horizontal formée par le substrat (Figure A 1). Cet angle permet d'avoir des informations sur le mouillage (tendance à s'étaler ou pas) et la capacité de la goutte à adhérer au substrat. La goutte est considérée comme mouillante si $92^\circ < \theta < 180^\circ$ et non mouillante si $0^\circ < \theta < 90^\circ$. L'angle de contact est théoriquement obtenu à partir des énergies de surface grâce à l'équation de Young (1).

$$\cos(\theta) = \frac{\sigma_{sg} - \sigma_{sl}}{\sigma_{lg}} \quad (1), (2)$$

Où θ est l'angle de mouillage, σ_{sg} , σ_{sl} et σ_{lg} sont les énergies de surface solide-vapeur, solide-liquide et liquide-vapeur.

La tension de surface est donnée par l'équation de Young-Laplace

$$\gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \Delta P \quad (1)$$

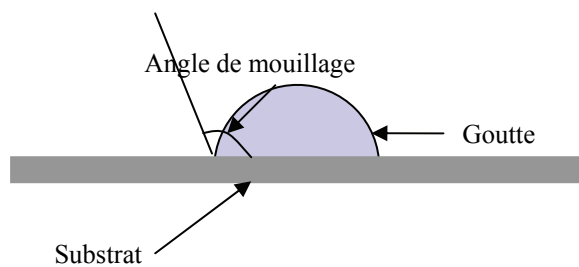


Figure A 2 : Schéma illustrant l'angle de contact d'une goutte posée sur un substrat.

Il existe une relation entre l'angle de contact et l'énergie d'adhésion à la surface, équation de Young-Dupré (2), (3)

$$w_{ad} = \gamma_{lv} (1 + \cos \theta)$$

A.3. Techniques de mesure de l'angle de contact

Il existe plusieurs méthodes de mesure de l'angle de mouillage ou de la tension de surface. Les techniques « capillary rise » et « sessile drop » sont celles qui permettent de

mesurer simultanément l'angle de mouillage et la tension de surface (1) La méthode sessile drop permet des mesures à haute température. Elle permet donc de mesurer l'angle de contact liquide sur substrat. Elle est basée sur la comparaison du profil calculé par l'équation de Young-Laplace au profil réel de la goutte (3).

Principe

L'appareil se compose d'une caméra digitale reliée à un moniteur pour enregistrer les images de la goutte durant l'expérience, d'un système optique, d'un four et d'une lampe pour éclairer l'intérieur du four (Figure A 2).

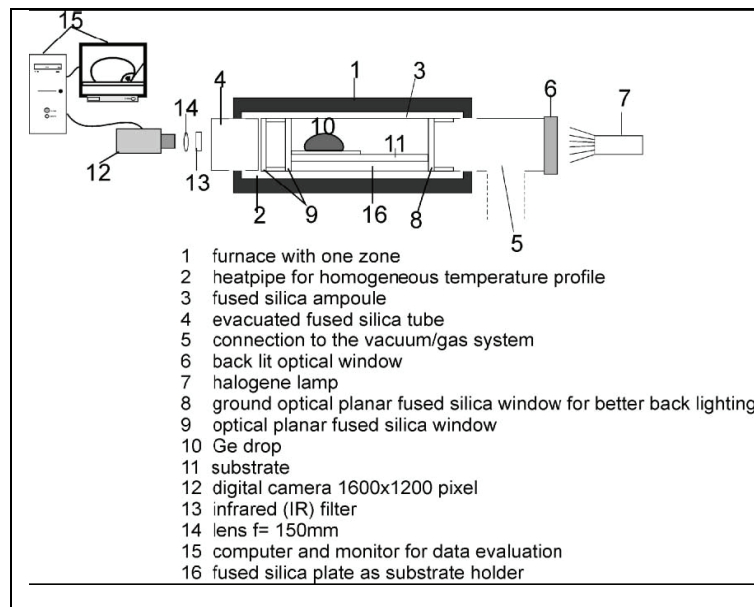


Figure A 3 : Schéma de principe du sessile drop method (2)

L'échantillon de forme cylindrique est placé dans une ampoule qui est ensuite introduite dans le four. L'échantillon est chauffé jusqu'à 1080°K environ. La température est ensuite augmentée par palier de 10 ou 20° jusqu'à la température de fusion et puis jusqu'à une valeur maximale. Des images de la goutte sont prises toutes les 5 à 15 minutes afin de suivre la variation de l'angle de contact et de la tension de surface à partir de la forme de la goutte. La tension de surface est calculée comme suit :

$$\gamma = \frac{\rho g}{q} R_0^2$$

Où R_0 est le rayon au sommet de la goutte, q la courbure de la goutte au contact avec le substrat, ρ la densité et g la gravité (1).

A.4. Quelques matériaux pouvant servir de support

A.4.1. Le nitrure de Bore

Le nitrure de bore semble être le matériau qui présente la plus grande valeur d'angle de contact en présence de Silicium liquide.

Dans le cadre de leur procédé de fabrication de feuilles de silicium ($100 \times 100 \times 0.5 \text{ mm}^3$), le « spinning method » Hide *et. al* (4) ont montré que parmi une large gamme de substrats testés, le nitrure de Bore (BN) présente la plus grande valeur d'angle de contact (122.5°). Cette mesure a été effectuée en fondant un échantillon compressé sous

forme cylindrique de 10mm de diamètre et 5mm de long (densité > 90%) par chauffage résistive sur le substrat considéré (dans un four sous atmosphère de gaz inerte). Ils n'observent ni mouillage, ni adhésion de l'échantillon de silicium solidifié sur le substrat de BN mais constatent une pollution du silicium au bore qui est assez importante, $10^{19}/cm^3$ (4). D'après leurs résultats, d'autres composés du Bore (B_4C et TiB_2) présentent également un grand angle de mouillage, mais le dopage au bore reste important d'où la nécessité de trouver un autre type de substrat.

Plus récemment, Yuan *et. al* (5), ont mené le même type de recherches en effectuant des mesures par « sessile drop method » sous vide. Ils déterminent également un fort angle de mouillage pour le substrat en nitrure de bore, 145° après 1.2Ks à 1693K. La concentration de bore dissout dans le silicium est de 0.054 ppm ce qui reste considérable pour du silicium photovoltaïque. Ils constatent également la formation de couches discontinues de Si_3N_4 à la surface du substrat de nitrure de bore, tendant à diminuer la diffusion du bore dans le silicium.

La formation de nitrure de silicium au contact substrat BN-Si fondu conduit à la formation de Si_3N_4 ce qui diminue l'angle de mouillage en ces points (6).

Lee *et. al* (7) ont testé le nitrure de bore et le nitrure de silicium comme revêtement de leur creuset en graphite dans le but de prévenir la diffusion du carbone dans le silicium. Ils ont constaté que le nitrure de bore est le plus approprié pour empêcher la diffusion du carbone et permet également la croissance de grosse taille de grains (jusqu'à 1mm) ce qui augmente l'efficacité de la cellule solaire. Ils ont fini également par privilégier le nitrure de silicium à cause du fort dopage en bore (Figure A 4), mais la taille de grain est plus petite et la contamination par le carbone reste importante.

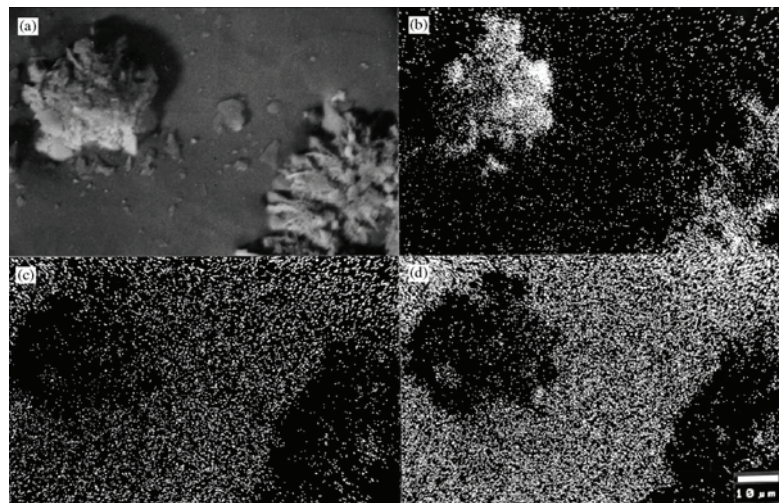


Figure A 4 : Analyses SEM et WDS de la surface d'une plaquette de silicium cristallisé sur du graphite avec revêtement de BN : (a) image SEM; (b) cartographie du carbone; (c) cartographie de l'azote (d) cartographie du bore. (7).

On peut voir sur l'image ci-dessus (d) la forte présence de Bore à la surface des plaquettes de silicium. Il semble possible cependant d'enlever le BN de la surface du Si par nettoyage ultrasonique (7). Un résumé des valeurs d'angles de contacts mesurées pour différents substrats est présenté dans le Tableau A 1.

Substrat	Angle de contact	Température	atmosphère	Référence
Nitrure de bore BN	122.5°	1693K	argon	(4)
	145°			(5)
	130°			(3)
Nitrure de silicium Si ₃ N ₄	51°	1693K		(4)
	89°			(5)
Quartz-silice SiO ₂	96.5°	1693K		(4)
	85°			(5)
	100°			(8)

Tableau A 1 : Angles de contacts mesurés pour les nitrures de Bore et de silicium, la silice.

A.4.2. Le nitrure de Silicium

Hide *et. al* proposent un substrat a double couche (première couche : Si en poudre + Si₃N₄ et deuxième couche : Si₃N₄ en poudre + SiO₂). La silice (SiO₂) et le nitrure de silicium (Si₃N₄) présentant un angle de contact de respectivement 96.5 et 51° d'après leurs calculs. La double couche de revêtement a pour but de se préserver de la contamination du silicium par le carbone contenu dans le graphite et empêcher la diffusion de l'azote. Cette double couche non adhésive fut utilisée quelques années plus tard pour tester le procédé Hoxan cast ribbon (9). L'angle de mouillage mesuré par Mukaï *et. al* par la méthode sessile drop est de 89° pour le contact Si-Si₃N₄ et celui du contact Si-SiO₂ est de 86° après 1.2Ks à 1693K sous vide.

D'autres auteurs ont rapporté les propriétés du nitrure et de l'oxy-nitrure de silicium (10) déposés par CVD sur les parois et la lèvre de tirage d'un système de croissance de rubans de silicium (vertical vers le bas). Ils constatent la formation de deux formes cristallines de nitrure de silicium en présence de silicium fondu ce qui permet de protéger les lèvres de tirage de la corrosion et le silicium de la pollution.

Le Tableau A 2 résume les quantités de bore et d'azote dissoutes dans un bain de silicium contenu dans un creuset de nitrure de silicium, un creuset en graphite de haute densité avec revêtement de nitrure de bore et un creuset en nitrure de bore

Température (K)	Temps	Quantité de N	Quantité de B	Type de creuset	Equilibre	Reférence
1773	16h ^(a)	X _N =0.000056	X _B =0.00186	Revêtement de bore	Si-Si ₃ N ₄ -BN	(11)
1773	16h ^(a)	X _N =0.000147	X _B =0	nitrure de silicium	Si-Si ₃ N ₄ S	(11)
1773	Après 48h ^(b)	M=0.0682%	M=0.00796	Nitrure de Bore	Si-BN	(12)

Tableau A 3 : Quantités de bore et d'azote dissoutes dans le silicium contenu dans différents types de creusets.

(a) sous pression partielle P_N=3.98 10⁻³ atm

(b) sous pression partielle P_N=1.01 10⁵ Pa

Le nitrure de silicium peut donc être un bon revêtement sur les creusets en quartz qui ne contiennent pas de carbone.

A.4.3. La silice

Les creusets en silice sont souvent utilisés dans les procédés de cristallisation de silicium. Ils permettent de s'affranchir des problèmes de pollution au carbone. L'angle de mouillage Si liquide-SiO₂ est généralement mesuré autour de 87° (8) voir même 100° (4), (8). Cependant, le silicium a tendance à coller à la silice après solidification, à cause de la réaction

suivante : $\text{Si(l)} + \text{SiO}_2\text{(s)} \rightarrow 2\text{SiO(g)}$. C'est pourquoi on utilise souvent des revêtements entre le creuset en silice et le silicium.

Cröll et al (8) ont testé par la technique sessile drop des revêtements de poudre de silice, de nitrure de silicium et de nitrure de bore sur un substrat en quartz. Ils ont noté que la goutte de silicium mouille moins sur le substrat avec revêtement en poudre de silice que celui avec la poudre de nitrure de silicium (angle de mouillage inférieure à 10°), contrairement aux résultats rencontrés souvent dans la littérature (4), (5).

A.4.4. La mullite

La mullite est une céramique constituée de silice et d'alumine ($3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{SiO}_2$) (13), (14). Il en existe plusieurs types selon leur porosité, leur pureté et d'autres propriétés. (15). Il semble que c'est un matériau qui ne mouille pas le silicium (4), (13), mais vu sa composition, son angle de contact doit être autour de celui de l'alumine et de la silice ($93\text{-}96^\circ$) (4).

A.4.5. Les sels fondus

Minster *et. al* (16) proposent un revêtement de sel fondu sur un creuset réutilisable : du $\text{CaF}_2\text{-MgF}_2$, choisi entre autre pour sa passivité en présence de silicium fondu et constatent qu'il est facile de décoller le bloc de silicium solidifié. Cependant, il y a infiltration du sel dans le silicium, ce qui constitue un désavantage pour cette méthode (6). Ce revêtement n'est pas appropriée dans le cadre d'un procédé de tirage en continu.

A.5. La sustentation par film de gaz

Il existe plusieurs procédés d'élaboration sans contact : la lévitation électromagnétique, acoustique et électrostatique, la sustentation aérodynamique ... (17) La sustentation par film de gaz consiste à injecter un gaz (Argon) sous pression à travers une paroi poreuse qui est généralement en graphite (Tableau A 4). On forme ainsi une mince couche d'air entre le support poreux et la charge qui lui est posée dessus. L'avantage de cette méthode est la possibilité de travailler en très haute température (jusqu'à plus de 2000°C (18)), d'éviter la pollution par contact avec le support ou le creuset, de ne pas abimer le support et aussi de s'affranchir des problèmes de nucléation hétérogène (18), (19).

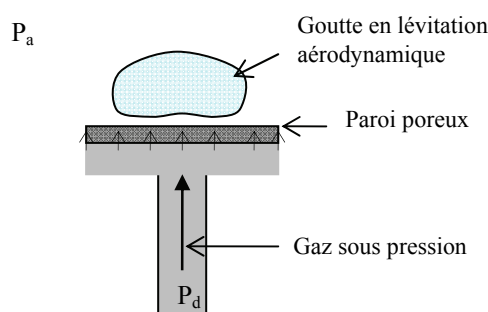


Figure A 5 : Schéma de la méthode de sustentation sur film de gaz.

A température et pression ambiantes, Rialhe (18) montre que le volume maximum d'eau sustenté sur diffuseur plan est de 1.4cm^3 , 30cm^3 sur diffuseur sphérique et 40cm^3 sur diffuseur conique avec un débit maximum d'Argon de 2l/mn , au-delà duquel on observe des fluctuations. Les fluctuations dépendent de la viscosité du fluide sustenté. On n'en observe pas pour des verres d'oxyde de viscosité $10^2\text{-}10^3\text{ P}$ ($1\text{P}=0.1\text{kg/m/s}$). Dans le cas du silicium qui est plus visqueux que l'eau, le débit max pourrait être plus élevé

Plus récemment, Hervieu *et. al* (19) annoncent qu'il est possible de léviter des échantillons de 100cm^3 . Au-delà de cette valeur, il n'y a pas de lévitation (étude de modélisation, le débit d'air n'est pas précisé).

A.6. Conclusion

Au vue de cette étude bibliographique, le nitrure de Bore (BN) semble être le substrat qui mouille le moins le silicium. Son inconvénient est le fort dopage en bore qui en résulte. Il reste à savoir si le dopage en bore peut être négligeable dans le cadre de notre procédé au cours duquel le ruban est censé se solidifier rapidement et tiré immédiatement vers l'extérieur. Le nitrure de silicium (Si_3N_4) est souvent utilisé comme revêtement de creuset (Photowatt) ; Le problème avec les revêtements est leur détachement au cours d'un procédé en continu. Ils sont mieux adaptés aux procédés de solidification en creuset.

Une dernière alternative serait la sustentation par film de gaz. Le problème serait de pouvoir léviter une charge d'environ 760g de silicium pour le procédé expérimental (tout en tenant compte du problème de la fossette créée en bas de la charge notamment dans le cas d'une goutte sustentée) et de maîtriser les problèmes de bord induits par la lévitation. La convection naturelle créée dans le fluide pourrait permettre de conforter la ségrégation électromagnétique.

Bibliographie

1. J. C. Lee, D. King, J. Kim, K. Lee et C. Hui : Journal of electronic Materials, vol. 34, 2005.
2. D.Y. Kim, K.C. Lee et C. Lee : proceedings of SPIE fourth symposium on laser precision, vol. 5063, 2003.
3. Hardy, S. C.: Journal of crystal growth, vol. 69, p. 456-460, 1984.
4. J. I. Hide, T. Yokoyama, T. Matsuyama, K. Sawaya, M. Suzuki, M. Sasaki et Y. Maeda : *Mould shaping silicon crystal growth with a mould coating material by the spinning method*, Journal of crystal growth, vol. 79, p. 583-589, 1986.
5. Z. Yuan, W. Huang et K. Mukai : *Wettability and reactivity of molten silicon with various substrates*, Appl.phy.A, vol. 78, p. 617-622, 2004.
6. N. Eustathopoulos. : *Communication interne.* Juin 2007.
7. G.H Lee, Z.H. Lee: Journal of crystal growth, vol 233, p. 45-51, 2001.
8. A. Cröll, R. Lantzsch, S. Kitanov, N. Salk, F.R. Szofran et A. Tegetmeier: Cryst. Res. Technol. 38, vol. n° 7-8, p. 669-675, 2003.
9. M. Suzuki, I. Hide, T. Yokoyama, T. Matsuyama, Y. Hatanaka et Y. Maeda : Journal of crystal growth, vol. 104 p. 102-107, 1990.
10. M.T. Duffy, S. Berkman, G.W. Cullen, R.V. D'Aiello et H. I. Moss : Journal of crystal growth, vol. 50, p. 347-365, 1980.
11. Morita, Takeshi Yoshikawa and Kazuki. : Materials Transactions, vol. 46 n°6 p. 1335-1340, 2005.
12. Ryouji Noguchi, Kichiya Suzuki, Fumitaka Tsukihashi and Nobuo Sano : Metallurgical and Materials Transactions B, 904-vol 25B, 1994.
13. D. Zook, B.G. Koepke, et B. L. Grung : Journal of crystal growth, vol. 50, p. 260-278, 1980.
14. A. Eyer, F. Haas, T. Kieliba, D. O wald, S. Reber, W. Zimmermann et W. Warta : Journal of crystal growth, vol. 225, p. 340-3, 2001.
15. A. Slaoui, S. Bourdais, G. Beaucarne, J. Poortmans et S. Reber : Solar Energy Materials and Solar Cells, vol. 71, p. 245-252, 2002.

16. **O. Minster, J. Granier, C. Poiard et N. Eustathopoulos** : Journal of crystal growth, vol. 82, p. 155-161, 1987.
17. **T. Duffar** : *communication interne*, Mai 2007.
18. **A. Riahle** : *these INPG*, 1987.
19. **E. Hervieu, N. Coutris and C. Boichon** : Nuclear Engineering and Design, vol. 204, p. 167-175, 2001.

Annexe B. Estimation du couplage électromagnétique par mesures au décrément logarithmique

Des mesures au décrémenteur logarithmique ont été effectuées afin de déterminer l'influence du support en graphite (nécessaire pour le contrôle thermique de la fusion et de la cristallisation) sur la puissance qu'on a besoin d'injecter dans l'inducteur. Cette mesure permet de connaître l'impédance du circuit oscillant (composé du générateur, du boîtier de capacité, de l'inducteur et de la charge) et les paramètres électriques caractérisant l'inducteur et les charges (la fréquence, l'inductance, la résistance). Les résultats sont résumés dans le tableau ci-après. Paramètres.

La conductivité électrique du silicium solide étant nulle, nous le représentons par un bloc d'étain (de dimension $10 \times 10 \times 2 \text{ cm}$). L'étain et le silicium liquide ont tous deux une conductivité électrique $\sigma \sim 10^6 \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$. Des plaques de téflon de 6 mm d'épaisseur placées en dessous et devant le bloc d'étain représentent l'épaisseur du creuset. Une sole en cuivre, solidaire de l'enceinte refroidie abritant notre dispositif expérimentale est présente lors de nos mesures. Il est possible de l'éloigner au maximum de l'inducteur au besoin (translation verticale grâce à un système motorisé). Les positions des différents éléments par rapport à l'inducteur pendant nos expériences sont respectés pour ces mesures grâce à des plaques de silice (remplaçant par exemple le graphite pour que le silicium, représenté par l'étain, garde le bon emplacement lors de la mesure Cu (sole en cuivre) + Sn (étain)).

La résistance du système sole Cu+graphite+étain est plus faible que celle du système sole en Cu+graphite. Ceci s'explique par le fait que l'épaisseur de peau du graphite est beaucoup plus grande que celle de l'étain, et ainsi le flux magnétique et donc l'inductance est beaucoup plus grande quand on n'a que le graphite. Cette variation de la résistance pourrait nous permettre d'estimer la variation de puissance puisque la puissance est proportionnelle à la résistance. Pour le savoir, nous avons effectué quelques calculs numériques avec Fluent, ce qui nous permet de connaître les répartitions de puissance dans les différents composants. Les résultats de l'expérience et du calcul sont résumés dans le Tableau B 1 :

Expérience (avec plaques de silice entre le cuivre (Cu) et le graphite (gra))			calcul pour $I=1000 \text{ A}$, sans la sole en cuivre (Cu)				
système	R (ohms)	L (H)	L (H)	$P_{\text{ind}}/I_{\text{eff}}^2$ (ohms)	$P_{\text{sn}}/I_{\text{eff}}^2$ (ohms)	$P_{\text{gra}}/I_{\text{eff}}^2$ (ohms)	$(P_{\text{sn}}/I_{\text{eff}}^2) + (P_{\text{gra}}/I_{\text{eff}}^2)$ (ohms)
Avide	0,00505179	8,42E-07	1,798E-07	1,442E-04	0	0	1,442E-04
Cu+Sn	0,005381817	8,04E-07	1,358E-07	1,442E-04	1,033E-03	0	1,177E-03
Cu+Sn+gra	0,007685756	7,82E-07	1,277E-07	1,442E-04	8,408E-04	1,327E-03	2,312E-03
Cu+gra	0,008890768	7,89E-07	1,56E-07	1,442E-04	0	3,417E-03	3,561E-03

Tableau B 2 : Données obtenues par mesures au décrémenteur logarithmique à gauche, et par modélisation axisymétrique à droite.

On peut tout d'abord noter une différence entre les valeurs de R et L qui sont 3 à 4 fois plus faibles dans le calcul que dans l'expérience ; elle peut s'expliquer par le fait que l'inducteur réel et celui modélisé sont différents. En effet, nous avons modélisé en 2D axisymétrique avec le module d'induction un tube circulaire de cuivre faisant le tour du tube (Figure B 1). En réalité, il s'agit d'un inducteur rectangulaire avec la plaque de cuivre présente sur une longueur de 8 cm (Figure B 2). Ainsi donc, la section de passage du courant dans l'inducteur est beaucoup plus grande dans la modélisation qu'en réalité, d'où une valeur plus faible de la résistance. $R = \rho \times \frac{l}{s}$

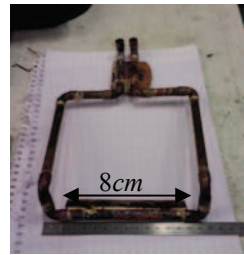
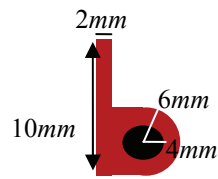


Figure B 3 : coupe de l'inducteur modélisé à droite et photo de l'inducteur expérimental à gauche.

D'après les résultats obtenus après modélisation, la résistance calculée à partir des puissances dissipées dans l'étain et le graphite correspondent à celle du circuit oscillant. On peut donc déduire la résistance due au graphite en retranchant celle du système Cu+Sn de celle du système Cu+Sn+graphite ce qui correspond à une résistance de $2.3mOhms$. Pour un courant de $1500A$, la puissance dissipée dans le graphite est alors :

$P=2.3.10^{-3} \times 1500^2= 5175W$, la puissance totale dissipée étant de $17.28kW$.

Annexe C. Liste complète des tests et expériences

N° de référence	Date de l'expérience	Matériau utilisé	caractéristiques
AX1	22-23/08/06		Mesures d'étalonnage au décrémenteur logarithmique
AX2	23-24-25/08/06		Mesures de calibrage à vide
AX3	29/08/06	Silicium	Poids : 760g Creuset : cylindrique, en silice Fente de 1.5mm de haut à la base du creuset Inducteur : circulaire, placé sous le creuset (5mm en dessous) Support : béton réfractaire sur sole en cuivre refroidie Observations : Surchauffe du bain fondu, difficulté pour voir l'état du Si, pas d'observation d'effet des forces électromagnétiques.
AX4	11/09/06		Explosion de l'inducteur le matin et nouvelles mesures de calibrage l'après midi
AX5	12/09/06	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : cylindrique, en pyrex (bêcher) Fente : pratiquée avec une scie de 2mm d'épaisseur Inducteur : circulaire, placé sous le creuset Support : béton réfractaire sur sole en cuivre refroidie Observations : Inducteur trop loin de la fente, forces électromagnétiques insuffisantes, l'étain coule
AX6	01/12/06	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : cylindrique en pyrex (bêcher) Fente : pratiquée avec une scie de 2mm d'épaisseur Inducteur : plaque horizontale soudée à une bobine circulaire au niveau de la fente et rectangulaire vers l'arrière du creuset, placé de sorte que la plaque est située juste au dessus de la fente. Support : béton réfractaire sur sole en cuivre refroidie Observations : Rétention partielle du fluide, fort brassage.
AX7	18/12/06	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : cylindrique en pyrex (bêcher) Fente : pratiquée avec une scie de 2mm d'épaisseur Inducteur : plaque verticale soudée à une bobine circulaire au niveau de la fente et rectangulaire vers l'arrière du creuset, placé de sorte que le haut de la plaque est située juste en dessous de la fente. Support : béton réfractaire sur sole en cuivre refroidie Observations : Les forces électromagnétiques semblent bien retenir l'étain fondu, mais le creuset casse avant la fin de la fusion.
AX8	19/12/06	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : cylindrique en pyrex (bêcher) Fente : pratiquée avec une scie de 2mm d'épaisseur Inducteur : plaque verticale soudée à une bobine circulaire au niveau de la fente et rectangulaire vers l'arrière du creuset, placé de sorte que le haut de la plaque est située juste en dessous de la fente. Support : béton réfractaire sur sole en cuivre refroidie Observations : On arrive à retenir le fluide grâce aux forces électromagnétiques : validation pour un creuset cylindrique.
AX9	15/06/07	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : 3 plaques de silice de 1cm d'épaisseur reposants sur la sole de cuivre Observations : creuset légèrement incliné vers l'avant ; il faut plus de courant pour assurer l'étanchéité électromagnétique
AX10	06/07/07 21/08/07		Séries de mesures au décrementeur logarithmique
AX11	11/09/07		Poids : Creuset : pas de creuset Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : un bloc de graphite rectangulaire Observations : température jusqu'à 1140°C pour 1856A
AX12	21/09/07	étain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : un bloc de graphite rectangulaire Observations : le graphite ne chauffe pas au rouge ; couple beaucoup

AX13	23/10/07	étain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : un bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 1cm Observations : graphite mal sectorisé donc constate toujours du couplage (plus au coin droit qu'au coin gauche)
AX14	09/01/008	étain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Introduction d'une canne en alumine pour injecter le balayage d'argon au dessus du creuset Observations : arcs entre isolant et inducteur, on coupe le courant, retaille les isolants et recentre le tout
AX15	09/01/08	étain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations : le creuset n'est pas en contact avec l'inducteur : l'étain coule entre les deux avec formation d'arcs lumineux
AX16	10/01/08	étain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations : on chauffe l'étain au rouge, beaucoup de fumée, conduit d'évacuation de l'argon bouché par l'étain qui a coulé entraînant une surpression
AX17	31/03/08		Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations :
AX18	2/04/08		Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations : fusion de l'étain resté dans le creuset lors de l'expérience précédente
AX19	3/04/08	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations : Etain chauffé au rouge, problèmes acquisition de température avec le pyromètre

AX20	7/05/08 15/05/08		Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support : béton Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations : Les mesures du thermocouple sont perturbées par l'induction, manip du 7 Mai après midi à l'étain, Oubli eau inducteur le 15 Mai après midi, inducteur abimé
AX21	26/05/08 27/05/08 28/05/08 29/05/08 30/05/08 2/06/08	Tests de mesures de thermocouples à vide avec et sans pyromètre	Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm Observations :
AX22	5/06/08	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : carré en silice, bord scié Fente : creuset fourni avec fente de 5cm de large et 2mm d'épaisseur Inducteur : carré épousant la forme du creuset, espacé de 1mm sur les cotés et supportant une plaque de 1 cm de haut, 2mm d'épaisseur et 8cm de large centré sur la fente du creuset. Bord fente scié Support Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm posé sur petit support den béton refractaire. Observations : Creuset en partie dévitrifié, grande plaque de support légèrement consommé (observation de fumée) quelques arcs lumineux au contact resistor-isolant., le resistor a chauffé jusqu'à 1400°C
AX23	9/06/08 13/06/09 19/06/08 18/06/08		Calibrage puissance resistor haut Test tc isolants induction resistor Manip Si reportée au 20, problème arrivée d'argon sur Si en poudre
AX24	20/06/08	silicium	Poids : 1025g Inducteur : Support : Le bloc de graphite rectangulaire présentant des fentes de 5mm de profondeur séparées par une distance de 5mm posé sur petit support den béton refractaire. Observations : 1355°C mesurées à la fente avec le pyro portable pistolet, eaux en sortie de l'inducteur à 50°C, Problème avec la commande du gradateurs : potentiomètre défaillant, la puissance injectée dans le resistor tombe progressivement si on touche le 2° bouton par mégarde. Arcs lumineux + fumées côté thermocouple.
AX25	27/06/08 30/06/08	Test Nouvel inducteur	Mesures au décrementeur pour nouvel inducteur : Test à vide avec tc+ resistor= induction
AX26	02/07/08	Etain	Poids : 1.3kg Creuset Fente : Inducteur : Support Observations :
AX27	03/07/08 07/07/08	Test mesure de température avec thermocouple	Poids : Creuset Fente : Inducteur : Support Observations :

AX28	03/09/08	Etain	Nouveau creuset Inducteur : Support Observations : expérience effectuée sous atmosphère ambiante L'étain fondu ne coule pas, les tensions superficielles suffisent à empêcher la coulée, fente de 1mm trop fine ; formation également d'une peau d'oxyde au niveau de la fente
AX29	16/09/08	Etain	Poids : Creuset Fente : Inducteur : Support Observations : expérience sous atmosphère d'argon
AX30	22/09/08 23/09/08	Test de mesure de température avec 2 tc bas, induction, sans et avec resistor haut	
AX31	26/09/08 03/10/08 06/10/08 07/10/08 08/10/08 09/10/08 05/11/08	Test chaud avec resistor haut chauffé, resistor bas non alimenté, 4 tc	
AX32	05/11/08	Etain	Creuset : fente modifiée de 1 à 2mm Poids : Creuset Fente : Inducteur : Support Observations :
AX33	12/11/08	1 ^{er} test avec nouvel alimentation pour resistor bas	Poids : Creuset Fente : Inducteur : Support Observations :
AX34	14/11/08 28/11/08	Silicium Test	Poids : Creuset : carré avec fente de 1mm Inducteur : Support : resistor en graphite Observations : Si pratiquement fondu en entier, mais le creuset s'est troué par le fond durant l'expérience Blindage de l'alimentation Cyberstar du résistor bas n'est pas perturbé par l'induction (on n'observe pas de tension alternative à ses bornes en mettant l'induction en marche). Test de chauffage du résistor bas avec plaque de silice (xiarock) entre la plaque de l'inducteur et le résistor. Le résistor paraît plus homogène sur l'avant, seul les deux cotés en contact avec les plaques de cuivres restent noirs.
AX35	02/12/08	Silicium	Poids : rempli à ras bord Creuset : carré avec fente de 2mm (languette de 1mm en dessous) et revêtement de nitrure de silicium Inducteur : plaque de xiarock entre la plaque de l'inducteur et le resistor. Support : petite plaque de feutre de graphite posée sur la sole en cuivre pour l'isoler thermiquement du fond du creuset ; creuset posé sur le resistor bas Observations : on a pu retenir le si fondu à 1283A, et on l'a coulé par la fente en coupant le courant. Il reste cependant ~2cm de Si dans le creuset qui apparait dévitrifié sur le fond et fracture à partir du coin gauche de la fente

AX36	05/01/09	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : carré avec fente de 4mm et revêtement, languette de 2mm en dessous Inducteur : Support : petite plaque de feutre de graphite posée sur la sole en cuivre pour l'isoler thermiquement du fond du creuset ; creuset posé sur le résistor bas Observations :
AX37	07/01/09	Etain	Inducteur : plaque recouverte de béton ce qui fait qu'elle est isolée thermiquement et placée à 3-4mm en bas de la fente
AX38	20/01/09	Silicium	Creuset : carré avec fente de 4 mm d'épaisseur et 10 cm de large Inducteur : plaque recouverte de céramique (alumine) → isolée thermiquement et placée sous la fente Observations : une croûte s'est vraisemblablement formée à la fente puis que le si ne coule pas quand on baisse le courant jusqu'à 1000A
AX39	23/02//09	Etain	Poids : 1.3kg Creuset : carré fente de 5mm d'épaisseur Inducteur : Support : Observations : l'enceinte est inclinée de 8° afin de faciliter la vidange du creuset ; Retention ok à 8trs (1670A). il reste é3-4mm d'étain dans le creuset (partie devant)
AX40	20/03/09 31/03/09 31/03/09	Etain	Creuset : carré avec fente de 4 mm d'épaisseur et 10cm de large Inducteur : Nouvel inducteur plaque (8cm) recouverte de b&ton ce qui fait qu'elle est isolée thermiquement et placée à 3-4mm en bas de la fente pour le test du 20 Mars, et plaque modifiée à 10cm pour tests du 31 Mars.. Rétention ok entre 1900 et 2000A
AX41	03/04/09	Silicium	Poids : creuset rempli de silicium (scraps), non pesé Creuset : Inducteur : Inducteur avec plaque de 10cm Support : Nouveau résistor de 1,5cm d'épaisseur Observations : Pilotage en température avec la nouvelle alimentation et les Eurotherms. Problèmes de parasitage de l'induction sur le pc (qui s'éteint), passage en pilotage manuel des Eurotherms. Arrêt brusque du test après 2h de manip à cause de l'apparition d'arcs au niveau de l'inducteur. Le Si avait commencé à fondre. Ce test a été suivi de 2 mois d'interruption à cause du gradateur qui a grillé et qu'il a fallu remplacer + tests et réglages techniques.

AX42	08/06/08	Silicium	Silicium de composition connue Nouveau creuset : 10cm de large et 4mm d'épaisseur Inducteur : Plaque de 10cm Support : Résistor bas 1,5cm d'épaisseur Observations : Rétention ok pour ~1320A. Arrêt du test à cause du hublot de devant qui s'est fracturé. Le silicium n'était pas entièrement fondu.
AX43_0	23/06/09 24/06/09	Tests	

AX43	7/07/09	Silicium	Poids : 830g de Si de composition connue Creuset : carré Fente : 10cm de large et 4mm d'épaisseur Inducteur : Plaque de 10cm Support : Résistor bas 1,5cm d'épaisseur La fenêtre de l'isolant est bouchée pour des besoins d'estimations thermiques du four Observations : durée du test : 8h, Les mesures ont été peu perturbées. Solidification d'un lingot de silicium, présentant des fissures au démontage. Echantillon envoyés pour analyse des impuretés
AX44 (le tes AX44 a été nommé AX45 par erreur			
AX45	22/07/09	Silicium	Poids : 830g de Si de composition connue Creuset : carré Fente : 10cm de large et 4mm d'épaisseur Inducteur : Plaque de 10cm Support : Résistor bas 1,5cm d'épaisseur La fenêtre de l'isolant n'est pas bouchée Observations : L'objectif était de solidifier une petite couche de silicium et évacuer le liquide restant en coupant la rétention. Nous avons eu beaucoup de mal à contrôler la thermique avec précision puisque la coupure de l'induction entraîne une solidification très rapide qui bouche la fente très vite.
AX46	01/10/09	Silicium	Poids : 800g Creuset avec revêtement de Si ₃ N ₄ Fente : 10cm de large et 4mm de haut Inducteur : raccourci de 5mm, isolation béton réfractaire Support : résistor bas Observations : On a utilisé le nouveau résistor haut. Fine couche de silicium cristallisée au fond du creuset. Apparition d'oxydes de silicium dans la fente au cours du test. Le creuset a très bien supporté la manip et est réutilisable.
AX47	09/10/09	Silicium	Poids : 800g de Si dopé en P Creuset revêtement de Si ₃ N ₄ ? Fente : 10cm de large et 4mm de haut Inducteur : Support : résistor bas Observations : on a cristallisé une fine couche de silicium (environ 2mm), le creuset n'a pu être totalement purgé (la partie supérieure de la couche s'est solidifiée après l'évacuation incomplète du liquide)
AX48	28/10/09	Silicium	Poids : 800g de Si dopé en P Creuset revêtement de Si ₃ N ₄ ? Fente : 10cm de large et 4mm de haut Inducteur : Support : résistor bas Observations : Manip stoppée 50mn après le début à cause de dégagement de fumées dans le transfo du résistor haut.
AX50	07/01/2010	Silicium	Poids : 850g de Si dopé en P Creuset sans revêtement Fente : 10cm de large et 4mm de haut Inducteur : Support : résistor bas Observations 540,47g de Si fondu, 188,8g de Si non purgé, 309,53g de Si non fondue

**Annexe D. Etude comparative Module d'induction de
Fluent/Comsol**

D.1. Introduction

Dans les Chapitres 3 et 4, nous avons présenté des résultats de modélisation magnétohydrodynamique (avec le module d'induction développé pour Fluent en 2D axisymétrique) et électromagnétique (en 3D avec le module AC/DC de Comsol). Des calculs magnétohydrodynamiques en 3D, couplant les deux codes ont ensuite été présentés en Chapitre 5. En effet, notre module d'induction n'étant pas encore opérationnel en 3D, nous avons choisi d'associer le calcul mécanique des fluides et transport d'espèces 3D de Fluent avec le calcul électromagnétique 3D de Comsol grâce à un outil d'interpolation que nous avons développé à cette fin.

Nous présentons ici les résultats obtenus par les deux codes grâce à la comparaison de deux cas axisymétriques et deux cas 3D similaires.

D.2. Géométries et maillages

La géométrie modélisée est celle présentée dans le Chapitre 3 : un cylindre représentant le silicium liquide (4,5cm de rayon et 5cm de haut) placé à 5mm (épaisseur de creuset) au dessus du support graphite (5cm de rayon et 2cm de haut). L'inducteur est une spire de 6mm de diamètre solidaire d'une plaque de cuivre de 1cm de haut et 2mm d'épaisseur, placé à 1mm du graphite et 5mm en dessous du silicium (il s'agit d'une section au milieu de la plaque de concentration du champ, de l'inducteur modélisé en 3D dans le Chapitre 4).

Le premier maillage (Figure D 1) provient du logiciel Gambit, généralement utilisé pour construire les géométries et maillages destinés à Fluent. Nous l'appelons cas1. Le module d'induction calcule la distribution du courant dans l'inducteur, ce qui suppose d'avoir un maillage assez fin pour décrire la peau électromagnétique dans le cuivre (0.38mm à 30kHz).

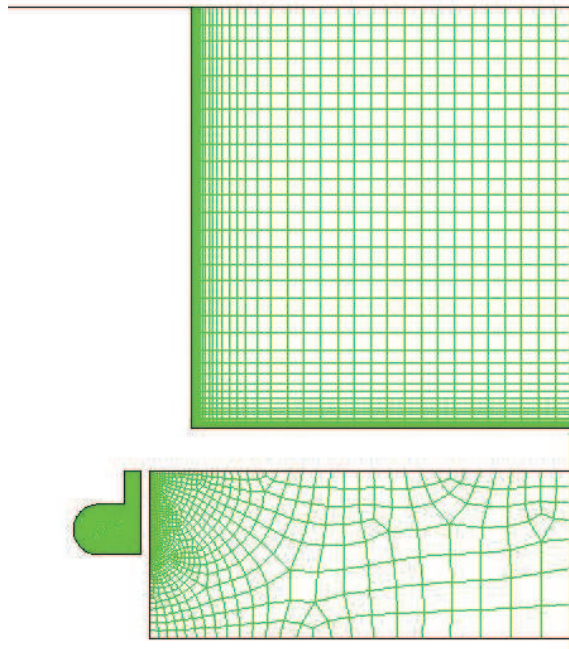


Figure D 1 : Maillage Gambit en 2D axisymétrique pour calcul fluent, cas1.

Le deuxième maillage (Figure D 2) a été réalisé par Comsol qui possède son propre mailleur, c'est le cas2.

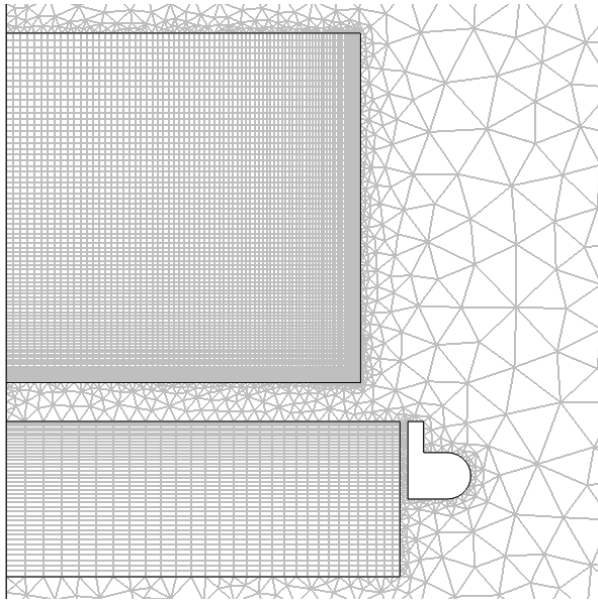


Figure D 2 : Maillage comsol en 2D axisymétrique pour calcul Comsol, cas2

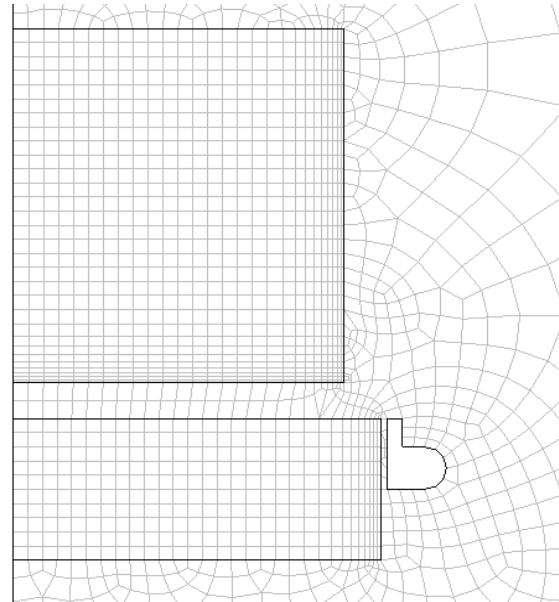


Figure D 3 : Maillage gambit en 2D axisymétrique pour calcul Comsol, cas3

L'inducteur est un tube creux sur lequel on peut imposer une condition limite d'impédance de frontière dans Comsol (valable en fine peau électromagnétique, la densité de courant étant supposée décroître exponentiellement dans l'épaisseur de peau).

Le dernier cas, nommé cas3 (Figure D 3) représente un maillage Gambit que nous avons lu dans Comsol moyennant une conversion (à l'aide d'un utilitaire de traduction développé à SIMaP) du fichier neutral (.neu) en un fichier « .mphtxt » lu par Comsol, nous permettra de savoir si l'importation d'un maillage étranger (Gambit) dans Comsol influe sur les résultats de calculs.

D.3. Conditions de calcul

Dans les deux logiciels, nous imposons une différence de potentiel U de $20V$ ou $40V$ (valeur crête de la sinusoïde) sur un tour de l'inducteur (c'est-à-dire un gradient de potentiel normal au plan de calcul valant $U/2\pi r$ en chaque point de rayon r de l'inducteur). Le module induction de Fluent calcule la distribution volumique de courant (avec précision lorsque le maillage décrit précisément l'épaisseur de peau), alors que Comsol calcule la distribution de courant en surface de l'inducteur (approximativement, car l'épaisseur de peau électromagnétique n'est pas négligeable devant toutes les dimensions de l'inducteur, en particulier le rayon de courbure des arêtes de la plaque).

Nous avons imposé la conductivité électrique égale à $1.25 \cdot 10^6 A/V/m$ pour le silicium, $0.5 \cdot 10^6 A/V/m$ pour le graphite et $58 \cdot 10^6 A/V/m$ pour le cuivre. Les frontières « à l'infini », situées en réalité à $R=15cm$ de l'axe, et $X= -8,5cm$ en dessous et $X= +5,5cm$ au dessus de du haut de l'inducteur, imposent un potentiel vecteur nul ($A_\theta=0$). Ces frontières sont suffisamment éloignées de la géométrie modélisée pour que les lignes de champ puissent correctement se refermer dans le domaine de calcul. La fréquence f est un paramètre du calcul, imposé égal à $25kHz$ ou $30kHz$.

D.4. Résultats

Le Tableau D 1 ci-dessous présente les courants et puissances Joule induites dans le silicium et le graphite, calculées pour les paramètres $f=25-30kHz$ et $U_c=20-40V$, imposés à l'inducteur

	$F = 30 \text{ kHz}, U_c = 20V$					$F = 30 \text{ kHz}, U_c = 40V$				
	Inducteur I_{eff} (A)	Silicium I_{eff} (A)	Silicium P (W)	Graphite I_{eff} (A)	Graphite P (W)	Inducteur I_{eff} (A)	Silicium I_{eff} (A)	Silicium P (W)	Graphite I_{eff} (A)	Graphite P (W)
Cas1	615	251	221	245	1747	1230	502	886	692	6987
Cas2	610	399	227	391	1762	1123	799	906	783	7047
Cas3	596	402	226	391	1726	1193	803	905	783	7048

	$F = 25 \text{ kHz}, U_c = 20V$					$F = 25 \text{ kHz}, U_c = 40V$				
	Inducteur I_{eff} (A)	Silicium I_{eff} (A)	Silicium P (W)	Graphite I_{eff} (A)	Graphite P (W)	Inducteur I_{eff} (A)	Silicium I_{eff} (A)	Silicium P (W)	Graphite I_{eff} (A)	Graphite P (W)
Cas1	714	311	290	376	1864	1428	623	1158	752	7457
Cas2	710	486	297	414	1880	1420	971	1186	828	7521
Cas3	694	489	296	414	1880	1388	977	1185	828	7323

Tableau D 1 : Résultats obtenus pour les trois cas : Cas1: Calcul Fluent avec maillage Gambit ; Cas2 : calcul Comsol avec maillage Comsol ; Cas3 : calcul Comsol avec maillage Gambit.

Les deux codes Comsol et Fluent+module d'induction donnent des résultats très proches dans l'ensemble, malgré la différence de répartition du courant dans l'inducteur (surfacing pour Comsol, volumique pour Fluent).

Comparaison des cas de calcul deux par deux :

- **Cas1** (calcul Fluent avec un maillage Gambit) et **cas2** (calcul Comsol avec un maillage Comsol)

On note que l'écart entre les courants inducteurs calculés par les deux codes est inférieur à 1% lorsque la tension imposée est de $20V_c$ (soit 0,5% à 25kHz et 0,8% à 30kHz), et ~8% lorsque la tension imposée est de $40V_c$.

Les courants induits sont plus faibles dans les charges pour le Cas1 que pour le Cas2 : ~ -38% dans le silicium et ~ -10% dans le graphite. Cet écart n'est pas explicable par le faible écart du courant inducteur pour les deux cas, mais il pourrait provenir de la distribution de la densité de courant j (théoriquement exponentielle dans la peau électromagnétique du silicium, d'épaisseur 2.6mm à 30kHz) selon le maillage utilisé. Le maillage étant globalement moins fin dans le Cas1 que dans le Cas2, l'exponentielle est moins bien décrite d'où un courant induit plus faible. L'épaisseur de peau étant plus grande dans le graphite (13mm à 30kHz), l'écart est plus faible même si le maillage est là aussi moins fin. L'importance d'un maillage suffisamment adapté à la description de l'épaisseur de peau électromagnétique dans l'inducteur et les charges a été démontrée par d'autres calculs basés sur des maillages plus grossiers.

Les puissances induites diffèrent assez peu avec ~ 3% dans le silicium et -0,85% dans le graphite pour le Cas1. Le couplage est dans tous les cas plus important pour le graphite que pour le silicium, étant donné la proximité de l'inducteur avec le graphite.

- **Cas2** (calcul Comsol avec maillage Comsol) et **cas3** (calcul Comsol avec maillage Gambit)

Nous constatons que les résultats issus des cas2 et 3 sont pratiquement identiques (1 à 2% d'écart sur les courants induits et les puissances induites), ne traduisant pas directement la diminution du courant dans l'inducteur (-2% entre le cas 2 et le cas 3). Le fait qu'on ne retrouve pas -2% sur les courants induits et -4% sur les puissances induites traduit l'effet du maillage sur les distributions de courant, qui reste cependant tout à fait acceptable pour un gros écart de maillage (maillage plus raffiné au cas2). En utilisant un maillage plus grossier avec la même géométrie pour le cas2 (2992 éléments triangulaires contre 11422), on obtient pour 30kHz, 20V un courant légèrement plus faible, soit $I_{\text{eff}} = 603A$ dans l'inducteur, par contre les puissances induites dans les charges restent les mêmes.

Le courant calculé dans l'inducteur (qui dépend de la tension imposée) est donc légèrement sensible au maillage en axisymétrique.

Une comparaison entre deux calculs Comsol utilisant un maillage Gambit et un maillage Comsol en 3D montre des puissances induites peu différentes dans les charges (Tableau D 2). A courant légèrement plus faible dans le cas utilisant un maillage Gambit, ces puissances sont légèrement plus fortes à cause du maillage qui est moins fin (Figure D 2).

$f = 25kHz, h_s = 5cm$	$I_{\text{eff}}(A)$	$P_{\text{silicium}}(W)$	$P_{\text{graphite}}(W)$	$P_{\text{inducteur}}(W)$
Maillage Gambit	1005	5377	17013	5926
Maillage Comsol	1021	4853	16934	5176

Tableau D 2 : Courant et puissances induites pour les deux cas.

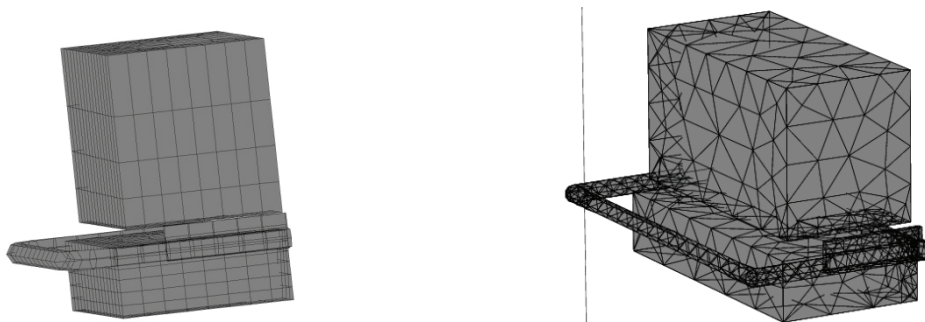


Figure D 4 : Maillage gambit (à gauche) et maillage Comsol (à droite).

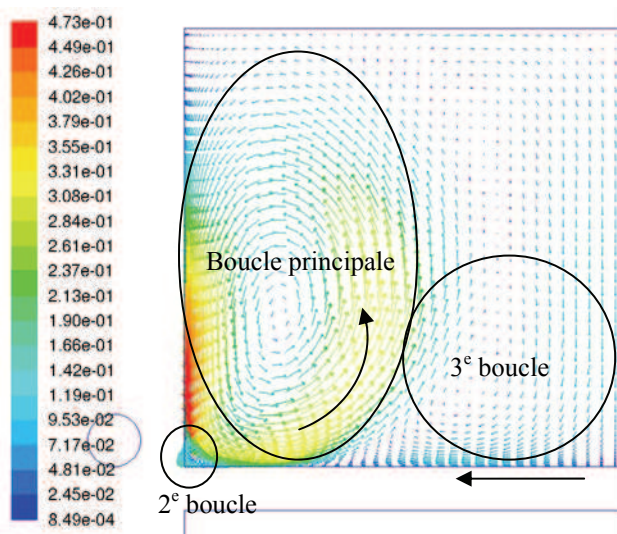
D.5. Conclusion

On en conclut qu'en 2D axisymétrique, le module d'induction et Comsol donnent des résultats assez proches à condition de prendre en compte l'épaisseur de peau électromagnétique lors de la construction du maillage. L'importation dans Comsol d'un maillage étranger (Gambit) ne modifie pas les résultats attendus.

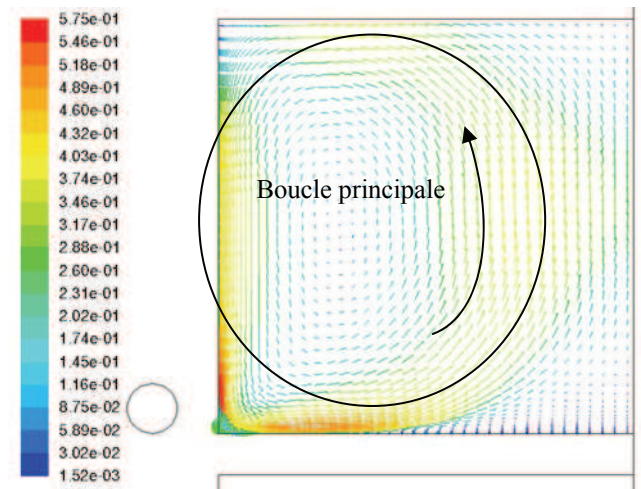
Le maillage influence les résultats, surtout en 3D où nous ne pouvons pas mailler aussi finement que nous voudrions. Bien que les maillages Gambit donnent plus simplement des mailles régulières et mieux contrôlées, nous avons choisi d'utiliser les maillages de Comsol, plus faciles à raffiner après un premier calcul, et à adapter à des changements de géométrie.

Annexe E. Brassage électromagnétique pour différentes fréquences d'induction

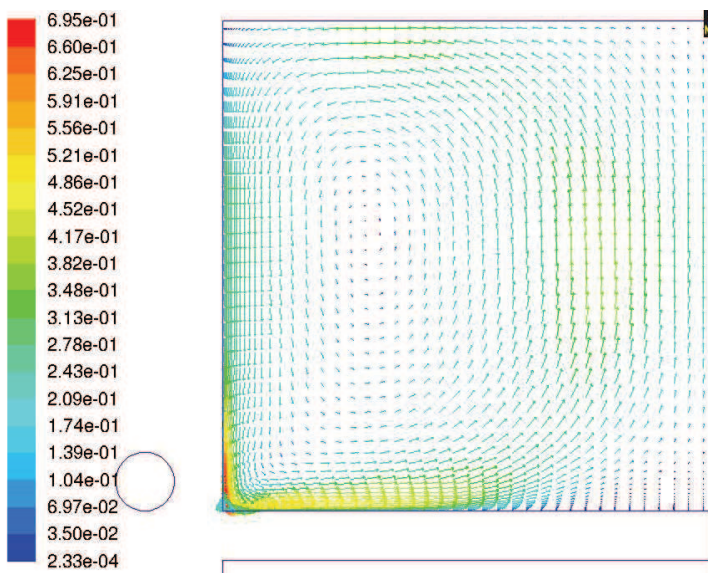
Configuration axisymétrique de l'inducteur au dessus du fond du creuset : différentes fréquences de $(1000A)$



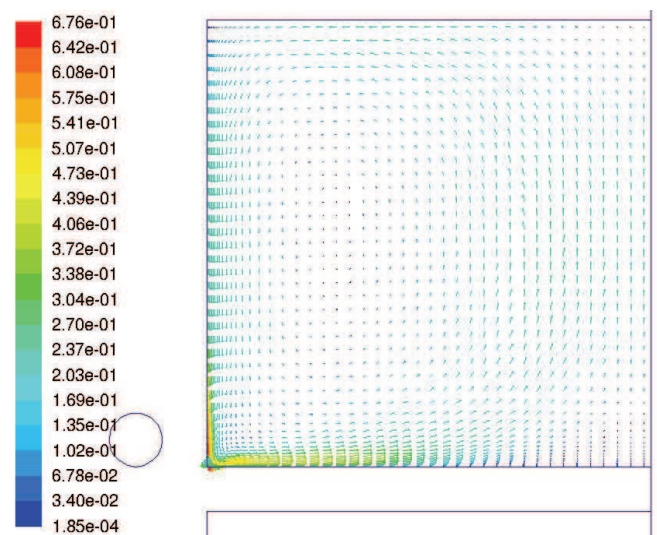
$f=5kHz$



$f=25kHz$

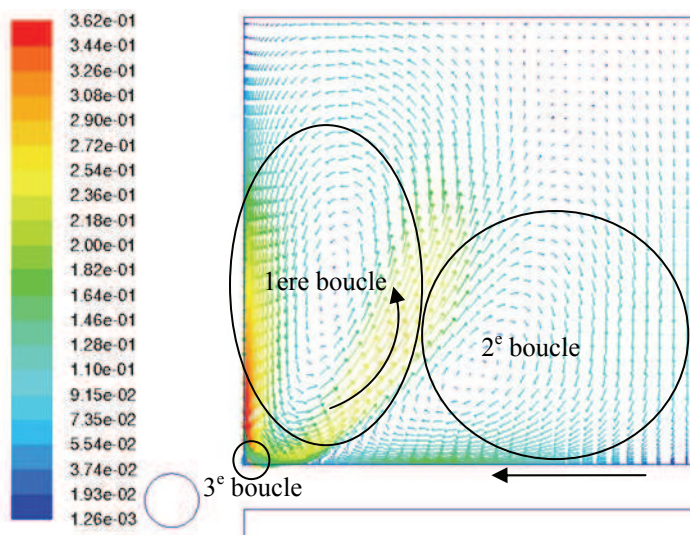


$f=50kHz$

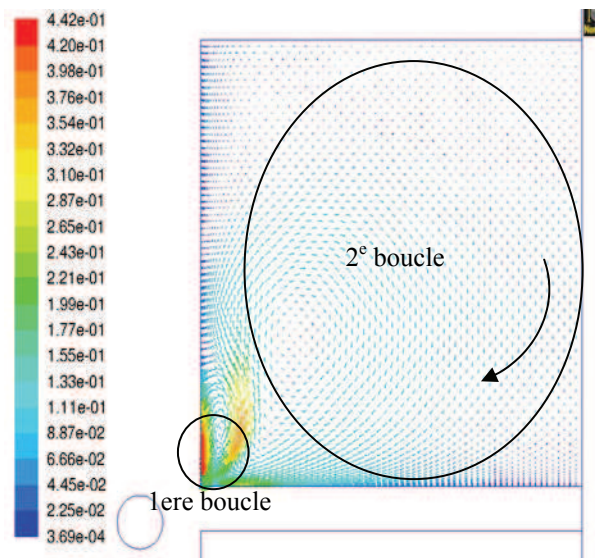


$f=300kHz$

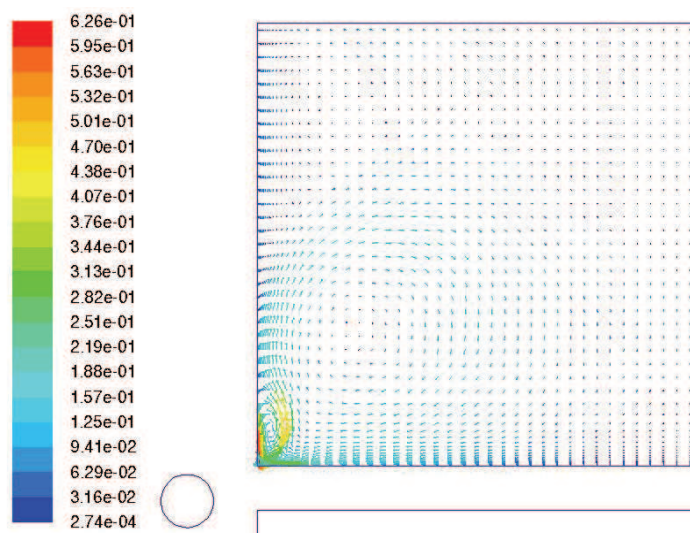
La grande boucle de sens antihoraire dont nous avons parlé en paragraphe 5.3.2.a du Chapitre 5 est beaucoup plus étendue pour les grandes fréquences ($300kHz$) que pour les basses fréquences ($5kHz$). La seconde boucle, de sens horaire, existe dans le coin inférieur gauche tends à disparaître pour les grandes fréquences alors qu'une troisième circulation devient visible ç basse fréquence. La circulation en sens antihoraire prédomine à haute fréquence.



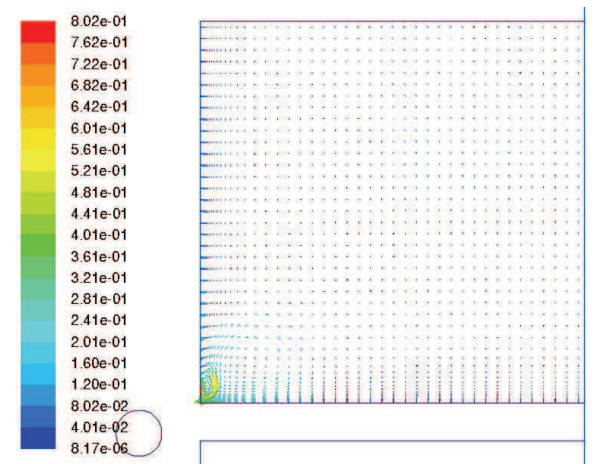
$f=5kHz$



$f=25kHz$



$f=50kHz$



$f=300kHz$

On remarque une première boucle, petite et de sens antihoraire localisée juste au niveau de la sortie la sortie (paragraphe 5.3.2.b du Chapitre 5). La seconde est beaucoup plus importante pour les moyennes et hautes fréquences (25-300kHz) où elle tend à écraser la première boucle. La aussi on note une zone de recirculation dans le coin inférieur gauche, plus visible en basse fréquence. La circulation dans le sens horaire prédomine à haute fréquence.

**Annexe F. Puissance induite dans le silicium et le graphite
pour les configurations A, B, C, D, et E**

Le Tableau F 1 présente les puissances induites dans le silicium et le graphite, dans le cas des différentes configurations 3D étudiées (Chapitre 4, paragraphe 4.2.3.b), calculées avec Comsol.

	F = 25kHz					F = 30kHz				
	U(V)	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)	U(V)	I _{eff} (A)	P _{silicium} (W)	P _{graphite} (W)	P _{inducteur} (W)
Config. A, h _S = 5cm	55	1008	2776	8912	5572	64.5	10044	2875.42	10965	6236
Config. A', h _S = 5cm	74	1082	2127.18	10341.68	6637.7	84	1064	1998.70	11346.40	4023
Config. B, h _{Si} =5cm	74	1043	3140,20	5856,78	3798,5	90	1062	3535 ;72	7666,41	4014,37
Config. B, h _{Si} =10cm	74	1029	3171.08	5802.99	55.19	90	1055	3458.84	7499.66	1236.59
Config. C, h _S = 5cm	72	1058	5500	856,35	5290,31	82	1010	5614	1088,22	5212,66
Config. C (avec resistor haut)	72	1051	5521.49	856,56 42,91*	5322.03	82.2	1027	5591.91	1089.72 51,67*	5404.64
Config. C, h _{Si} =10cm	80	1077	4088.68	1200.67 18.19*	6441.79	90	1047	4098.64	1500.8 21.79*	6928.17
Config. D, h _S = 5cm	70	1051	5616.45	826 46.36*	7453	80	1032	5867.31	1070.65 57.15*	6279.97
Config. E (sans res haut) h _S = 5cm	70	1043	5871.33	850.34	4289.84	80	997	6031.58	1083.17	4102 ?39
Cas D (2e resistor haut) h _S = 5cm	70	1077	5303,01	809,33 46,67*	5435,29	80	1030	5752,62	1028,37 59,07*	5475,71

Tableau F 1 : Puissances Joule dans le graphite et le silicium, calculées pour I_{eff}~1000A et F=25 et 30 kHz.

* : Puissance induite dans le résistor haut.

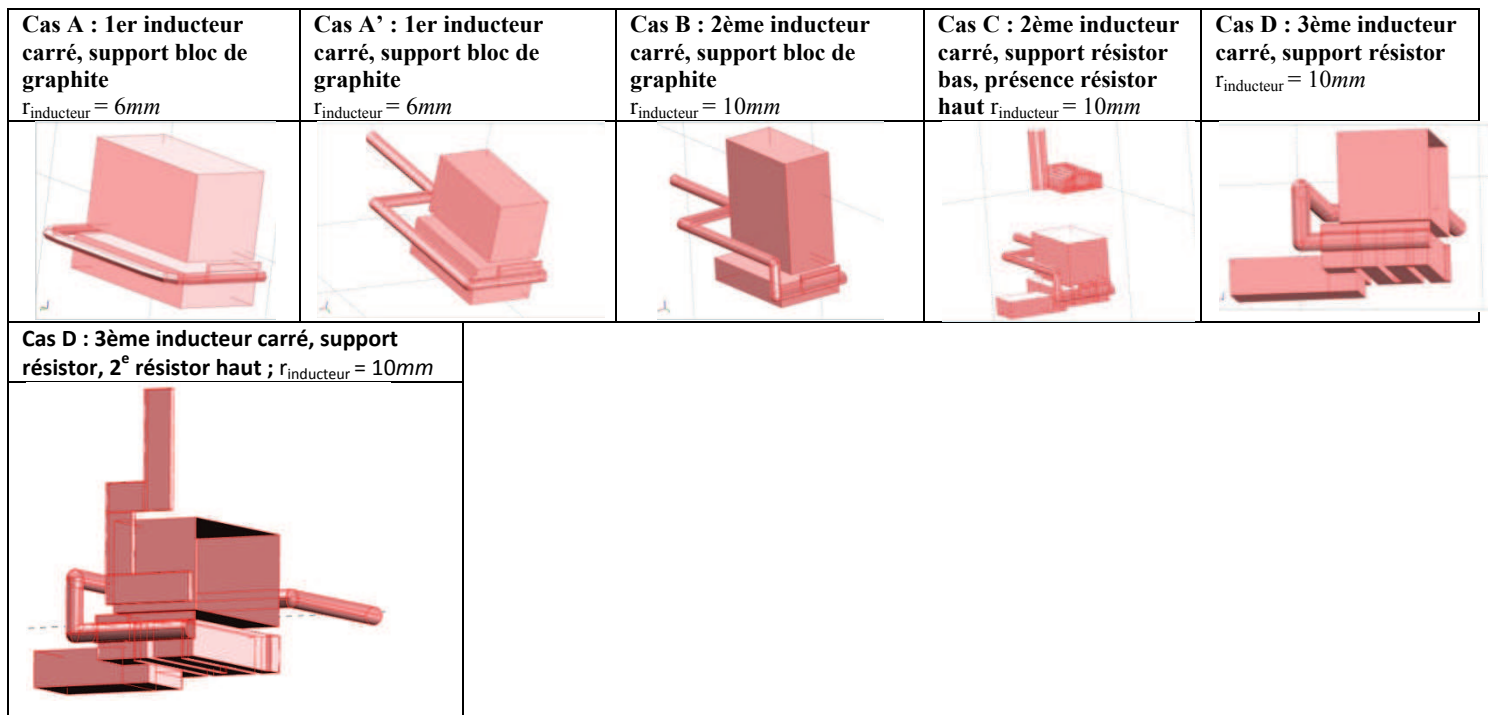
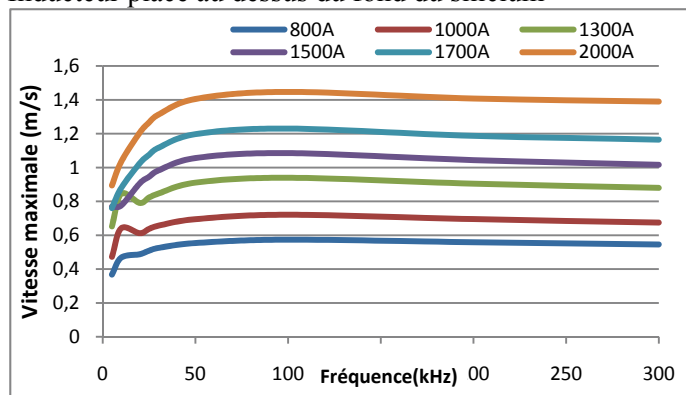


Figure F 1 : Géométries des différentes configurations.

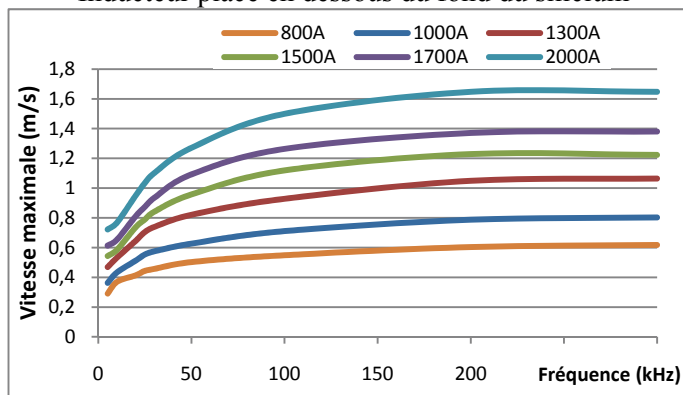
Annexe G. Vitesse moyenne de brassage

Vitesses calculées dans le silicium liquide en configurations 2D axisymétriques : inducteur placé au dessus du fond du silicium (colonne de gauche) et inducteur placé en dessous du fond du silicium (colonne de droite).

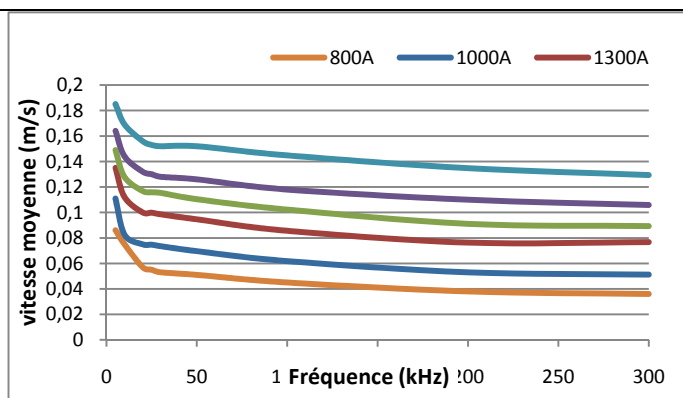
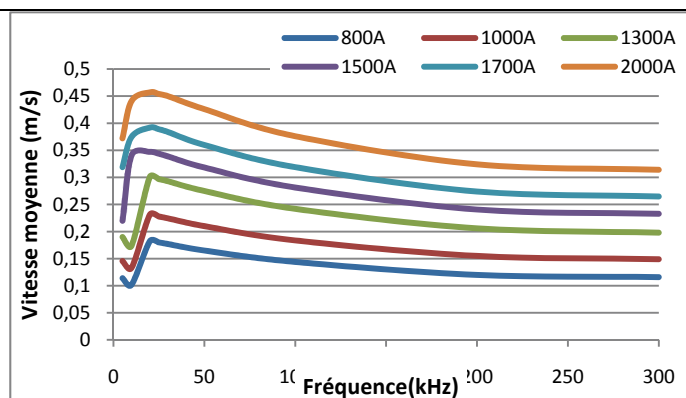
Inducteur placé au dessus du fond du silicium



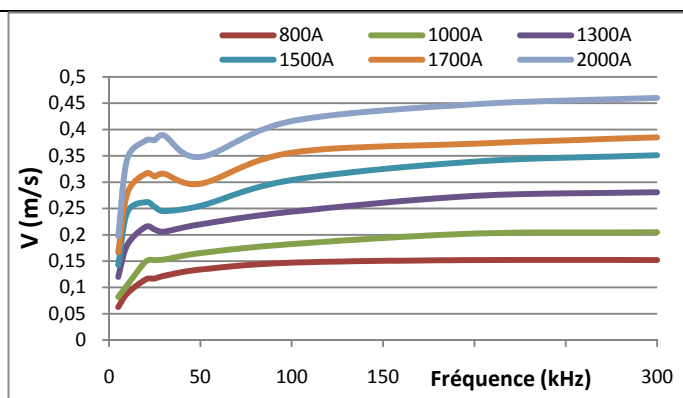
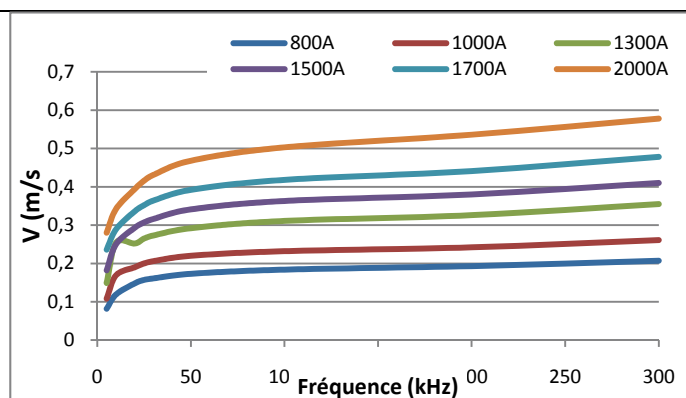
Inducteur placé en dessous du fond du silicium



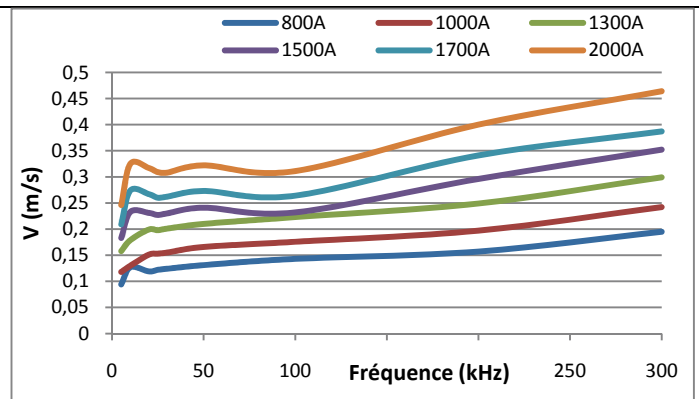
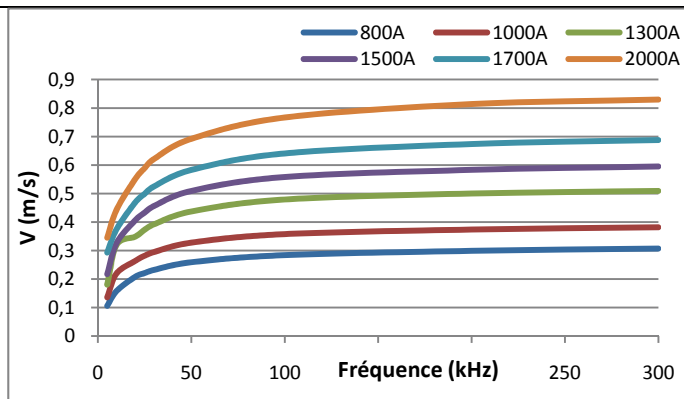
Vitesse maximale dans le silicium



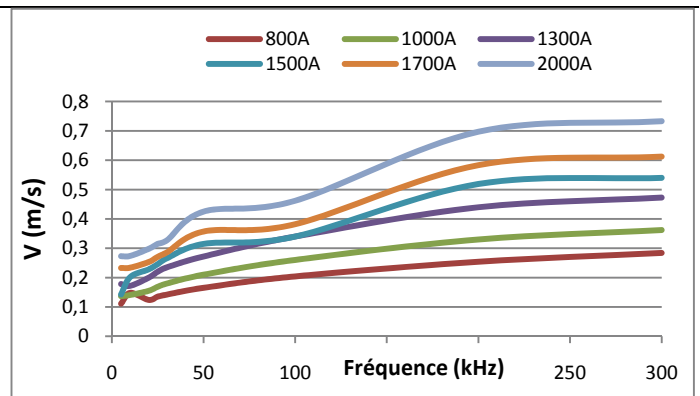
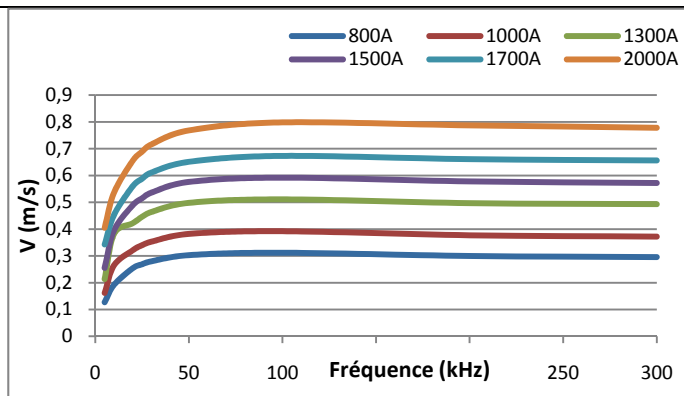
Vitesse moyenne dans le silicium



Vitesse moyenne à 200μm du fond du silicium



Vitesse moyenne à $500\mu\text{m}$ du fond du silicium



Vitesse moyenne à 1mm du fond du silicium

**Annexe H. Brassage au sein du silicium : cas où l'inducteur
est décalé par rapport au silicium**

Ces calculs ont été réalisés en 2D axisymétrique pour une fréquence $f=100\text{ kHz}$ et un courant $I=1300\text{ A}$. Les dimensions du silicium sont : diamètre = 20 cm et hauteur = 5 cm .

H.1. Configuration axisymétrique de l'inducteur au dessus du fond du silicium

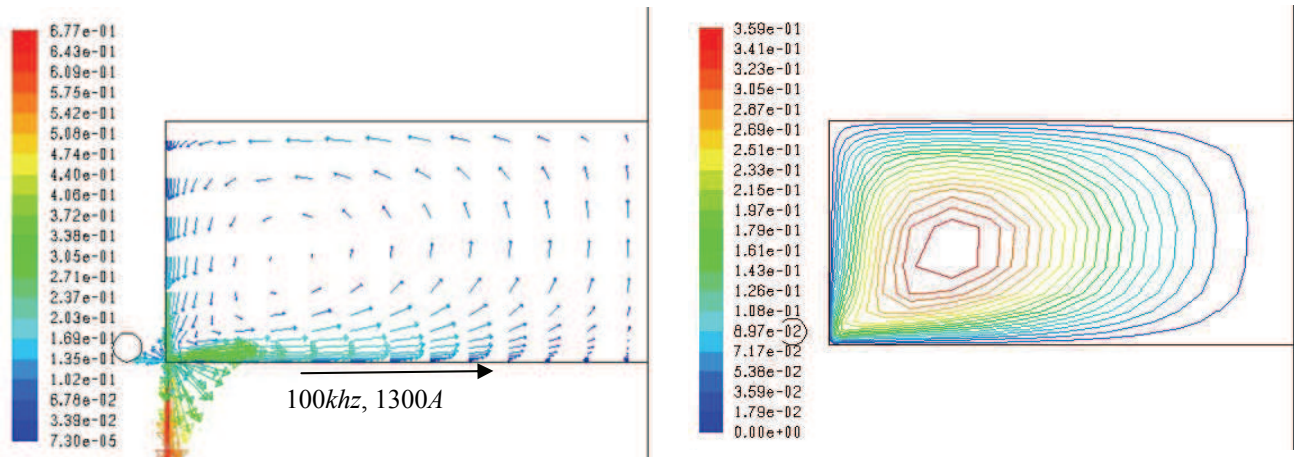


Figure H 1 : Champ de vitesse en m/s (à gauche) et lignes de courant en kg/s (à droite) pour la configuration axisymétrique de l'inducteur au dessus du fond du silicium. La bobine est alignée avec le fond du silicium.

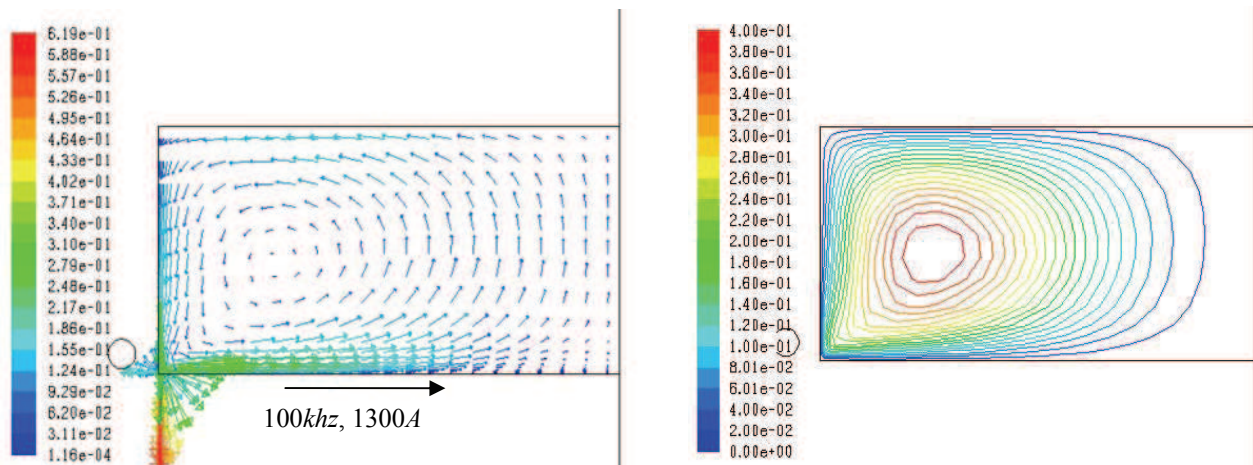


Figure H 2: Champ de vitesse en m/s (à gauche) et lignes de courant en kg/s (à droite) pour la configuration axisymétrique de l'inducteur en dessous du fond du silicium. La bobine est décalée de 1 mm au dessus du bas du creuset par rapport au cas présenté en Figure H 1.

Pour la configuration de l'inducteur placé au dessus du fond du silicium, le sens du brassage reste inchangé dans les deux cas que nous avons considérés.

H.2. Configuration axisymétrique de l'inducteur en dessous du fond du silicium

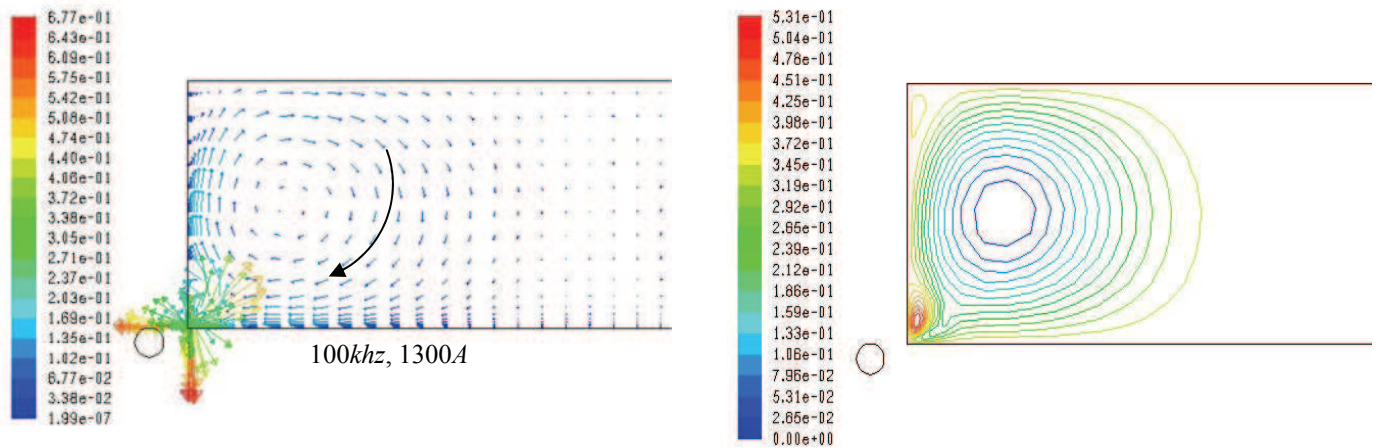


Figure H 3 : Champ de vitesse en m/s (à gauche) et lignes de courant en kg/s (à droite) pour la configuration axisymétrique de l'inducteur alignée avec le fond du silicium.

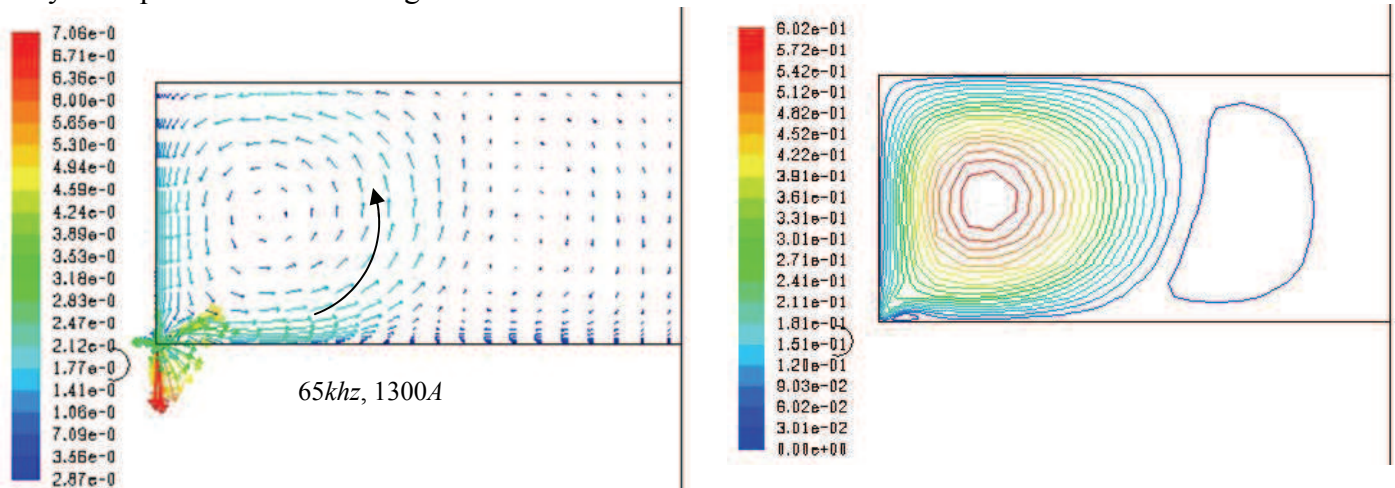


Figure H 4 : Champ de vitesse en m/s (à gauche) et lignes de courant en kg/s (à droite) pour la configuration axisymétrique de l'inducteur décalé de 1mm par rapport au fond du silicium.

Pour la configuration de l'inducteur décalé de 1mm en dessous du fond du silicium, on constate que le sens de brassage reste inchangé tant que la fréquence est inférieure à 65kHz. Au-delà de cette valeur, le brassage a lieu en sens inverse.