



HAL
open science

Modélisation des phénomènes de transport solutal et étude d'un dispositif de brassage pour la purification du silicium photovoltaïque

Marc Chatelain

► **To cite this version:**

Marc Chatelain. Modélisation des phénomènes de transport solutal et étude d'un dispositif de brassage pour la purification du silicium photovoltaïque. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université de Lyon, 2016. Français. NNT : 2016LYSEI105 . tel-01940915

HAL Id: tel-01940915

<https://theses.hal.science/tel-01940915v1>

Submitted on 30 Nov 2018

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.



N° d'ordre NNT : 2016LYSEI105

THESE de DOCTORAT **DE L'UNIVERSITE DE LYON**
opérée au sein de
I'INSA Lyon

Ecole Doctorale N° 162
Mécanique, Energétique, Génie civil et Acoustique (MEGA)

Spécialité de doctorat : Mécanique des fluides

Soutenue publiquement le 28/10/2016, par :
Marc Chatelain

Modélisation des phénomènes de transport
solutal et étude d'un dispositif de brassage
pour la purification du silicium
photovoltaïque.

Devant le jury composé de :

Delannoy, Yves	Professeur, Grenoble INP, SIMAP	Rapporteur
M'Hamdi, Mohammed	Directeur de recherche, SINTEF, Oslo (Norvège)	Rapporteur
Gobin, Dominique	Directeur de recherche CNRS, EM2C, Saclay	Président
Mangelinck-Noël, Nathalie	Chargée de recherche CNRS, IM2NP, Marseille	Examinatrice
Millet, Séverine	Maître de Conférences, UCBL Lyon I, LMFA	Examinatrice
Eckert, Sven	Chargé de recherche, HZDR, Dresde (Allemagne)	Examineur
Botton, Valéry	Professeur, INSA Lyon, LMFA	Directeur de thèse
Albaric, Mickael	Ingénieur de recherche, CEA	Co-encadrant

Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2016-2020

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	CHIMIE DE LYON http://www.edchimie-lyon.fr Sec : Renée EL MELHEM Bat Blaise Pascal 3 ^e étage secretariat@edchimie-lyon.fr Insa : R. GOURDON	M. Stéphane DANIELE Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de Lyon IRCELYON-UMR 5256 Équipe CDFA 2 avenue Albert Einstein 69626 Villeurbanne cedex directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE http://edeea.ec-lyon.fr Sec : M.C. HAVGOUDOUKIAN Ecole-Doctorale.eea@ec-lyon.fr	M. Gérard SCORLETTI Ecole Centrale de Lyon 36 avenue Guy de Collongue 69134 ECULLY Tél : 04.72.18 60.97 Fax : 04 78 43 37 17 Gerard.scorletti@ec-lyon.fr
E2M2	EVOLUTION, ECOSYSTEME, MICROBIOLOGIE, MODELISATION http://e2m2.universite-lyon.fr Sec : Safia AIT CHALAL Bat Darwin - UCB Lyon 1 04.72.43.28.91 Insa : H. CHARLES Safia.ait-chalal@univ-lyon1.fr	Mme Gudrun BORNETTE CNRS UMR 5023 LEHNA Université Claude Bernard Lyon 1 Bât Forel 43 bd du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cédex Tél : 06.07.53.89.13 e2m2@univ-lyon1.fr
EDISS	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTE http://www.ediss-lyon.fr Sec : Safia AIT CHALAL Hôpital Louis Pradel - Bron 04 72 68 49 09 Insa : M. LAGARDE Safia.ait-chalal@univ-lyon1.fr	Mme Emmanuelle CANET-SOULAS INSERM U1060, CarMeN lab, Univ. Lyon 1 Bâtiment IMBL 11 avenue Jean Capelle INSA de Lyon 696621 Villeurbanne Tél : 04.72.68.49.09 Fax :04 72 68 49 16 Emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr
INFOMATHS	INFORMATIQUE ET MATHEMATIQUES http://infomaths.univ-lyon1.fr Sec : Renée EL MELHEM Bat Blaise Pascal 3 ^e étage infomaths@univ-lyon1.fr	Mme Sylvie CALABRETTO LIRIS – INSA de Lyon Bat Blaise Pascal 7 avenue Jean Capelle 69622 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72. 43. 80. 46 Fax 04 72 43 16 87 Sylvie.calabretto@insa-lyon.fr
Matériaux	MATERIAUX DE LYON http://ed34.universite-lyon.fr Sec : M. LABOUNE PM : 71.70 –Fax : 87.12 Bat. Saint Exupéry Ed.materiaux@insa-lyon.fr	M. Jean-Yves BUFFIERE INSA de Lyon MATEIS Bâtiment Saint Exupéry 7 avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72.43 71.70 Fax 04 72 43 85 28 Ed.materiaux@insa-lyon.fr
MEGA	MECANIQUE, ENERGETIQUE, GENIE CIVIL, ACOUSTIQUE http://mega.universite-lyon.fr Sec : M. LABOUNE PM : 71.70 –Fax : 87.12 Bat. Saint Exupéry mega@insa-lyon.fr	M. Philippe BOISSE INSA de Lyon Laboratoire LAMCOS Bâtiment Jacquard 25 bis avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72 .43.71.70 Fax : 04 72 43 72 37 Philippe.boisse@insa-lyon.fr
ScSo	ScSo* http://recherche.univ-lyon2.fr/scso/ Sec : Viviane POLSINELLI Brigitte DUBOIS Insa : J.Y. TOUSSAINT viviane.polsinelli@univ-lyon2.fr	Mme Isabelle VON BUELTZINGLOEWEN Université Lyon 2 86 rue Pasteur 69365 LYON Cedex 07 Tél : 04.78.77.23.86 Fax : 04.37.28.04.48

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

Résumé

Cette étude s'intéresse à la modélisation de la ségrégation des impuretés lors des procédés de solidification dirigée du silicium pour l'industrie photovoltaïque. Il s'agit d'un problème multi-physiques et multi-échelles qui nécessite des modèles efficaces pour pouvoir traiter des configurations industrielles en 3D. La première partie de l'étude porte sur le développement de fonctions de paroi solutales dans le but d'estimer la ségrégation sans résoudre numériquement la couche limite solutale. Un modèle analytique est alors utilisé pour estimer le paramètre convecto-diffusif à partir de la contrainte de frottement à l'interface solide/liquide. L'approche proposée consiste à coupler une simulation hydrodynamique de la convection dans la phase liquide et un calcul analytique de la ségrégation. Cette démarche est validée sur un cas de référence en 2D. Le modèle développé fournit une estimation pertinente de la concentration dans un lingot solidifié avec une vitesse imposée, y compris sur un maillage ne résolvant pas la couche limite solutale. La deuxième partie de l'étude concerne l'utilisation d'un système de brassage mécanique dans le but de favoriser la ségrégation des impuretés. Des simulations transitoires de brassage sont réalisées avec le logiciel FLUENT. Les résultats sont comparés à des mesures de champ de vitesse par PIV effectuées sur une maquette en eau, afin de valider le modèle hydrodynamique. La simulation de brassage est ensuite couplée à un calcul de ségrégation en régime quasi-permanent qui permet d'analyser l'influence de l'écoulement sur la couche limite solutale. Dans la dernière partie de l'étude, une simulation de solidification dirigée 3D instationnaire en régime de convection forcée, intégrant la thermique du four, est réalisée. Un modèle empirique de forces volumiques est alors proposé pour décrire l'écoulement lié au brassage dans le silicium liquide. Une première tentative d'estimation des ségrégations par l'approche analytique est ensuite mise en œuvre.

Mots clés : ségrégation, solidification dirigée, couche limite solutale, fonction de paroi, brassage mécanique, silicium photovoltaïque.

Abstract

The present study focuses on solute segregation during photovoltaic silicon directional solidification. This multi-physics problem involves various spatial and temporal scales. The numerical simulation of this process requires efficient models, especially for 3D industrial configurations. In the first part of the study, solute wall functions are derived from a scaling analysis in order to estimate the segregations without numerical resolution of the solute boundary layer. The method is based on the coupling of an hydrodynamic simulation of convection in the liquid phase and an analytical segregation computation. The developed analytical model provides an estimation of the convecto-diffusive parameter from the wall shear-stress at the solid/liquid interface. A reference case in 2D with imposed solidification rate is used for validation purposes. The developed model provides a meaningful estimation of concentration fields in the ingots. In a second part, we focus on segregation optimization by a mechanical stirrer. Transient stirring simulations, using a sliding mesh technique, are achieved with FLUENT commercial software. Results are compared to PIV velocity field measurements performed on an experimental setup using water. A segregation computation in a quasi-steady regime is then implemented in the stirring simulation. The effect of the stirring parameters are directly observed on the solute boundary layer at the solid/liquid interface. In a third part, a transient solidification simulation, including furnace thermal conditions, is performed in a 3D configuration with forced convection. The flow generated by the impeller is described thanks to an empirical model based on body forces. A first attempt is finally made to retrieve segregations in the ingot with the developed analytical method.

Keywords : segregation, directional solidification, solute boundary layer, wall function, mechanical stirring, photovoltaic silicon.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, Valéry Botton, et mon encadrant, Mickael Albaric, pour leurs conseils et leur aide tout au long de ces trois années. Je n'aurais pas pu espérer un meilleur encadrement, tant pour leur disponibilité, leur motivation et leur expertise scientifique.

Je remercie également les rapporteurs, M. Yves Delannoy et M. Mohammed M'Hamdi, pour l'attention avec laquelle ils ont relu et évalué ce rapport, ainsi que l'ensemble des membres du jury : Mme Nathalie Mangelinck-Noël, Mme Séverine Millet, M. Dominique Gobin et M. Sven Eckert, qui ont accepté d'évaluer ce travail de thèse.

Un grand merci à David Pelletier, pour sa bonne humeur et son aide inestimable sur les simulations et les aspects numériques.

Je souhaite également remercier Daniel Henry et Jean-Paul Garandet qui ont suivi avec attention et bienveillance ces travaux et dont les réflexions scientifiques pertinentes m'ont beaucoup apporté.

Merci à Benjamin Cariteau, Danièle Abdo et Massimo Borrelli pour toute leur aide et le temps passé pour la réalisation des mesures PIV.

Je remercie aussi chaleureusement Claire Audoin, Victorien Thenault, Séverine Millet et Soufyen Rhouzlane, qui ont directement collaboré à ces travaux de recherche et avec qui j'ai pu échanger à de nombreuses occasions.

Ces trois années n'auraient pas été les mêmes sans cette super ambiance de travail dans les laboratoires de l'INES. Pour cela un grand merci à l'ensemble de mes collègues du LMPS et du LCIPV. Merci en particulier à ceux avec qui j'ai partagé plein de bons moments comme les concours top chefs, les sorties en montagne ou les repas au lac : Maxime, Nico, Alex, Ramzi, Vanessa, Arthur, Sylvain, Séverine, Camille, Nastasja, Marion, Damien, Nelly, J.D, Étienne, Alex, Gautier et tous les autres qui sauront se reconnaître.

Enfin, un immense merci à ma famille qui m'a toujours soutenu et encouragé dans mes choix et à Mathilde, pour toutes ses années passées à mes côtés et pour toutes celles à venir.

Table des matières

Résumé	5
Abstract	7
Remerciements	9
Table des matières	11
Liste des symboles	15
Liste des tableaux	19
Liste des figures	21
Introduction	29
1 État de l'art	33
1.1 Ségrégation solutale lors de la solidification dirigée	34
1.1.1 Phénomènes physiques liés à la solidification dirigée	34
1.1.1.1 Phénomènes de transport et équations générales	34
1.1.1.2 Diagramme des phases et coefficient de ségrégation	36
1.1.1.3 Stabilité d'un front de solidification lisse	37
1.1.2 Théorie de la ségrégation solutale	38
1.1.2.1 Équation de <i>Scheil-Gulliver</i>	38
1.1.2.2 Régime diffusif pur	39
1.1.2.3 Régime convecto-diffusif	41
1.1.3 Couche limite solutale : une analyse en ordres de grandeur	43
1.1.3.1 Description de la couche limite hydrodynamique	43
1.1.3.2 Formulation analytique de la couche limite solutale	45
1.1.4 Simulation numérique de la solidification	49
1.2 Brassage et agitation	51
1.2.1 Éléments de théorie sur les systèmes d'agitation	51
1.2.2 Choix de l'agitateur pour le dispositif LMPS	54
1.2.3 Modélisation numérique d'un système d'agitation	54
1.3 Mesure de champ de vitesse par la technique PIV	57
1.3.1 Principe général	57
1.3.2 Paramètres et protocole expérimental	58
1.3.3 Mesures de champ de vitesse en cuve agitée	58
1.4 Conclusion	60
2 Développement de fonctions de paroi solutales	61
2.1 Présentation du modèle numérique 2D	62
2.1.1 Description du problème	62
2.1.2 Équations, conditions aux limites et maillage dynamique	64

2.1.2.1	Équations générales	64
2.1.2.2	Modélisation de la turbulence	64
2.1.2.3	Traitement des parois	66
2.1.2.4	Conditions aux limites et maillage dynamique	66
2.1.3	Validité des résultats et influence des paramètres numériques	68
2.1.3.1	Étude du champ de vitesse en régime stationnaire	68
2.1.3.2	Calcul transitoire et paramètres numériques	70
2.2	Résultats de l'étude paramétrique	73
2.2.1	Analyse du champ de vitesse	73
2.2.2	Analyse de la concentration dans le liquide	75
2.2.3	Analyse de la concentration dans le solide	78
2.3	Modèle analytique de ségrégation	81
2.3.1	Prise en compte de la turbulence à l'échelle de la CLS	81
2.3.1.1	Analyse en ordres de grandeur modifiée	82
2.3.1.2	Comparaison avec les résultats numériques	86
2.3.2	Description des ségrégations latérales à l'aide du modèle analytique	88
2.3.3	Réponse aux instationnarités	91
2.3.3.1	Instationnarités liées à la convection	91
2.3.3.2	Fluctuations de la vitesse de solidification	92
2.3.4	Calcul des champs de concentration dans le solide	95
2.3.4.1	Méthode générale	95
2.3.4.2	Application au cas 2D	97
2.3.5	Ségrégation de différentes impuretés	103
2.3.5.1	Principe de calcul	103
2.3.5.2	Application aux simulations	104
2.4	Conclusion	106
3	Étude de la ségrégation sous brassage mécanique	107
3.1	Caractérisation expérimentale du champ de vitesse	108
3.1.1	Analyse dimensionnelle	108
3.1.1.1	Paramètres du problème	108
3.1.1.2	Nombres adimensionnels	109
3.1.1.3	Critères de similitudes	110
3.1.2	Procédure expérimentale	112
3.1.2.1	Description du système expérimental	112
3.1.2.2	Définition du plan d'essai	113
3.1.2.3	Procédure de traitement PIV	114
3.1.3	Résultats expérimentaux	117
3.1.3.1	Caractérisation des champs moyens	117
3.1.3.2	Étude paramétrique	119
3.1.3.3	Estimation des incertitudes de mesure	122
3.1.3.4	Caractérisation des tourbillons détachés	124
3.2	Simulation de la ségrégation sous brassage	126
3.2.1	Présentation de la méthode numérique	126
3.2.1.1	Simulation du brassage par maillage glissant	126
3.2.1.2	Simulation de la ségrégation en régime quasi-permanent	127
3.2.1.3	Procédure de calcul	129
3.2.1.4	Discretisation spatiale et temporelle	130

3.2.2	Validation de la méthode numérique	131
3.2.2.1	Convergence du calcul transitoire	131
3.2.2.2	Modèle de turbulence et traitement des parois	132
3.2.2.3	Similitude de <i>Reynolds</i>	133
3.2.3	Résultats de l'étude paramétrique	135
3.2.3.1	Plan d'essai numérique	135
3.2.3.2	Étude hydrodynamique	135
3.2.3.3	Influence du brassage sur la ségrégation	138
3.2.3.4	Application du modèle analytique	142
3.3	Conclusion	145
4	Simulation de la solidification dirigée sous brassage mécanique	147
4.1	Simulation du procédé en convection naturelle	148
4.1.1	Configuration étudiée	148
4.1.1.1	Description du four	148
4.1.1.2	Cycle thermique	149
4.1.2	Modèles numériques	150
4.1.2.1	Transferts de chaleur	150
4.1.2.2	Modèle enthalpique	151
4.1.2.3	Discrétisation spatiale et temporelle	153
4.1.3	Résultats numériques de solidification	153
4.2	Simulation du procédé avec brassage mécanique	157
4.2.1	Modèle de forces volumiques	157
4.2.1.1	Bilan de quantité de mouvement	157
4.2.1.2	Ajustement de la force axiale	159
4.2.2	Simulation de la solidification sous brassage	162
4.3	Estimation de la ségrégation	167
4.3.1	Procédure de traitement	167
4.3.2	Ségrégation en convection naturelle	168
4.3.3	Ségrégation avec brassage mécanique	172
4.4	Conclusion	176
	Bilan et perspectives	177
	Références	181
	A Synthèse des mesures PIV	189
	B Résultats expérimentaux et numériques de brassage	193
	C Comparaison expérimentale et numérique de profils de ségrégation	199
C.1	Procédure expérimentale	199
C.2	Etude numérique	201
C.2.1	Paramètres de simulation	201
C.2.2	Comparaison des résultats	201
	D Paramètres physico-chimiques	205

Liste des symboles

Abréviations

CFD : **C**omputational **F**luid **D**ynamics
CLS : **C**ouche **L**imite **S**olutale
DNS : **D**irect **N**umerical **S**imulation
FFT : **F**ast **F**ourier **T**ransform
FLMSN : **F**édération **L**yonnaise de **M**odélisation et **S**ciences **N**umériques
IBC : **I**mpeller **B**oundary **C**ondition
INES : **I**nstitut **N**ational de l'**E**nergie **S**olaire
IRPHE : **I**nstitut de **R**echerche sur les **P**hénomènes **H**ors **É**quilibre
ITRPV : **I**nternational **T**echnology **R**oadmap for **P**hotovoltaic
LDV : **L**aser **D**oppler **V**elocimetry
LES : **L**arge **E**ddy **S**imulation
LMFA : **L**aboratoire de **M**écanique des **F**luides et d'**A**coustique
LMPS : **L**aboratoire des **M**atériaux et **P**rocédés pour le **S**olaire
MFR : **M**ultiple **F**rames of **R**eferences
PIV : **P**article **I**mages **V**elocimetry
RANS : **R**eynolds **A**verage **N**avier-**S**tokes
RSM : **R**eynolds **S**tress **M**odel
SCV : **S**ous **C**ouche **V**isqueuse
SIMAP : **L**aboratoire de **S**cience et **I**ngénierie des **M**atériaux et **P**rocédés
SPH : **S**moothed **P**article **H**ydrodynamics

Notations

$\langle \cdot \rangle$ opérateur de moyenne spatiale [-]
 $\overline{\cdot}$ opérateur de moyenne temporelle [-]

Symboles en lettres grecques

α amplitude des fluctuations de vitesse de solidification [-]
 β coefficient de dilatation à pression constante [K⁻¹]
 Δ paramètre convecto-diffusif [-]
 δ épaisseur de la couche limite solutale [m]
 δ_{ij} symbole de *Kronecker* [-]

δ_{scv}	épaisseur de la sous-couche visqueuse	[m]
δ_v	épaisseur de la couche limite hydrodynamique	[m]
ε	taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente	[m ² ·s ⁻³]
ε_{emis}	émissivité	[-]
γ	tension de surface	[N·m ⁻¹]
κ	constante de <i>Von Karman</i>	[-]
λ	conductivité thermique	[W·m ⁻¹ ·K ⁻¹]
μ	viscosité dynamique	[Pa·s]
μ_t	viscosité dynamique turbulente	[Pa·s]
∇	opérateur de dérivation	[-]
ν	viscosité cinématique	[m ² ·s ⁻¹]
ν_t	viscosité cinématique turbulente	[m ² ·s ⁻¹]
ω_f	pulsation des fluctuations de vitesse de solidification	[rad·s ⁻¹]
$\vec{\omega}$	champ de vorticité du fluide	[s ⁻¹]
Φ	paramètre adimensionnel des courbes caractéristiques d'agitateurs	[-]
Φ_m	flux de masse à travers une surface	[kg·s ⁻¹]
ϕ_m	flux de masse à travers une facette élémentaire dS	[kg·s ⁻¹]
ρ	masse volumique	[kg·m ⁻³]
σ	constante de <i>Stefan-Boltzmann</i>	[W·m ⁻² ·K ⁻⁴]
τ	contrainte de frottement pariétale	[Pa]

Symboles en lettres romaines

A_1	aire de l'interface solide/liquide du modèle 3D	[m ²]
A_2	aire de la surface libre du modèle 3D	[m ²]
A_{mushy}	coefficient d'amortissement de la zone pâteuse	[kg·m ⁻³ ·s ⁻¹]
B	paramètre adimensionnel de ségrégation	[-]
C_f	coefficient de frottement	[-]
C_L	fraction massique d'impuretés dans la phase liquide	[-]
C_L^∞	fraction massique dans la phase liquide, loin du front de solidification	[-]
C_L^I	fraction massique dans la phase liquide à l'interface solide/liquide	[-]
C_S	fraction massique d'impuretés dans la phase solide	[-]
C_S^I	fraction massique dans la phase solide à l'interface solide/liquide	[-]
D	diffusivité moléculaire	[m ² ·s ⁻¹]
D_t	diffusivité turbulente	[m ² ·s ⁻¹]

Fr	nombre de <i>Froude</i>	[-]
H	enthalpie	[J·kg ⁻¹]
H	hauteur de la cavité	[m]
L	chaleur latente de changement de phase	[J·kg ⁻¹]
L	largeur de la cavité	[m]
N	vitesse de rotation de l'agitateur	[rad·s ⁻¹]
Np	nombre de puissance	[-]
P	puissance dissipée par l'agitateur	[W]
R	rayon de courbure du front de solidification	[m]
Re	nombre de <i>Reynolds</i>	[-]
S_i	terme source d'impuretés	[kg·m ⁻³ ·s ⁻¹]
S_m	terme source de masse	[kg·m ⁻³ ·s ⁻¹]
Sc_t	nombre de <i>Schmidt</i> turbulent	[-]
T	température	[K]
T_l	température du liquidus	[K]
T_s	température du solidus	[K]
\vec{U}	vecteur déplacement mesuré sur les images de particules	[pixels]
V_1	volume des mailles à l'interface solide/liquide du modèle 3D	[m ³]
V_2	volume des mailles à la surface libre du modèle 3D	[m ³]
V_I	vitesse de solidification	[m·s ⁻¹]
V_{tip}	vitesse en bout de pale	[m·s ⁻¹]
We	nombre de <i>Weber</i>	[-]
c	distance entre l'agitateur et l'interface solide/liquide	[m]
c_p	capacité thermique massique	[J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹]
d	diamètre de l'agitateur	[m]
f_L	fraction liquide	[-]
f_S	fraction solide	[-]
g	pesanteur	[m·s ⁻²]
h	déformation de la surface libre	[m]
h_j	taille de maille suivant la direction j (x, y ou z)	[m]
k	énergie cinétique turbulente	[m ² ·s ⁻²]
k_0	coefficient de ségrégation	[-]
k_{eff}	coefficient de partage effectif	[-]

m_L	pente du liquidus	[-]
m_S	pente du solidus	[-]
p	pression	[Pa]
t_c	temps caractéristique de la diffusion à l'échelle de δ	[s]
\vec{u}	vecteur vitesse du fluide	[m·s ⁻¹]
u	composante du champ de vitesse suivant la direction x	[m·s ⁻¹]
u_τ	vitesse de frottement	[m·s ⁻¹]
v	composante du champ de vitesse suivant la direction y	[m·s ⁻¹]
w	composante du champ de vitesse suivant la direction z	[m·s ⁻¹]
x_a	abscisses des points d'arrêt à l'interface solide/liquide	[m]
x_d	abscisses des points de décollement à l'interface solide/liquide	[m]
z_f	coordonnée verticale du front de solidification	[m]
z_L	distance au front de solidification dans la phase liquide	[m]
z_T	longueur caractéristique du transitoire initial de ségrégation	[m]

Liste des tableaux

1.1	Coefficients de diffusion en phase liquide D et de ségrégation k_0 dans le silicium pour différentes espèces chimiques [37, 56, 69, 86].	37
2.1	Principales hypothèses du modèle transitoire de ségrégation dans une cavité entraînée en 2D.	63
2.2	Configurations des calculs transitoires. Nombres de <i>Reynolds</i> et vitesses d'entraînement associées.	73
2.3	Propriétés des impuretés (phosphore, aluminium et fer) [37, 56, 69, 86].	104
2.4	Coefficients de partage effectifs et paramètres convecto-diffusif interpolés.	104
2.5	Coefficients de partage effectifs déterminés numériquement et analytiquement.	105
3.1	Nombres adimensionnels caractéristiques du système de brassage.	110
3.2	Propriétés physiques de l'eau à 20°C et du silicium liquide à 1414°C.	111
3.3	Configurations de brassage étudiées expérimentalement par PIV.	114
3.4	Valeurs de z^+ obtenues sur les différentes parois du modèle (cas $H = 15$ cm et $N = 50$ rpm).	133
3.5	Configurations de brassage étudiées numériquement.	135
3.6	Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse moyenne obtenue numériquement sur une rotation complète par rapport à la valeur mesurée, dans le plan vertical $v1$ ($y = 0$ cm).	136
3.7	Amplitudes moyennes des variations temporelles de τ et Δ au cours d'une rotation; valeurs moyennes du paramètre convecto-diffusif sur le front de solidification et pulsation adimensionnelle caractéristique du système.	141
4.1	Masse volumique, conductivité thermique, capacité thermique massique et émissivité à 1687 K, du silicium [43, 55, 67, 77, 84, 96] et des matériaux présents dans le four (propriétés issues de données constructeur).	149
4.2	Forces volumiques obtenues par le théorème de la quantité de mouvement.	159
4.3	Forces axiales issues du théorème de la quantité de mouvement et ajustées.	159
A.1	Synthèse des calculs PIV pour la configuration 1 ($N = 35$ rpm et $H = 15$ cm).	189
A.2	Synthèse des calculs PIV pour la configuration 2 ($N = 70$ rpm et $H = 15$ cm).	189
A.3	Synthèse des calculs PIV pour la configuration 3 ($N = 170$ rpm et $H = 15$ cm).	190
A.4	Synthèse des calculs PIV pour les configurations 4 à 9.	190
A.5	Gradients moyens $\ \nabla\vec{U}\ _{moyen}$ et maximum $\ \nabla\vec{U}\ _{max}$ et incertitude relative ε_{tot} obtenus pour chaque configuration de mesure.	191
B.1	Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 1 ($H = 15$ cm et $Re = 6.0 \times 10^4$).	196
B.2	Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 2 ($H = 15$ cm et $Re = 1.2 \times 10^5$).	197
B.3	Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$).	197

D.1	Propriétés physico-chimiques du silicium utilisées dans cette étude. Pour la plupart, ces propriétés varient avec la température. Les valeurs indiquées dans ce tableau correspondent à la température de fusion du silicium T_f	205
D.2	Coefficients de ségrégation, k_0 , et diffusivités moléculaires dans le silicium liquide, D , du phosphore, de l'aluminium et du fer [37, 56, 69, 86].	205
D.3	Masse volumique, conductivité thermique, capacité thermique massique et émissivité à 1687K des matériaux présents dans le four de solidification modélisé dans le chapitre 4 (propriétés issues de données constructeur).	205

Liste des figures

1	Schéma d'un procédé d'obtention de wafers de silicium par solidification dirigée dans un creuset puis découpe en briques et en plaquettes.	29
2	Schéma du procédé de purification par solidification dirigée.	30
1.1	Diagramme des phases pour un alliage binaire, pour le cas simple des alliages fortement dilués.	36
1.2	Profils de concentrations normalisés par C_0 prédits par la loi de <i>Scheil-Gulliver</i> , pour différents coefficients de partage k_0	39
1.3	Profils de concentration pour le régime diffusif pur dans les phases solide et liquide obtenus à partir des relations proposées par Tiller et al. [89] et Smith et al. [81].	40
1.4	Variation de la longueur du transitoire initial normalisée ($Z_T = z_T V_I / D_L$) en fonction de Δ . Comparaison des solutions exacte (1.24) et approchée (1.25). Figure extraite de Garandet et al. [39].	42
1.5	Schéma du développement d'une couche limite laminaire le long d'une plaque plane.	44
1.6	Profil de vitesse moyenne normalisée dans une couche limite turbulente pour un écoulement de plaque plane sans gradient de pression longitudinal. Image extraite de Pope [75].	45
1.7	Configuration de cavité entraînée (figure extraite de Garandet et al. [41]).	47
1.8	Évolution du paramètre convecto-diffusif Δ en fonction du paramètre B , d'après la relation (1.47).	48
1.9	Schémas de mobiles d'agitation à débit axial (a) et à débit radial (b). Image extraite des <i>Techniques de l'ingénieur</i> [79].	51
1.10	Proportion entre pompage et turbulence pour différents mobiles d'agitation. Image extraite des <i>Techniques de l'ingénieur</i> [79].	52
1.11	Formes d'écoulements créés par un mobile d'agitation à débit axial. Image extraite des <i>Techniques de l'ingénieur</i> [79].	52
1.12	Exemple de courbes caractéristiques de puissance. Image extraite des <i>Techniques de l'ingénieur</i> [79].	53
1.13	Géométrie du brasseur développé et utilisé au LMPS pour un four de taille G2 (base du creuset $380 \times 380 \text{ mm}^2$).	54
1.14	Exemple de maillage pour le calcul MFR d'un agitateur à pales inclinées. Image extraite de Aubin et al. [2].	56
1.15	Principe de la technique PIV - <i>www.dantecdynamics.com</i>	57
2.1	Schéma de la configuration de cavité entraînée en régime transitoire.	63
2.2	Maillage et conditions aux limites hydrodynamiques du modèle de cavité entraînée.	67
2.3	Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^2$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42].	69
2.4	Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^3$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42] et Erturk et al. [32].	69

2.5	Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^4$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42] et Erturk et al. [32].	69
2.6	Évolution des résidus sur dix pas de temps pour la configuration $Re_L = 10^4$	70
2.7	Évolution du bilan de masse d'impureté au cours du calcul de solidification pour la configuration $Re_L = 10^4$	71
2.8	Profils de vitesse u_x normalisés au centre de la cavité obtenus avec un maillage standard et un maillage raffiné pour $Re_L = 10^4$, à l'issue du calcul stationnaire d'initialisation du champ de vitesse.	72
2.9	Profils de contrainte à l'interface obtenus avec un maillage standard et un maillage raffiné pour une fraction solide $f_S = 44\%$, $Re_L = 10^4$	72
2.10	Amplitude des champs de vitesse ($m \cdot s^{-1}$) à l'instant t_0 , après convergence du calcul stationnaire.	74
2.11	Champ de vitesse vectoriel à l'instant t_0 pour $Re_L = 10^4$	75
2.12	Recirculations secondaires à l'instant t_0 pour $Re_L = 10^4$	75
2.13	Profils de concentration dans la phase liquide C_L au centre de la cavité, à $f_S = 89\%$	76
2.14	Évolution de δ le long de l'interface à $f_S = 44\%$ pour les différents régimes d'écoulement.	77
2.15	Concentration d'impureté (en fraction massique) et champ de vitesse dans la phase liquide à $f_S = 44\%$, pour $Re_L = 10^3$	77
2.16	Fractions massiques d'impureté dans le solide C_S pour les différents régimes d'écoulement étudiés.	79
2.17	Corrélation entre les points d'arrêt et de décollement à l'interface solide/liquide (symboles blancs) et les ségrégations latérales dans le solide, pour des <i>Reynolds</i> de 10^3 (A), 10^4 (B), 10^5 (C) et 10^6 (D).	80
2.18	Profils de ségrégation longitudinale normalisés $\langle C_S \rangle / C_0$ obtenus numériquement pour les différents régimes d'écoulement. Comparaison avec la loi de <i>Scheil</i> (équation (1.12)) et la solution analytique du régime diffusif pur (équation (1.17)).	80
2.19	Paramètre convecto-diffusif moyen $\langle \Delta \rangle$ en fonction du paramètre moyen $\langle B \rangle$. Comparaison entre la relation analytique (1.47), les résultats numériques issus des simulations en régime stationnaire, notés Δ_{stat} [41], les résultats numériques issus des simulations en régime transitoire, notés Δ_{dyn} et l'épaisseur normalisée de la sous-couche visqueuse Δ_{scv} , donnée par la relation (2.16). Pour ces tracés on a pris $V_I = 10^{-5} m \cdot s^{-1}$ et $D = 10^{-8} m^2 \cdot s^{-1}$	82
2.20	Profil normal à l'interface du flux $D_t(\partial C_L / \partial z)$ pour la configuration $Re_L = 10^5$. Le profil est pris au centre de la cavité, pour une hauteur solidifiée de 2 cm.	83
2.21	Valeur critique B_c en fonction du paramètre ψ (relation (2.34)).	85
2.22	Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen $\langle \Delta \rangle$ en fonction de $\langle B \rangle$. Influence de la vitesse de solidification V_I (A) et de la diffusivité moléculaire D (B).	87
2.23	Schéma de la configuration de cavité entraînée avec trois recirculations, définition des différentes longueurs caractéristiques et localisation des points caractéristiques.	88
2.24	Évolution de la contrainte de frottement τ et du paramètre convecto-diffusif Δ le long de l'interface pour $Re_L = 10^3$ (A), $Re_L = 10^4$ (B) et $Re_L = 10^5$ (C). Les profils sont pris à une fraction solide de 44%.	90
2.25	Évolution de la contrainte moyenne à l'interface au cours de la solidification pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$ (A) et le régime turbulent $Re_L = 10^5$ (B).	92

2.26	Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen à l'interface au cours de la solidification pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$ et le régime turbulent $Re_L = 10^5$. Comparaison des résultats numériques $\langle \Delta_{num} \rangle$ et analytiques $\langle \Delta_{th} \rangle$	92
2.27	Évolution de la vitesse de solidification normalisée au cours de la solidification.	93
2.28	Évolution de la concentration normalisée dans la phase solide.	94
2.29	Évolution du paramètre convecto-diffusif $\langle \Delta \rangle$ normalisé, au cours de la solidification. Comparaison des résultats analytiques et numériques.	95
2.30	Profils du paramètre convecto-diffusif le long de l'interface solide/liquide pour le régime $Re_L = 10^4$ et $z_f = 8$ cm.	97
2.31	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^7$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C). Les concentrations sont données en fraction massique, avec la même échelle de couleur pour les résultats numérique et analytique.	98
2.32	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^6$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).	98
2.33	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^5$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).	99
2.34	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^4$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).	99
2.35	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^3$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).	100
2.36	Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^2$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).	100
2.37	Profils de ségrégation longitudinale obtenus numériquement et analytiquement pour différents régimes de convection.	101
2.38	Erreur relative moyenne sur les champs de concentration analytiques par rapport aux champs numériques, en fonction du nombre de <i>Reynolds</i>	102
2.39	(A) Cas de référence obtenu par simulation complète avec un maillage raffiné (identique à la figure 2.34.A). (B) Résultats obtenus à l'aide du modèle analytique à partir d'une simulation de l'écoulement sur un maillage non raffiné. (C) Écart relatif entre (A) et (B).	103
2.40	Profils de concentration normalisée $\langle C_S \rangle / C_0$ pour le phosphore, l'aluminium et le fer.	104
2.41	Profils de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface pour l'aluminium et le fer ($f_S = 44\%$).	105
3.1	Schéma du problème hydrodynamique du brassage lors de la solidification dirigée du silicium.	109
3.2	Photos du dispositif expérimental de brassage et du système d'éclairage laser.	112
3.3	Définition des plans horizontaux (h1 : $z = 1$ cm à h5 : $z = 5$ cm) et verticaux (v1 : $y = 0$ cm à v5 : $y = 15$ cm) pour les mesures PIV.	114

3.4	Champs instantanés de déplacements (vecteurs bleus) et coordonnées des vecteurs aberrants (points rouges) dans les plans v1 (A) et h3 (B) pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $N = 170$ rpm). Sur la figure de gauche, la zone du brasseur est masquée par un cache blanc; sur la figure de droite, l'axe de rotation est situé au niveau du coin supérieur gauche.	116
3.5	Points de contrôle de la convergence du champ moyen (A) et évolution de l'écart relatif des déplacements moyens par rapport à la moyenne finale en fonction du nombre de champs instantanés utilisés (B). Mesure dans le plan v1 pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $N = 170$ rpm).	117
3.6	Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan v1 ($y = 0$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm.	118
3.7	Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan h1 ($z = 1$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm. L'échelle de couleur correspond à l'amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip}	118
3.8	Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan h5 ($z = 5$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm.	119
3.9	Profils normalisés de la composante horizontale de vitesse u , pris en $x = 0.1$ m dans le plan v1 ($y = 0$ cm), pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et différentes vitesses de rotation.	119
3.10	Profils normalisés de la composante verticale de vitesse w , pris en $x = 0.1$ m dans le plan v1 ($y = 0$ cm), pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et différentes vitesses de rotation.	120
3.11	Champs moyens de vitesse normalisés dans le plan v1 ($y = 0$ cm), obtenus par mesure PIV, avec une vitesse de rotation de $N = 70$ rpm et différentes hauteurs d'eau H . La zone de vitesse nulle correspond à la position de l'agitateur et l'échelle de couleur correspond à l'amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip}	121
3.12	Erreur RMS en fonction du déplacement uniforme imposé, pour des zones d'interrogation de 16 (Δ), 32 (∇) et 64 pixels (\diamond). Figure extraite de Meunier et al. [66].	122
3.13	Erreur RMS en fonction du gradient imposé, pour des zones d'interrogation de 32 pixels. Résultats obtenus sans déformation des zones d'interrogation (\circ) et avec déformation après 1 (\square), 2 (\diamond), 3 (Δ) ou 4 (∇) itérations. Figure extraite de Meunier et al. [66].	123
3.14	Champ instantané et histogramme de la norme du gradient $\ \nabla\vec{U}\ $ dans le plan v1, pour $N = 170$ rpm et $H = 15$ cm.	124
3.15	Champs normalisés de vitesse (vecteurs) et de la composante de vorticité ω_y dans le plan v1, pour une hauteur d'eau $H = 15$ cm et une vitesse de rotation $N = 170$ rpm. Moyenne conditionnelle des champs instantanés réalisée pour une position donnée des pales.	125
3.16	Schéma du modèle de ségrégation en régime quasi-permanent et définition des termes sources de masse et de concentration à l'interface solide/liquide et à la surface libre.	127
3.17	Maillage utilisé pour les simulations de brassage en 3D (cas $H = 15$ cm), vue isométrique et vue en coupe verticale.	130

3.18	Courbes de convergence de la contrainte de frottement moyenne sur la paroi du fond (A) et du débit volumique à travers le demi plan vertical Oxz ($x > 0$) (B) au cours du calcul transitoire.	131
3.19	Courbes de convergence de la concentration moyenne (A) et du paramètre Δ moyen (B) au cours du calcul stationnaire (MFR) puis du calcul transitoire (maillage glissant).	132
3.20	Profils normalisés des composantes de vitesse \bar{u} (A) et \bar{w} (B) pris en $x = 0.1$ m dans le plan v1, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm. Comparaison des simulations de brassage du silicium à 50 rpm et de l'eau à 170 rpm. Les profils correspondent à la moyenne temporelle obtenue à l'issue du calcul transitoire.	133
3.21	Champs de coefficient de frottement sur la paroi du fond obtenus pour le brassage du silicium à 50 rpm (A) et pour le brassage de l'eau à 170 rpm (B). Les résultats correspondent à la moyenne temporelle obtenue à l'issue du calcul transitoire.	134
3.22	Comparaison des champs de vitesse normalisés (moyennés sur plusieurs périodes) obtenus numériquement et expérimentalement pour différentes hauteurs de liquide et un nombre de <i>Reynolds</i> de 1.2×10^5	137
3.23	Champs instantanés normalisés de vitesse (A) et de la composante de vorticit� ω_y (B) obtenus numériquement pour la configuration 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). La vorticit� est normalis�e par la fr�quence de rotation de l'agitateur exprim�e en $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$	138
3.24	Champs instantan�s de contrainte de frottement � la paroi du fond (en Pa), pris � un instant t et 5 pas de temps apr�s (soit apr�s une rotation de 60° de l'agitateur). Configuration num�rique 2 : $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.	139
3.25	Profils instantan�s et moyens de contrainte de frottement (A) et de param�tre convecto-diffusif (B) constat�s dans les simulations, suivant la diagonale de la paroi du fond, pour la configuration num�rique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). L'abscisse r repr�sente la distance par rapport � l'axe de rotation de l'agitateur le long de la diagonale du creuset.	140
3.26	Champs moyens du param�tre convecto-diffusif obtenus pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et diff�rentes vitesses de rotation.	142
3.27	Champs moyens du param�tre convecto-diffusif obtenus pour une hauteur de liquide $H = 10$ cm et diff�rentes vitesses de rotation.	142
3.28	Param�tre convecto-diffusif moyen $\langle \bar{\Delta} \rangle$ en fonction du param�tre $\langle \bar{B} \rangle$. Comparaison des r�sultats num�riques des simulations de s�gr�gation sous brassage, des simulations transitoires 2D de cavit� entra�n�e et des relations analytiques (1.47), not�e Δ_{th} , et (2.28), not�e mod�le turbulent.	143
3.29	Champs moyens des param�tres convecto-diffusifs num�rique (A) et analytique (B) pour la configuration num�rique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm).	144
3.30	Champ moyen de l'erreur relative entre $\bar{\Delta}_{th}$ et $\bar{\Delta}_{num}$ (A) et champ des vecteurs contrainte � l'interface (B) pour la configuration num�rique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). Sur la figure (B), les contours noirs repr�sentent les changements de signe de la composante radiale de contrainte.	144
4.1	Configuration du four de cristallisation �tudi�, description des principaux composants.	149
4.2	Exemple de cycle thermique d'un proc�d� de solidification dirig�e pour un lingot G2.	150

4.3	Terme source de quantité de mouvement dans la zone pâteuse en fonction de la fraction liquide locale f_L , pour différents facteurs d'amortissement A_{mushy}	152
4.4	Vue en coupe du maillage du four de solidification dirigée.	153
4.5	Suivi des températures des zones haute et basse lors de la solidification en convection naturelle. Comparaison des températures de consigne et des températures enregistrées au niveau des thermocouples.	154
4.6	Évolution de la fraction solide (A) et de la vitesse de solidification (B) en fonction du temps, lors de la solidification en convection naturelle.	154
4.7	Champs de fraction liquide et de vitesse dans le plan vertical $y = 0$, à $t = 2$ h (A), $t = 6$ h (B) et $t = 10.8$ h (C), pour le cas en convection naturelle. Les traits continus sur les figures (A1), (B1) et (C1) représentent des isothermes dans la phase liquide à partir de la température de solidification du silicium, avec un intervalle de température de 0.5 K.	156
4.8	Vue 3D de l'interface solide/liquide et des isovaleurs de l'amplitude des vitesses ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) dans le plan diagonal, pour le cas en convection naturelle à $t = 6$ h.	156
4.9	Volume de contrôle utilisé pour le bilan de quantité de mouvement, délimité par les surfaces S_1, S_2, S_3, S_4 et S_5 . Le volume cylindrique bleu représente le volume balayé par les pales de l'agitateur.	158
4.10	Convergence de la force axiale (A) et de la contrainte moyenne à l'interface (B) lors du calcul d'ajustement, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.	160
4.11	Champ de vitesse obtenu avec une force axiale, dans le plan vertical $y = 0$, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm. Le rectangle rouge représente la zone où la force axiale est appliquée et le cadre noir matérialise l'axe de rotation de l'agitateur.	161
4.12	Comparaison des champs de contrainte à l'interface solide/liquide obtenus par simulation transitoire avec maillage glissant (A) (en moyenne sur plusieurs périodes) et par simulation stationnaire avec une force axiale (B), pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.	161
4.13	Profils de contrainte suivant la diagonale obtenus par simulation transitoire avec maillage glissant et par simulation stationnaire avec une force axiale, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.	161
4.14	Suivi des températures enregistrées au niveau des thermocouples des zones haute et basse lors de la solidification en convection forcée.	163
4.15	Évolution de la fraction solide, de la force de brassage (A) et de la vitesse de solidification (B) en fonction du temps. La force de brassage est normalisée par sa valeur initiale $f_z(t_0) = -112 \text{ N}\cdot\text{m}^{-3}$	163
4.16	Champs de fraction liquide et de vitesse dans le plan vertical $y = 0$, à $t = 1$ h (A), $t = 2.5$ h (B), $t = 2.58$ h (C) et $t = 4.5$ h (D).	165
4.17	Vue de l'interface solide/liquide et de l'amplitude du champs de vitesse dans le plan diagonal, à $t = 2.5$ h (A) et $t = 3$ h (B). L'échelle de couleurs correspond à l'amplitude des vitesse en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	166
4.18	Champs de contrainte de frottement τ , de vitesse de l'interface V_I et de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface solide/liquide, à $t = 2$ h (A), 6 h (B) et 10.8 h (C), pour le cas en convection naturelle. Les échelles de couleurs pour τ et V_I sont modifiées dans les différents cas pour améliorer le contraste.	169
4.19	Évolution de la contrainte de frottement moyenne (A) et de la vitesse moyenne de l'interface (B) en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas en convection naturelle.	170

4.20	Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas en convection naturelle.	170
4.21	Champ de concentration de soluté dans le lingot estimé par l'approche analytique, pour le cas en convection naturelle. Les concentrations sont données en fraction massique et représentées dans les plans verticaux $x = 0$ et $y = 0$	171
4.22	Profil de ségrégation axiale estimé par l'approche analytique, pour le cas en convection naturelle. Comparaison avec la solution analytique du régime diffusif pur [89], la loi de <i>Scheil</i> et la loi de <i>Scheil</i> modifiée avec un coefficient de partage effectif $k_{eff} = 0.59$	171
4.23	Champs de contrainte de frottement τ , de vitesse de l'interface V_I et de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface solide/liquide, à $t = 1$ h (A), 2.5 h (B) et 2.58 h (C), pour le cas avec brassage mécanique.	173
4.24	Évolution de la contrainte de frottement moyenne (A) et de la vitesse moyenne de l'interface (B) en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas avec brassage mécanique.	174
4.25	Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas avec brassage mécanique.	174
4.26	Champ de concentration de soluté dans le lingot estimé par l'approche analytique, pour le cas avec brassage mécanique. Les concentrations sont données en fraction massique et représentées dans les plans verticaux $x = 0$ et $y = 0$. Les lignes noires représentent la position du front à $t = 2.58$ h.	175
4.27	Profil de ségrégation axiale estimé par l'approche analytique, pour le cas avec brassage mécanique. Comparaison avec la solution analytique du régime diffusif pur (en milieu semi-infini) [89], la loi de <i>Scheil</i> et la loi de <i>Scheil</i> modifiée avec un coefficient de partage effectif $k_{eff} = 0.79$	175
B.1	Comparaison des champs numériques et expérimentaux de vitesse moyenne normalisée pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$) dans les plans verticaux.	193
B.2	Comparaison des champs de vitesse normalisés numériques et expérimentaux pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$) dans les plans horizontaux.	195
C.1	Photo infrarouge de la plaque centrale du lingot SUSI 104.	200
C.2	Mesure de résistivité ($\Omega \cdot \text{cm}$) de la plaque centrale du lingot SUSI 104.	200
C.3	Profils de contrainte de frottement obtenus par simulation 2D de cavité entraînée et par simulations 3D de brassage avec maillage glissant pour $N = 50$ rpm (A) et $N = 20$ rpm (B).	201
C.4	Champs de concentration en aluminium (en fraction massique), obtenus expérimentalement (A) et numériquement (B), pour le cas $N = 50$ rpm.	202
C.5	Champs de concentration en aluminium (en fraction massique), obtenus expérimentalement (A) et numériquement (B), pour le cas $N = 20$ rpm.	202
C.6	Profils de concentration (en fraction massique) au centre de la cavité, pour les cas $N = 50$ rpm (A) et $N = 20$ rpm (B).	203

Introduction

Production du silicium pour l'industrie photovoltaïque

Le silicium cristallin est actuellement le principal matériau utilisé pour la production de cellules photovoltaïques avec 92% de la production mondiale en 2014 [50]. Des études de marché récentes montrent une forte croissance des capacités de production photovoltaïque installées dans le monde ces dernières années [63]. Cette tendance implique une augmentation de la demande en silicium pour la production de cellules. C'est dans ce contexte que s'inscrit la recherche sur les procédés de mise en forme du silicium, dont les objectifs principaux sont la réduction des coûts et de l'impact sur l'environnement, ainsi que l'augmentation des rendements de conversion des cellules.

Le procédé classique de fabrication du silicium pour l'industrie photovoltaïque peut être décomposé en quatre étapes principales. La première étape, appelée carbothermie, consiste à réduire la silice (SiO_2) en silicium (Si) dans un four à arc électrique. À l'issue de cette étape on obtient un silicium d'une pureté de 98 à 99%, qualifié de métallurgique. Afin que ce matériau puisse être utilisé pour produire des cellules photovoltaïques il faut le raffiner pour atteindre une pureté d'au moins 99.99999% (aussi notée 7N, le pourcentage faisant intervenir 7 fois le chiffre 9). On parle alors de silicium de grade solaire. Cette étape de purification peut faire appel à différents procédés qui seront détaillés dans le paragraphe suivant. La troisième étape du procédé est la cristallisation du silicium. Pour cela les deux techniques les plus utilisées dans l'industrie sont : la croissance de multi-cristaux par solidification dirigée et la croissance de monocristaux par tirage *Czochralski*. Une fois la cristallisation terminée, la dernière étape du procédé consiste à découper les lingots en briques, puis en plaquettes, qui seront transformées en cellules photovoltaïques. La figure 1 illustre un procédé d'obtention de wafers de silicium par solidification dirigée dans un creuset puis découpe du lingot en briques et enfin en plaquettes.

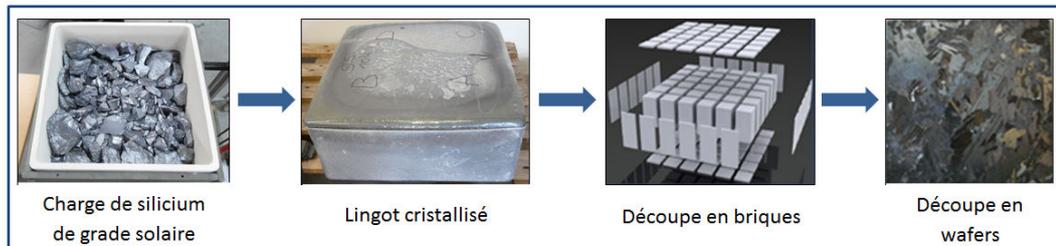


FIGURE 1 – Schéma d'un procédé d'obtention de wafers de silicium par solidification dirigée dans un creuset puis découpe en briques et en plaquettes.

Procédés de purification

La purification du silicium pour l'industrie photovoltaïque peut être réalisée par différents procédés. On peut distinguer les procédés de purification en phase gazeuse, type procédé *Siemens*, et les procédés de purification en phase liquide. La purification par phase gazeuse consiste à réaliser une chloration du silicium afin d'obtenir du trichlorosilane ($SiHCl_3$), puis de purifier ce composé à l'aide d'un procédé de distillation et enfin de réduire le trichlorosilane purifié en silicium par un procédé CVD (Chemical Vapor Deposition) ou par lit fluidisé. Ces procédés sont classiquement utilisés pour produire du silicium de grade électronique (pureté 9 à 12N). Cette qualité est supérieure à celle nécessaire à l'industrie photovoltaïque et c'est pourquoi des procédés de purification alternatifs sont en développement. L'objectif de ces procédés est de

produire un silicium de grade solaire avec un coût et un impact environnemental réduits par rapport aux procédés chimiques usuels. Dans ce contexte, le CEA travaille au développement d'un procédé de purification par voie métallurgique. La purification se fait alors en phase liquide, en utilisant des opérations proches de la métallurgie qui permettent d'éliminer le bore, le phosphore et les impuretés métalliques.

Les impuretés métalliques peuvent être éliminées par solidification dirigée. Selon le principe de la figure 2, le procédé consiste à réaliser une solidification dirigée d'une charge de silicium en imposant un gradient de température vertical. Le front de solidification se déplace alors progressivement vers le haut, à une vitesse contrôlée. Comme les impuretés métalliques ont une solubilité moindre dans le silicium solide que dans le silicium liquide, elles vont être majoritairement rejetées dans la phase liquide. On dit qu'elles ont un coefficient de ségrégation inférieur à 1. On obtient alors un lingot de silicium avec un gradient vertical de concentration en impuretés métalliques. Ces impuretés sont ensuite éliminées par éboutage de la partie haute du lingot. Comme on le verra par la suite, ce procédé dépend en grande partie de la convection qui a pour effet d'homogénéiser la phase liquide, favorisant ainsi la ségrégation des impuretés vers le haut du lingot. C'est pourquoi des techniques de brassage permettant d'intensifier la convection sont à l'étude.

L'un des axes de recherche est l'utilisation d'un agitateur mécanique pour homogénéiser le silicium liquide lors de l'étape de solidification dirigée, afin de favoriser la ségrégation des impuretés métalliques. D'un point de vue industriel, l'intérêt de cette technique est de garantir la qualité du matériau produit ainsi qu'un rendement matière élevé, tout en autorisant des vitesses de solidification plus importantes. Il faut noter que ce procédé de purification par solidification dirigée n'est pas efficace pour éliminer le bore et le phosphore car leur coefficient de ségrégation est trop proche de 1 (0.8 pour le bore et 0.3 pour le phosphore). Des étapes spécifiques sont donc nécessaires pour traiter spécifiquement ces deux impuretés. On peut citer les procédés d'évaporation sous vide pour le phosphore et d'oxydation par des gaz réactifs pour le bore.

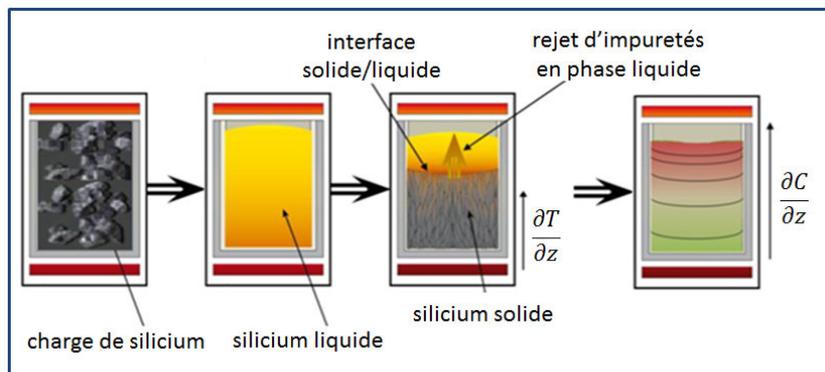


FIGURE 2 – Schéma du procédé de purification par solidification dirigée.

Procédés de cristallisation

Une fois purifié, le silicium subit une étape de cristallisation. Les objectifs de cette étape sont d'assurer une durée de vie des porteurs de charges minoritaires suffisante et de contrôler le dopage du matériau en porteurs majoritaires. La durée de vie des porteurs minoritaires est notamment influencée par la pureté, la structure cristalline et le dopage du matériau. Il faut alors distinguer deux matériaux utilisés pour la production de cellules photovoltaïques : le silicium monocristallin et le silicium multi-cristallin, représentant respectivement 35% et 56% de la production en 2014 [50]. Le silicium monocristallin permet des rendements de conversion plus élevés mais présente un coût de production supérieur au silicium multi-cristallin. En

2015, l'ITRPV¹ estimait que, pour une même technologie de cellule, le silicium monocristallin permettait un gain de rendement de 1.5% par rapport au multi-cristallin [51]. La technique la plus utilisée dans l'industrie pour la production du silicium monocristallin est la croissance par tirage *Czochralski*. Toujours d'après le rapport de l'ITRPV, elle représentait en 2015 90% de la production. Cette technique consiste à utiliser un germe de silicium monocristallin pour tirer un lingot à partir d'un bain de silicium en fusion.

La production de silicium multi-cristallin est réalisée par solidification dirigée. Le principal avantage de cette technique par rapport au procédé *Czochralski* est sa productivité. Les procédés utilisés dans l'industrie permettent de produire des lingots de 800 kg dont les dimensions sont $100 \times 100 \times 34$ cm³. L'échelle de ce procédé est appelée échelle G6 puisque les lingots obtenus permettent de fabriquer 6 × 6 briques de 156×156 mm² (format d'une cellule standard).

Lors de la phase de cristallisation, il existe de nombreuses sources de contamination du matériau qui vont altérer la durée de vie des porteurs minoritaires. On peut citer la diffusion d'impuretés depuis les parois du creuset, la ségrégation et la précipitation d'impuretés en sursaturation dans la phase liquide. La recherche sur ces procédés vise à réduire les coûts et améliorer la qualité du matériau pour permettre la production de cellules à haut rendement.

Rôle des impuretés métalliques

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que la pureté du matériau constitue un enjeu majeur pour la production du silicium photovoltaïque. La concentration en impuretés métalliques dans les wafers de silicium a une influence directe sur les performances des cellules solaires. Le rendement d'une cellule photovoltaïque est lié à sa capacité à séparer et à collecter des paires électrons-trous (porteurs de charge minoritaires) formées par les photons incidents, afin de générer un courant électrique. Un des paramètres clés pour les performances des cellules est la longueur de diffusion des porteurs de charge minoritaires qui fait intervenir le coefficient de diffusion des électrons ainsi que la durée de vie des porteurs minoritaires [21]. Concrètement cette longueur de diffusion doit être suffisamment grande devant l'épaisseur de la cellule pour que les porteurs minoritaires aient le temps de migrer jusqu'aux contacts métalliques déposés en surface. Les impuretés métalliques présentes dans le silicium (quelles soient dissoutes ou sous forme de précipités) agissent comme des centres de recombinaison des porteurs minoritaires (recombinaisons de type *Shockley Read Hall*). Les charges qui se recombinent ne sont pas collectées dans le circuit électrique, ce qui entraîne une diminution du rendement de la cellule. Les impuretés métalliques ont donc pour effet de réduire la durée de vie des porteurs minoritaires. On comprend alors la nécessité de maîtriser leurs concentrations dans les wafers de silicium.

Enjeux de l'étude

Les phénomènes de ségrégation jouent un rôle prédominant lors des procédés de purification et de cristallisation par solidification dirigée. Nous verrons dans le chapitre 1 que ces phénomènes sont liés à la convection dans la phase liquide qui contrôle l'épaisseur de la couche limite de concentration (ou couche limite solutale) à l'interface solide/liquide. La simulation numérique constitue un outil performant pour l'étude et l'optimisation de ces procédés. Cependant, une problématique majeure apparaît lorsqu'on souhaite traiter la ségrégation. L'échelle caractéristique de la thermique du procédé est de l'ordre du mètre (dimension des creusets industriels G6) alors que l'épaisseur de la couche limite solutale peut être de l'ordre de quelques dizaines de micromètres (suivant le régime de convection imposé). Les méthodes numériques et les moyens de calculs actuels ne permettent pas de traiter simultanément des échelles aussi variées. Il est

1. International Technology Roadmap for Photovoltaic.

donc nécessaire de développer des outils analytiques et numériques pour améliorer la compréhension des phénomènes de ségrégation en présence de convection naturelle et/ou forcée. Ceci est d'autant plus vrai pour les procédés utilisant un brasseur mécanique, puisque l'échelle de temps associée à la rotation du brasseur (de l'ordre de la seconde) sera de fait bien inférieure à celle de la solidification dirigée d'un lingot (cycle de cristallisation de plusieurs heures pour un lingot G6).

Context de la thèse

Cette thèse est financée par le CEA. Elle est réalisée au sein du laboratoire LMPS¹ qui fait partie du Département des Technologies du Solaire du CEA, et qui est situé sur le site de l'INES². Tous les travaux présentés sont faits en collaboration étroite avec le LMFA³, qui co-encadre la thèse.

Plan du rapport

Ce rapport fait la synthèse de nos travaux sur la modélisation de la ségrégation dans un régime de convection forcée. Le chapitre 1 présente un état de l'art des phénomènes étudiés et des méthodes utilisées dans cette étude. Le chapitre 2 expose les travaux réalisés sur la modélisation de la ségrégation et l'étude d'un modèle analytique de couche limite solutale. Le chapitre 3 s'intéresse à l'étude expérimentale et numérique d'un agitateur mécanique utilisé pour la purification du silicium par solidification dirigée. Le chapitre 4 présente une étude numérique de l'influence d'un système de brassage mécanique sur un procédé de solidification dirigée.

1. Laboratoire des Matériaux et Procédés pour le Solaire, CEAtch.
2. Institut National de l'Energie Solaire.
3. Laboratoire de Mécanique des Fluides et d'Acoustique.

Chapitre 1

État de l'art

Comme évoqué en introduction, cette étude porte sur les phénomènes de ségrégation qui interviennent lors de la solidification dirigée du silicium. Elle s'intéresse notamment à l'influence de la convection sur la ségrégation et à l'utilisation d'un système de brassage mécanique pour l'optimisation d'un procédé de purification. Ce chapitre a pour objectif de présenter les éléments théoriques, les méthodes numériques et les techniques expérimentales qui nous ont permis de réaliser cette étude. La section 1.1 s'intéresse au phénomène de ségrégation qui se produit lors de la solidification dirigée du silicium. La section 1.2 est dédiée aux systèmes de brassage mécaniques. Enfin, la section 1.3 présente la technique de mesure de champ de vitesse par PIV.

1.1 Ségrégation solutale lors de la solidification dirigée

La ségrégation solutale est un phénomène de transfert de masse qui intervient lors des procédés de solidification d'alliages ou de croissance cristalline. On s'intéresse ici au cas particulier de la solidification dirigée du silicium. Nous présentons tout d'abord différents phénomènes physiques intervenant lors de la solidification dirigée (partie 1.1.1). Ensuite, nous nous intéressons aux aspects théoriques de la ségrégation solutale (partie 1.1.2). Enfin, nous détaillons la description de la couche limite solutale par une analyse en ordres de grandeur (partie 1.1.3).

1.1.1 Phénomènes physiques liés à la solidification dirigée

1.1.1.1 Phénomènes de transport et équations générales

Pour réaliser un procédé de solidification dirigée du silicium, une bonne maîtrise des conditions de température dans l'enceinte du four est nécessaire. En effet, ce sont les flux de chaleur à travers les parois du creuset qui vont déterminer la forme et la vitesse de déplacement de l'interface solide/liquide. Afin d'imposer le gradient de température nécessaire à la solidification dirigée, les fours considérés ici présentent une zone chaude dans la partie haute qui apporte la chaleur nécessaire à la fusion du silicium, et une zone froide en partie basse qui extrait la chaleur par le bas du creuset afin d'amorcer la solidification. Le gradient de température dans la phase liquide entraîne une solidification colonnaire du silicium avec un front de solidification lisse. La vitesse de solidification est contrôlée afin de préserver la stabilité de l'interface (voir paragraphe 1.1.1.3).

Afin d'étudier l'incorporation des impuretés dans la phase solide, il est nécessaire de s'intéresser aux différents phénomènes de transport qui interviennent dans la phase liquide. La conservation de l'énergie dans la phase liquide, dans le cas d'un écoulement incompressible, est donnée par la relation :

$$\frac{\partial(\rho c_p T)}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla(\rho c_p T) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T), \quad (1.1)$$

où T , \vec{u} , ρ , c_p et λ représentent respectivement les champs de température (K) et de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), la masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$), la capacité thermique massique ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) et la conductivité thermique de la phase liquide ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$). Cette relation met en avant deux modes de transport de la chaleur dans le liquide : la conduction et la convection. La convection désigne le transport de la chaleur par le mouvement du fluide. La conservation de la masse dans la phase liquide est donnée par la relation :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{u}) = 0, \quad (1.2)$$

et la conservation de la quantité de mouvement est donnée par les équations de *Navier-Stokes*, qui s'écrivent dans le cas d'un écoulement Newtonien incompressible :

$$\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{\mu}{\rho} \nabla^2 \vec{u} + \vec{F}, \quad (1.3)$$

où p , μ et \vec{F} représentent la pression (Pa), la viscosité dynamique du fluide (Pa·s) et les termes de forces volumiques par unité de poids ($\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$). On peut alors distinguer deux régimes de convection : la convection forcée et la convection naturelle. Dans le cas de la convection forcée, le mouvement du fluide est imposé par des actions extérieures (un système de brassage par exemple). On considère alors que la chaleur est transportée par le fluide et on ignore son influence sur le mouvement du fluide (couplage faible). Dans le cas de la convection naturelle, ce sont les gradients de température qui sont à l'origine du mouvement du fluide. En effet, la masse volumique du fluide dépend de la température et la gravité induit des forces de flottabilité qui mettent le fluide en mouvement. On est alors en présence d'un couplage fort avec une interaction réciproque entre le champ de température et le champ de vitesse. Si les variations de masse volumique sont suffisamment faibles pour que l'écoulement soit incompressible, il est possible de traiter la convection naturelle en introduisant l'hypothèse de *Boussinesq* [7]. L'expression de la masse volumique en fonction de la température est linéarisée :

$$\rho(T) = \rho_0 [1 - \beta(T - T_0)], \quad (1.4)$$

avec ρ_0 la masse volumique à la température de référence T_0 et β le coefficient de dilatation à pression constante (K^{-1}). On considère alors une masse volumique ρ_0 constante dans les équations (1.1), (1.2) et (1.3) sauf dans le terme de force volumique lié à la gravité qui s'exprime (en $\text{N} \cdot \text{m}^{-3}$) :

$$\vec{F}_g = \rho_0 [1 - \beta(T - T_0)] \vec{g}, \quad (1.5)$$

où \vec{g} désigne la pesanteur ($\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$). Dans la pratique, la convection naturelle intervient toujours dans les procédés de solidification dirigée, mais elle peut être négligeable si un système de brassage est utilisé pour induire une convection forcée importante.

Dans une certaine mesure, le transfert de masse peut être traité de manière analogue au transfert thermique car il fait également intervenir les principes de transport par diffusion et convection [4]. L'analyse du transfert de masse pour un mélange de plusieurs constituants est basée sur la conservation de la masse de chacun de ces constituants. Si on considère un mélange de deux constituants, en l'absence de réaction chimique la conservation du soluté est donnée par la relation suivante [11] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) C = \nabla \cdot (D \nabla C), \quad (1.6)$$

où C désigne la concentration de soluté (exprimée en fraction massique) et D la diffusivité moléculaire du soluté considéré ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$). Il existe un couplage entre le champ de vitesse et le champ de concentration par le terme convectif, qui est similaire à celui rencontré pour le transfert thermique. En effet, les gradients de concentration sont également susceptibles de provoquer des variations de masse volumique au sein du liquide, entraînant une convection thermo-solutale. Néanmoins, pour l'application qui nous concerne ce terme est négligeable en raison des très faibles concentrations d'impuretés présentes dans le silicium photovoltaïque. On considère alors uniquement un couplage faible entre les équations (1.3) et (1.6) qui correspond au transport du champ de concentration par le champ de vitesse.

1.1.1.2 Diagramme des phases et coefficient de ségrégation

Le phénomène de ségrégation solutale est dû à une différence de solubilité des impuretés dans le silicium liquide et solide. La plupart des impuretés métalliques sont beaucoup plus solubles dans la phase liquide que dans la phase solide. Ainsi, lorsque l'on réalise un processus de solidification dirigée, la majeure partie des impuretés présentes au niveau du front de solidification est rejetée dans la phase liquide. Pour quantifier ce phénomène, on définit le coefficient de ségrégation k_0 comme le rapport des concentrations en impureté au niveau de l'interface, dans la phase solide C_S^I et dans la phase liquide C_L^I . Ce coefficient est donné par le diagramme des phases qui détermine, en fonction de la température, les concentrations dans la phase solide et dans la phase liquide au cours de la solidification à l'équilibre thermodynamique (voir figure 1.1). Dans la mesure où les concentrations étudiées sont faibles, on peut assimiler les courbes de liquidus et de solidus à des droites de pentes m_L et m_S et on considère alors que le coefficient k_0 est indépendant de la concentration :

$$k_0 = \frac{C_S^I}{C_L^I} = \frac{m_L}{m_S}. \quad (1.7)$$

Les espèces dont le coefficient de ségrégation dans le silicium est inférieur à 1 (cas des impuretés métalliques par exemple) sont donc moins solubles dans le solide que dans le liquide et lorsque k_0 tend vers 0 la ségrégation devient optimale car la concentration incorporée dans le solide tend également vers 0.

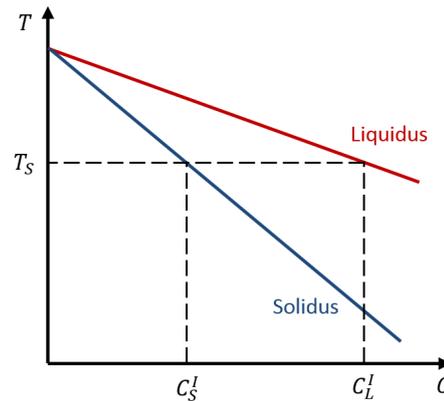


FIGURE 1.1 – Diagramme des phases pour un alliage binaire, pour le cas simple des alliages fortement dilués.

Le tableau 1.1 regroupe les coefficients de diffusion et de ségrégation de différentes impuretés et dopants que l'on retrouve dans le silicium photovoltaïque [37, 56, 69, 86]. La mesure de ces coefficients est délicate et les incertitudes associées sont souvent élevées [37]. Les valeurs présentées ici sont donc basées sur les données disponibles dans la littérature et nous permettent d'estimer l'ordre de grandeur de ces paramètres.

Tableau 1.1 – Coefficients de diffusion en phase liquide D et de ségrégation k_0 dans le silicium pour différentes espèces chimiques [37, 56, 69, 86].

	D ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	k_0 (-)
Al	6.8×10^{-8}	2×10^{-3}
B	1.2×10^{-8}	8×10^{-1}
C	7.6×10^{-8}	7×10^{-2}
Ga	3.6×10^{-8}	7.85×10^{-3}
Fe	8.0×10^{-8}	8×10^{-6}
In	8.2×10^{-8}	4.1×10^{-4}
P	2.3×10^{-8}	3.32×10^{-1}

1.1.1.3 Stabilité d'un front de solidification lisse

Burton et al. [11] expliquent que dans le cas d'une expérience de croissance cristalline, les atomes de soluté qui ne sont pas incorporés dans la phase solide sont rejetés dans la phase liquide. Dans le cas des espèces présentant un coefficient de partage k_0 inférieur à 1, cela provoque l'enrichissement en soluté du bain de fusion. Ainsi, le solide formé présente nécessairement une concentration en soluté de plus en plus forte à mesure que le front de solidification progresse. Par ailleurs, si la vitesse de solidification est importante, les atomes sont rejetés dans le liquide à un débit plus important que celui de la diffusion du soluté dans la phase liquide. On observe alors un gradient de concentration localisé à l'interface entre le solide et le liquide. La zone enrichie en impuretés, appelée couche limite solutale, détermine la concentration qui est incorporée dans le solide. Cette couche limite dépend fortement du champ de convection dans la phase liquide. De manière générale, une convection intense aura pour effet d'homogénéiser la phase liquide, réduisant ainsi l'épaisseur de la couche limite solutale et la concentration à l'interface.

La formation d'une couche enrichie en soluté au voisinage du front de solidification peut provoquer une déstabilisation morphologique de l'interface. Si la concentration à l'interface devient trop importante, il peut y avoir une avancée locale de l'interface afin d'accroître la surface d'échange et permettre l'évacuation du soluté ou de la chaleur en excès. On observe alors la formation de cristaux dendritiques qui dégradent la qualité cristalline du matériau. Afin d'éviter ce phénomène, un critère de stabilité faisant intervenir les gradients de température et de concentration au niveau de l'interface a été mis en place par Tiller et al. [89] (équation (1.8)). Le principe est de définir un gradient de température dans la phase liquide suffisamment élevé pour éviter la formation d'une zone de surfusion adjacente à l'interface. Ainsi, le solide formé localement sera refondu puisqu'il se trouve dans une zone où la phase stable est la phase liquide [36]. Il s'agit du critère de surfusion constitutionnelle :

$$\frac{\partial T}{\partial z} > m_L \frac{\partial C_L}{\partial z}, \quad (1.8)$$

où z est la direction de solidification. Un autre critère basé sur une étude de stabilité a été proposé par Mullins and Sekerka [72]. Dans le cas des procédés de cristallisation, où la vitesse de solidification est faible, on peut négliger l'effet de l'énergie interfaciale et de la chaleur latente de solidification. On peut alors donner une expression simplifiée du critère de *Mullins-Sekerka* [36] :

$$\frac{2\lambda_L}{\lambda_L + \lambda_S} \frac{\partial T}{\partial z} > m_L \frac{\partial C_L}{\partial z}. \quad (1.9)$$

Ce critère est similaire au critère de surfusion constitutionnelle, mais il prend en compte les différentes conductivités thermiques λ_L et λ_S dans les phases liquide et solide. Dans le cas du

silicium $\lambda_L = 56.5 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ et $\lambda_S = 19 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, soit une valeur de 1.5 pour le coefficient $2\lambda_L/(\lambda_L + \lambda_S)$. Dans la pratique, le phénomène de déstabilisation du front limite la vitesse de solidification appliquée lors du procédé afin de conserver un front lisse. En effet, comme on le verra dans le paragraphe 1.1.2, le gradient de concentration au voisinage de l'interface est proportionnel à la vitesse de solidification. Dans le cas d'un procédé de purification du silicium, l'introduction d'une convection forcée dans la phase liquide aura pour effet de réduire ce gradient de concentration, autorisant ainsi une vitesse solidification plus grande et une réduction du coût de production.

1.1.2 Théorie de la ségrégation solutale

Afin d'étudier la ségrégation solutale au niveau du front de solidification, il est nécessaire d'évaluer le champ de concentration dans la phase liquide. Pour cela, on dispose de l'équation de conservation (1.6) que l'on peut réécrire :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} + (\vec{u}\cdot\nabla)C_L = D_L\nabla^2 C_L, \quad (1.10)$$

où D_L et C_L représentent respectivement le coefficient de diffusion et la concentration dans la phase liquide. On suppose ici que D_L est indépendant de la concentration. On peut également définir la condition de conservation de la masse au niveau du front de solidification [36] :

$$D_S \left. \frac{\partial C_S}{\partial n} \right|_I - D_L \left. \frac{\partial C_L}{\partial n} \right|_I = \vec{V}_I \cdot \vec{n} (C_L^I - C_S^I), \quad (1.11)$$

où \vec{V}_I est la vitesse d'avance du front de solidification, \vec{n} est la normale au front de solidification dirigée vers le liquide, D_S est le coefficient de diffusion dans le solide, C_S est la concentration dans la phase solide et l'indice I signifie que la valeur est calculée au niveau de l'interface. On suppose ici que les phases solide et liquide ont la même densité.

Dans le cas général, la résolution de l'équation de transport (1.10) ne peut se faire de manière analytique. En effet, le terme convectif impose de connaître le champ de vitesse dans la phase liquide que l'on ne peut obtenir que par la résolution des équations de *Navier-Stokes*. La résolution analytique de l'équation (1.10) ne peut donc se faire que pour des écoulements simples. Si on ne peut pas avoir de solution analytique du champ de vitesse, alors une résolution numérique s'impose. Dans les procédés de solidification le champ de vitesse peut-être gouverné par la convection naturelle induite par la thermique des fours utilisés mais également par l'action d'un système de brassage éventuel. Néanmoins, deux configurations idéales de ségrégation permettent une résolution analytique de l'équation (1.10). D'une part l'hypothèse d'un mélange parfait dans la phase liquide, qui conduit à l'équation de *Scheil-Gulliver*, et d'autre part l'hypothèse d'un régime diffusif pur avec l'absence totale d'écoulement dans le fluide.

1.1.2.1 Équation de *Scheil-Gulliver*

L'équation de *Scheil-Gulliver* permet de déterminer la concentration de soluté dans le solide formé en fonction de la fraction solidifiée f_S [58]. Pour parvenir à ce profil de concentration on se place dans une configuration 1D (absence de ségrégation radiale) et on utilise un bilan de conservation de la masse de soluté dans le système. Par ailleurs, on fait l'hypothèse que la concentration dans la phase liquide est uniforme à chaque instant et qu'elle vaut C_0 à l'instant initial. On suppose également que le coefficient de ségrégation k_0 est constant (ce qui est valable

à faible concentration). On obtient alors :

$$\frac{C_S(z)}{C_0} = k_0(1 - f_S)^{k_0-1}, \quad (1.12)$$

avec $f_S = z/H$, H étant la hauteur totale du lingot solidifié. On remarque que cette relation n'est pas valable jusqu'à la fin de la solidification dans le cas d'un coefficient de partage k_0 inférieur à 1, puisque la concentration prédite tend vers l'infini. En pratique, cette augmentation de concentration mènera à d'autres phénomènes tels que la déstabilisation de l'interface et la formation de précipités.

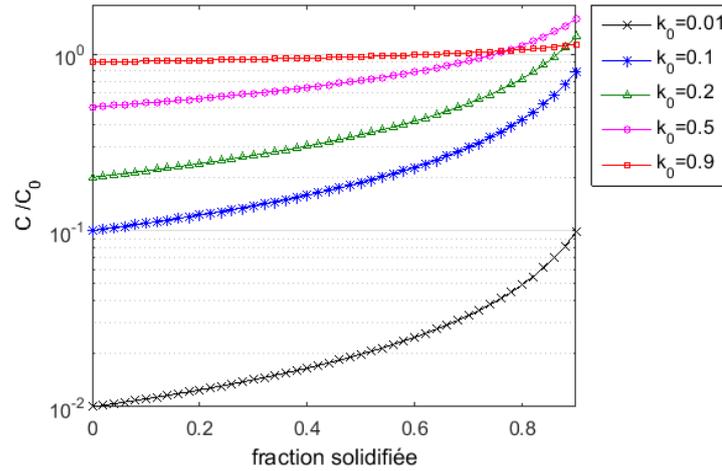


FIGURE 1.2 – Profils de concentrations normalisés par C_0 prédits par la loi de *Scheil-Gulliver*, pour différents coefficients de partage k_0 .

1.1.2.2 Régime diffusif pur

À l'opposé de l'équation de *Scheil-Gulliver*, qui suppose une convection intense, on peut supposer l'absence totale de convection. Ceci équivaut à considérer un champ de vitesse nul ($\vec{u} = \vec{0}$) dans l'équation (1.10). En considérant uniquement les variations de concentration dans la direction de solidification (notée ici z) et en se plaçant dans un référentiel lié au front de solidification, on peut écrire une équation de transport simplifiée pour le régime diffusif pur :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 C_L}{\partial z_L^2} + V_I \frac{\partial C_L}{\partial z_L}, \quad (1.13)$$

où z_L représente la distance dans le liquide par rapport au front de solidification. La résolution de cette équation nécessite de définir les conditions aux limites du problème. Au niveau du front de solidification, la condition de conservation est donnée par l'équation (1.11) que l'on peut réécrire, en négligeant la diffusion dans le solide :

$$-D_L \left. \frac{\partial C_L}{\partial z_L} \right|_I = V_I C_L^I (1 - k_0). \quad (1.14)$$

En supposant un domaine semi-infini avec $C_L^\infty = C_0$ lorsque $z_L \rightarrow \infty$, on obtient une solution quasi-stationnaire [89] :

$$\frac{C_L(z_L)}{C_0} = 1 + \left(\frac{1 - k_0}{k_0} \right) \exp \left(-\frac{V_I}{D_L} z_L \right). \quad (1.15)$$

Cette expression nous donne accès au profil de concentration dans la phase liquide. Il présente une couche limite solutale d'épaisseur $\delta = D_L/V_I$, enrichie en soluté (lorsque $k_0 < 1$), dans laquelle se font les variations de concentration. On voit qu'au niveau de l'interface ($z_L = 0$), la concentration dans le liquide est égale à C_0/k_0 . Donc, en régime établi et d'après la relation (1.7), la concentration incorporée dans la phase solide est constante et égale à C_0 . Néanmoins, il existe une phase transitoire initiale nécessaire à la formation de la couche limite solutale et au cours de laquelle la concentration incorporée dans le solide passe de $k_0 C_0$ à C_0 . Une solution approchée du profil de concentration attendu dans la phase solide a été proposée par Tiller et al. [89] :

$$\frac{C_s(z)}{C_0} = (1 - k_0) \left[1 - \exp\left(-k_0 \frac{V_I}{D_L} z\right) \right] + k_0. \quad (1.16)$$

Cette solution approchée permet d'identifier une longueur caractéristique $D_L/(k_0 V_I)$ de la phase transitoire. Par la suite, Smith et al. [81] ont proposé une solution exacte du transitoire initial de ségrégation pour un régime purement diffusif :

$$\begin{aligned} \frac{C_s(z)}{C_0} = \frac{1}{2} & \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{V_I}{D_L}} z\right) \right. \\ & \left. + (2k_0 - 1) \exp\left(-k_0(1 - k_0) \frac{V_I}{D_L} z\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{(2k_0 - 1)}{2} \sqrt{\frac{V_I}{D_L}} z\right) \right]. \end{aligned} \quad (1.17)$$

En comparant les deux solutions (1.16) et (1.17), Smith et al. [81] obtiennent une erreur maximale de l'ordre de 20% pour la solution approchée. La figure 1.3 représente les profils de concentration obtenus dans la phase solide par les relations (1.16) et (1.17) et le profil de concentration dans la phase liquide obtenu par la relation (1.15). Les tangentes à l'origine des relations (1.16) et (1.15) permettent de visualiser la longueur caractéristique du transitoire initial ($D_L/(k_0 V_I)$) ainsi que l'épaisseur caractéristique de la couche limite solutale ($\delta = D_L/V_I$).

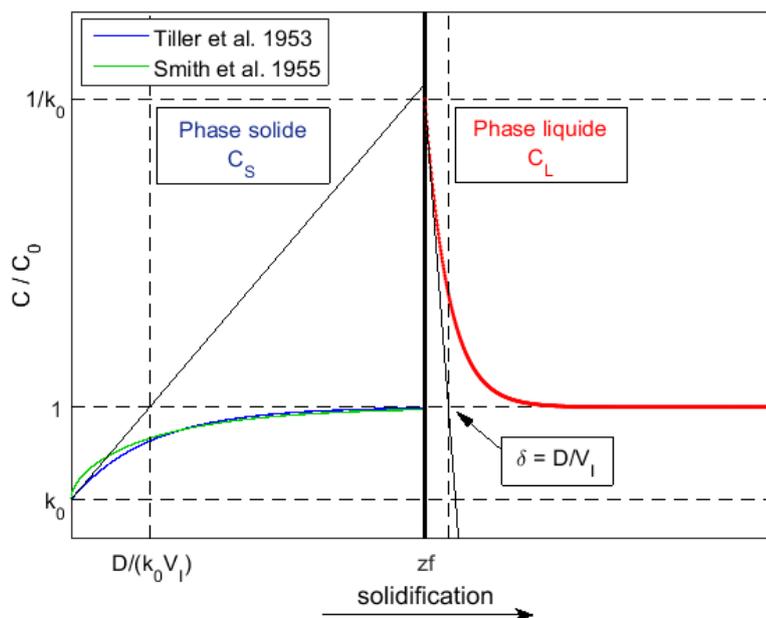


FIGURE 1.3 – Profils de concentration pour le régime diffusif pur dans les phases solide et liquide obtenus à partir des relations proposées par Tiller et al. [89] et Smith et al. [81].

1.1.2.3 Régime convecto-diffusif

Cette étude s'intéresse particulièrement à des configurations de ségrégation en régime de convection forcée. L'introduction d'un agitateur dans le bain de silicium liquide doit permettre de favoriser la ségrégation des impuretés vers le haut, en intensifiant la convection dans le liquide. La loi de *Scheil-Gulliver* représente alors le régime idéal vers lequel il faut tendre. D'une manière générale, l'intensification de la convection aura pour effet de réduire l'épaisseur de la couche limite solutale δ , mais cette couche limite ne peut être complètement supprimée. Une définition de δ dans le cas général d'un régime convecto-diffusif a été proposée par Wilson [93] :

$$\delta = \frac{C_L^I - C_L^\infty}{-(\partial C_L / \partial z_L)|_I}, \quad (1.18)$$

où C_L^∞ représente la concentration dans la phase liquide loin de l'interface (en dehors de la couche limite solutale). En utilisant la condition de conservation au niveau du front (1.14), la relation (1.18) peut être mise sous la forme :

$$\delta = \frac{C_L^I - C_L^\infty}{\frac{V_L}{D_L} C_L^I (1 - k_0)}. \quad (1.19)$$

Dans le cas du régime diffusif pur, la relation (1.15) indique que $C_L^I = C_L^\infty / k_0$ ce qui permet de retrouver la valeur caractéristique D_L / V_I . Dans le cas général la convection permet d'homogénéiser le liquide avec une concentration C_L^I plus proche de C_L^∞ , donc une couche limite solutale plus fine. On peut définir le paramètre convecto-diffusif Δ comme l'épaisseur de la couche limite normalisée par sa valeur dans le cas du régime diffusif pur :

$$\Delta = \frac{\delta V_I}{D_L} = \frac{C_L^I - C_L^\infty}{C_L^I (1 - k_0)}. \quad (1.20)$$

Les équations (1.14) et (1.18) (qui sont valables quel que soit le régime de transport des impuretés) permettent d'écrire :

$$C_L^I = \frac{C_L^\infty}{1 - (1 - k_0)\Delta}. \quad (1.21)$$

Il est alors possible de définir un coefficient de ségrégation effectif k_{eff} représentant le rapport entre la concentration dans le solide à l'interface et la concentration dans le liquide loin de l'interface :

$$k_{eff} = \frac{C_S^I}{C_L^\infty} = \frac{k_0}{1 - (1 - k_0)\Delta}. \quad (1.22)$$

On voit que dans le cas d'une convection intense ($\Delta \rightarrow 0$), k_{eff} tend vers k_0 , ce qui représente une ségrégation optimale des impuretés. À l'inverse, en l'absence de convection ($\Delta \rightarrow 1$), k_{eff} tend vers 1. L'équation de *Scheil-Gulliver* peut être modifiée en substituant le coefficient de partage effectif k_{eff} à k_0 afin de prendre en compte la présence d'une couche limite solutale :

$$\frac{C_S(z)}{C_0} = k_{eff} (1 - f_S)^{k_{eff}-1}. \quad (1.23)$$

Là encore, pour un k_{eff} donné inférieur à 1, la concentration tend vers l'infini quand la fraction solide tend vers 1. La relation (1.23) n'est donc pas valable jusqu'à la fin de la solidification. De plus, cette relation n'est valable qu'en régime établi et ne tient pas compte du transitoire initial lié à la formation de la couche limite solutale. Une solution analytique de ce problème a

été proposée par Garandet et al. [39] pour une configuration 1D semi-infinie. Au début de la solidification ($t = 0$) la phase liquide est supposée homogène, de concentration C_0 . Par ailleurs, la condition limite de concentration loin de l'interface est fixée à $C_L = C_0$ lorsque z tend vers l'infini. La concentration dans la phase solide s'exprime alors :

$$\frac{C_S(z)}{C_0} = \frac{1}{2}k_{eff} \left\{ 1 + \operatorname{erf} \left[\frac{\sqrt{zV_I/D_L}}{2\Delta} \right] + (1 - 2(1 - k_0)\Delta) \exp \left[\frac{-(1 - (1 - k_0)\Delta)(1 - k_0)zV_I/D_L}{\Delta} \right] * \operatorname{erfc} \left[\frac{(2(1 - (1 - k_0)\Delta) - 1)\sqrt{zV_I/D_L}}{2\Delta} \right] \right\}. \quad (1.24)$$

Une solution simplifiée basée sur une analyse en ordres de grandeur a également été proposée pour la même configuration par Garandet et al. [39]. Cette analyse permet d'estimer la concentration dans le solide par la relation :

$$\frac{C_S(z)}{C_0} = k_{eff} \left[1 - (1 - k_0)\Delta \exp \left(-\frac{z}{z_T} \right) \right], \quad (1.25)$$

où z_T représente la longueur du transitoire initial et s'exprime :

$$z_T = \frac{D_L \Delta^2}{V_I [1 - (1 - k_0)\Delta]}. \quad (1.26)$$

Dans le cas d'un régime purement diffusif ($\Delta = 1$), on retrouve la longueur caractéristique $z_T = D_L/(k_0 V_I)$. Pour un régime fortement convectif ($\Delta \rightarrow 0$), la longueur caractéristique se réduit à $z_T = D_L \Delta^2/V_I$. La longueur du transitoire devient alors indépendante du coefficient de ségrégation k_0 . Les longueurs de transitoires obtenues par les solutions exacte (1.24) et approchée (1.25) ont été comparées par les auteurs et l'erreur maximale de la solution approchée a été estimée à 30% (voir figure 1.4).

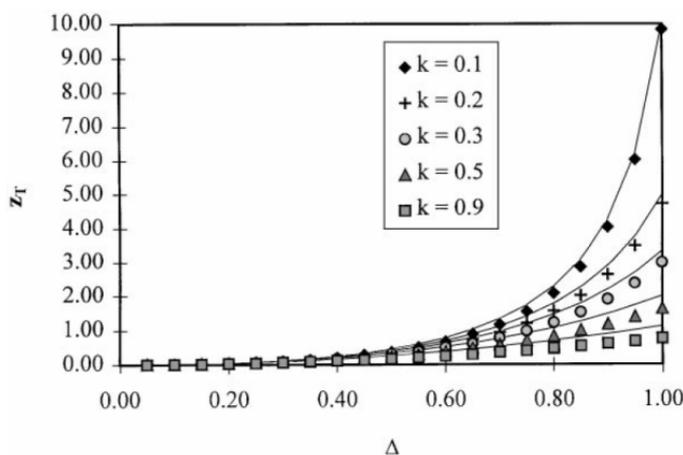


FIGURE 1.4 – Variation de la longueur du transitoire initial normalisée ($Z_T = z_T V_I/D_L$) en fonction de Δ . Comparaison des solutions exacte (1.24) et approchée (1.25). Figure extraite de Garandet et al. [39].

1.1.3 Couche limite solutale : une analyse en ordres de grandeur

1.1.3.1 Description de la couche limite hydrodynamique

Avant de traiter en détail la couche limite solutale, il nous semble nécessaire de présenter le concept de couche limite ainsi que la description de la couche limite hydrodynamique. Le concept de couche limite a été introduit par *Prandtl* au début du XX^{eme} siècle. La théorie de la couche limite est aujourd'hui utilisée en mécanique des fluides pour décrire l'écoulement d'un fluide autour d'une paroi. Cette théorie considère que la zone de l'écoulement qui est influencée par la condition d'adhérence est de dimension finie et qu'en dehors de cette zone tout ce passe comme si le fluide était non visqueux. On peut alors restreindre le domaine d'étude, ce qui simplifie la formulation du problème. Cette théorie trouve de nombreuses applications pour l'étude du frottement d'un fluide sur une paroi ou des transferts de chaleur et de masse entre un fluide et une paroi [4]. Suivant que l'on s'intéresse au champ de vitesse, aux transferts thermiques ou aux transferts de masse, on pourra être confronté à des épaisseurs de couche limite différentes (couche limite hydrodynamique, thermique ou solutale). Dans cette section nous présentons la couche limite de vitesse, aussi appelée couche limite hydrodynamique.

1.1.3.1.1 Couche limite laminaire

Si on considère le cas classique d'un écoulement permanent bidimensionnel parallèle à une plaque plane tel que $\vec{u} = U_\infty \vec{x}$ (voir figure 1.5), le régime d'écoulement dans la couche limite peut-être caractérisé par un nombre de *Reynolds* local basé sur la distance parcourue le long de la plaque :

$$Re_x = \frac{U_\infty x}{\nu}. \quad (1.27)$$

Pour des faibles valeurs du nombre de *Reynolds* ($Re_x < 3.5 \times 10^5$), l'écoulement dans la couche limite est laminaire. Pour formuler le problème de couche limite, *Prandtl* suppose que le terme de diffusion longitudinale est négligeable devant le terme transversal ($\partial^2 u / \partial x^2 \ll \partial^2 u / \partial z^2$) et que les variations transversales de pression sont faibles devant les variations longitudinales ($\partial p / \partial z \ll \partial p / \partial x$) [7]. En utilisant ces différentes hypothèses, le problème de la couche limite tel qu'il a été formulé par *Prandtl* s'écrit :

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0, \quad (1.28)$$

$$u \frac{\partial u}{\partial x} + w \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \nu \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}. \quad (1.29)$$

L'épaisseur de la couche limite de vitesse δ_v dépend de la position x le long de la plaque, c'est le développement de la couche limite. La figure 1.5 présente un schéma du développement d'une couche limite laminaire. L'épaisseur de la couche limite est définie par l'équilibre entre les termes d'inertie et de viscosité de l'équation (1.29) [7]. L'ordre de grandeur de δ_v peut ainsi être estimé en écrivant l'équilibre entre le terme d'inertie $u(\partial u / \partial x) = O(U_\infty^2 / x)$ et le terme de viscosité $\nu(\partial^2 u / \partial z^2) = O(\nu U_\infty / \delta_v^2)$:

$$\delta_v(x) \sim \sqrt{\frac{\nu x}{U_\infty}}. \quad (1.30)$$

Une solution exacte de ce problème a par la suite été proposée par *Blasius* [4]. δ_v est alors définie comme la hauteur à laquelle $u(x) = 0.99U_\infty$ et s'exprime par la relation :

$$\frac{\delta_v(x)}{x} = \frac{4.92}{Re_x^{1/2}}. \quad (1.31)$$

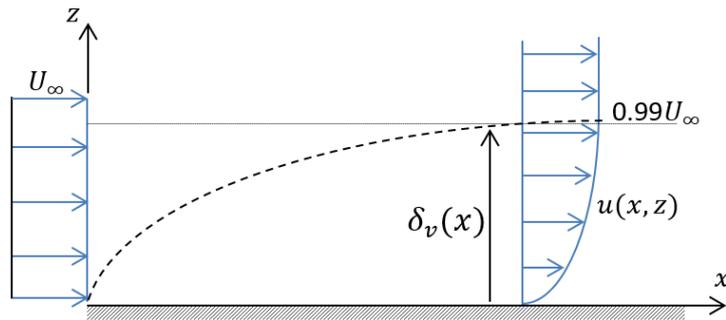


FIGURE 1.5 – Schéma du développement d'une couche limite laminaire le long d'une plaque plane.

1.1.3.1.2 Couche limite turbulente

Lorsque le nombre de *Reynolds* local atteint une valeur de l'ordre de 3.5×10^5 , des fluctuations du champ de vitesse commencent à être amplifiées par l'écoulement, jusqu'à la formation d'un régime pleinement turbulent pour la valeur critique de $Re_x^* = 10^6$ [7]. Ce régime est caractérisé par un comportement instationnaire et fortement 3D de l'écoulement. Une approche usuelle pour décrire les écoulements turbulents consiste à décomposer les grandeurs en une partie moyenne et des fluctuations autour de cette moyenne. Il s'agit de la décomposition de *Reynolds*, qui sera détaillée dans la section 2.1.2.2.

Remarque sur les notations

Dans la suite du rapport, la notation " $\bar{\cdot}$ " désigne un opérateur de moyenne temporelle et la notation " $\langle \cdot \rangle$ " désigne un opérateur de moyenne spatiale. Sauf indication contraire, et afin de ne pas alourdir les notations, les variables utilisées désignent systématiquement des grandeurs moyennes au sens de la turbulence.

Pour analyser le champ de vitesse dans la couche limite il est utile d'introduire des variables sans dimensions. Pour cela, on définit la vitesse de frottement :

$$u_\tau = \sqrt{\frac{\tau}{\rho}}, \quad (1.32)$$

où τ représente la contrainte de frottement moyenne à la paroi, définie par la relation :

$$\tau = \mu \left. \frac{\partial u}{\partial z} \right|_{z=0}, \quad (1.33)$$

u désignant la vitesse moyenne. On peut alors introduire une vitesse normalisée :

$$u^+ = \frac{u}{u_\tau}, \quad (1.34)$$

ainsi qu'une distance à la paroi normalisée :

$$z^+ = z \frac{u_\tau}{\nu}. \quad (1.35)$$

Dans le cas général d'une couche limite turbulente pleinement développée sans gradient de pression¹, le profil de vitesse transverse, présenté sur la figure 1.6, peut-être décomposé en trois

1. "sans gradient de pression" désigne ici le cas d'un milieu infini ; des gradients de pression peuvent être introduits par des effets de courbure, de rotation ou de confinement par exemple.

zones distinctes. On trouve tout d'abord une zone où l'écoulement est contrôlé par la viscosité, la turbulence étant amortie par la présence de la paroi. Cette zone est appelée la sous-couche visqueuse. Elle s'étend de la paroi jusqu'à $z^+ \approx 5$ et le profil de vitesse moyenne est linéaire dans cette zone :

$$u^+ = z^+. \quad (1.36)$$

Pour la zone $50 < z^+ < 500$, on peut décrire le profil de vitesse par un profil logarithmique de la forme :

$$u^+ = A \ln z^+ + B, \quad (1.37)$$

où A et B sont des constantes empiriques ($A \approx 2.5$ et $B \approx 5.5$) [4]. La zone de raccordement entre la sous-couche visqueuse et la zone logarithmique est appelée zone "tampon" ou *buffer layer* en anglais.

Dans les simulations numériques il est nécessaire de définir la forme du profil de vitesse dans la maille adjacente à la paroi. C'est l'objet des fonctions de paroi hydrodynamiques. Idéalement, si le centre de la maille est compris dans la sous-couche visqueuse, il suffit d'imposer un profil linéaire respectant la condition d'adhérence à la paroi. On a alors une résolution numérique complète de la couche limite. Mais dans de nombreux cas l'épaisseur de la sous-couche visqueuse est trop petite pour permettre un tel raffinement du maillage. On a alors recours à des fonctions de paroi empiriques. Ces fonctions utilisent des profils logarithmiques similaires à la relation (1.37) qui peuvent être ajustés en fonction de la configuration étudiée.

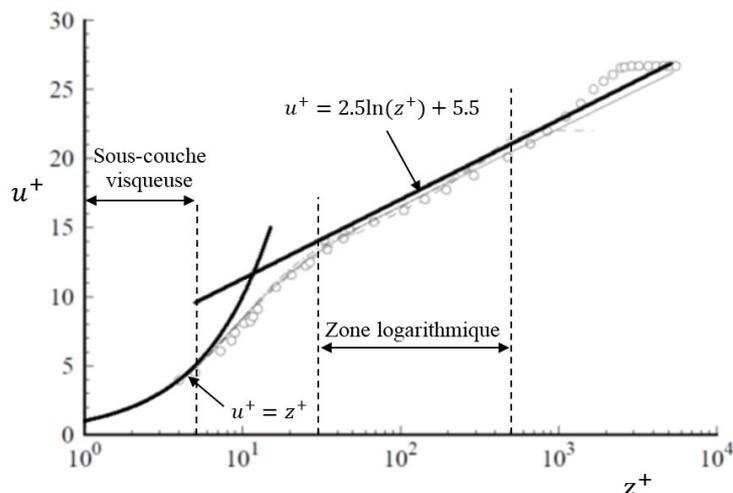


FIGURE 1.6 – Profil de vitesse moyenne normalisée dans une couche limite turbulente pour un écoulement de plaque plane sans gradient de pression longitudinal. Image extraite de Pope [75].

1.1.3.2 Formulation analytique de la couche limite solutale

On a vu dans la section 1.1.2 le rôle que joue la convection sur la ségrégation des impuretés dans le silicium. L'introduction du paramètre convecto-diffusif Δ permet de quantifier l'intensité de la convection dans le liquide et d'évaluer son impact sur la ségrégation. Néanmoins, afin de déterminer ce paramètre Δ il faut calculer l'épaisseur de la couche limite solutale δ dans les conditions d'écoulement rencontrées, ce qui renvoie à la résolution de l'équation de la concentration (1.10). Une première approche basée sur une analyse en ordres de grandeur permet de simplifier cette équation dans le but d'estimer δ pour un écoulement donné. Cette approche a été présentée par Garandet et al. [38] pour des configurations idéales de procédés

Czochralski et *Bridgman* (convection naturelle en régime laminaire). Pour notre étude on s'intéressera particulièrement à la configuration *Bridgman*. Par ailleurs cette même approche a été récemment utilisée pour l'étude numérique d'une cavité entraînée simulant une boucle de convection dans un creuset lors d'un procédé de solidification dirigée en configuration verticale (convection forcée en régimes laminaire et turbulent) [41]. Concernant la technique d'analyse en ordre de grandeur, le lecteur pourra se référer à la section 1.5 du livre de Bejan [4].

Pour cette analyse, on se base sur l'équation (1.10) et on se place dans le cas d'une cavité 2D (représentant le creuset). À l'intérieur de la cavité le fluide est mis en mouvement, soit sous l'effet de la convection naturelle, soit par l'action d'un dispositif de brassage. On a donc un champ de vitesse bidimensionnel $\vec{u} = u\vec{x} + w\vec{z}$. Dans un référentiel lié au front de solidification (représenté par le fond de la cavité) et pour un régime quasi-permanent, l'équation (1.10) donne :

$$D_L \left(\frac{\partial^2 C_L}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_L}{\partial z^2} \right) - u \frac{\partial C_L}{\partial x} + (V_I - w) \frac{\partial C_L}{\partial z} = 0, \quad (1.38)$$

où z est la direction normale au front de solidification et x la direction tangentielle. Afin d'obtenir une expression analytique simple, nous sommes amenés à considérer les variations latérales de concentration (variations suivant x) comme négligeables devant les variations longitudinales (variations suivant z). Le problème devient alors unidimensionnel et s'exprime par l'équation :

$$D_L \frac{\partial^2 C_L}{\partial z^2} + (V_I - w(z)) \frac{\partial C_L}{\partial z} = 0. \quad (1.39)$$

L'étape suivante consiste à normaliser les variables z et C_L par les grandeurs caractéristiques adaptées. Étant donné que l'on s'intéresse ici à la couche limite solutale, il est naturel de choisir son épaisseur, δ , comme l'échelle caractéristique de longueur de notre problème. Ensuite, on sait que C_L varie de C_L^I à C_L^∞ à l'échelle de cette couche limite. On utilise donc comme changement de variable : $z = \delta Z$ et $C_L = C_L^\infty + c(C_L^I - C_L^\infty)$, où Z et c représentent respectivement la position verticale et la concentration adimensionnées [38]. L'équation (1.39) s'écrit alors :

$$\frac{D_L}{\delta} \frac{\partial^2 c}{\partial Z^2} + (V_I - w(\delta Z)) \frac{\partial c}{\partial Z} = 0. \quad (1.40)$$

On considère enfin que la vitesse de convection caractéristique doit être prise à la frontière de la couche limite (en $z = \delta$) et que les dérivés adimensionnelles sont de l'ordre de grandeur de l'unité. On obtient alors une équation simplifiée proposée par Garandet et al. [38] pour déterminer δ :

$$\frac{D_L}{\delta} \approx V_I - w(\delta). \quad (1.41)$$

Cette expression nous donne accès à l'épaisseur de couche limite solutale δ (en ordre de grandeur), en fonction de la vitesse de l'interface, du coefficient de diffusion et de la vitesse de convection normale à l'interface. Il faut alors estimer la vitesse de convection $w(\delta)$ pour une configuration géométrique et un écoulement donnés. Une approche de ce type a été proposée par Garandet et al. [41] pour le cas d'une cavité entraînée (voir figure 1.7). L'écoulement considéré forme une boucle de recirculation.

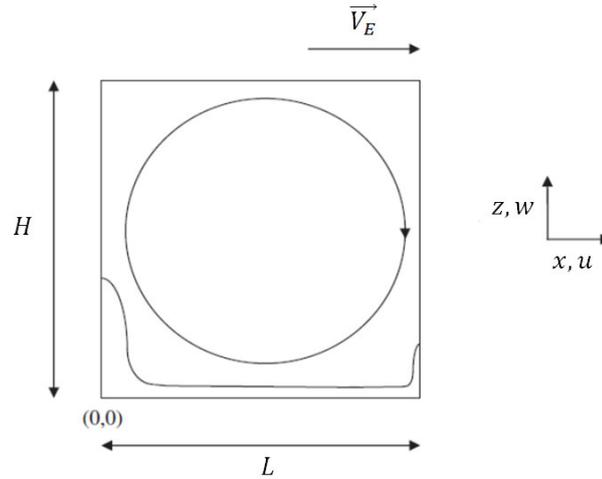


FIGURE 1.7 – Configuration de cavité entraînée (figure extraite de Garandet et al. [41]).

On suppose que, dans le cas d'un écoulement turbulent pleinement développé, l'épaisseur de la couche limite solutale est inférieure à l'épaisseur de la sous-couche visqueuse. Ainsi, il est possible d'exprimer la vitesse de convection au niveau du front de solidification en fonction de la contrainte visqueuse τ par un profil linéaire. La composante de vitesse moyenne tangentielle à l'interface solide/liquide s'exprime :

$$u(z) = \frac{\tau}{\mu}z. \quad (1.42)$$

Pour relier la composante tangentielle de vitesse u à la composante normale w , on utilise l'équation de conservation de la masse dans le cas d'un fluide incompressible, pour un écoulement 2D :

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0. \quad (1.43)$$

Pour cette analyse en ordres de grandeur, la longueur caractéristique pour la variation de u dans la direction tangentielle peut être assimilée à la largeur de la cavité L . Cela revient à supposer qu'une recirculation principale s'étend sur l'ensemble de la cavité et que les recirculations secondaires localisées dans les coins sont négligeables. On écrit alors :

$$\frac{\partial u}{\partial x} \approx \frac{\tau}{\mu L}z. \quad (1.44)$$

La longueur caractéristique de la variation de w dans la direction normale est donnée par la distance z avec le front de solidification. Ce qui permet d'écrire :

$$w(z) \approx -\frac{\tau}{\mu L}z^2. \quad (1.45)$$

En introduisant cette expression de la vitesse de convection dans l'équation (1.41) on obtient :

$$\frac{D_L}{\delta} = V_I + \frac{\tau}{\mu L}\delta^2. \quad (1.46)$$

Cette équation du troisième degré peut être résolue par la méthode de *Cardan*. **On en déduit alors que la valeur du paramètre convecto-diffusif Δ est fonction d'un unique paramètre sans dimension $B = (\tau D^2)/(V_I^3 \mu L)$:**

$$\Delta = (2B)^{-1/3} \left\{ \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4}{27B}} \right)^{1/3} + \left(1 - \sqrt{1 + \frac{4}{27B}} \right)^{1/3} \right\}. \quad (1.47)$$

Comme on peut le voir sur la figure 1.8, l'expression analytique (1.47) présente deux régimes asymptotiques. Lorsque B tend vers 0 alors Δ tend vers 1 (régime diffusif), et lorsque B devient grand devant 1 alors Δ tend vers $B^{-1/3}$ (régime convectif). Un lien d'ordre de grandeur a ainsi été établi entre la contrainte de frottement à l'interface solide/liquide et l'épaisseur de la couche limite solutale. Ceci représente un intérêt pour la simulation numérique du procédé puisqu'il semble possible de restreindre la simulation au problème couplé de thermique et d'hydrodynamique et de traiter la ségrégation par cette approche analytique simplifiée. Ceci offre donc une perspective d'alléger le maillage au voisinage de l'interface. L'étude de Garandet et al. [41] met en évidence la validité du modèle analytique pour une configuration 2D de cavité entraînée en régime stationnaire. Elle montre notamment qu'une bonne estimation de l'épaisseur de couche limite solutale peut être obtenue à partir de la contrainte de frottement moyenne à l'interface solide/liquide. Ceci confirme l'aptitude de l'analyse en ordres de grandeur à capturer la physique du phénomène de ségrégation. Par la suite, Kaddeche et al. [54] ont pu comparer ce modèle analytique à des résultats numériques et expérimentaux de ségrégation en configuration *Bridgman* horizontale. Leur objectif était de tester le modèle analytique dans une configuration de référence largement étudiée dans la littérature et présentant des résultats expérimentaux et numériques fiables. Les résultats du modèle analytique se sont avérés être en bon accord avec les résultats de référence.

Les auteurs soulignent cependant certaines limites du modèle [41]. Tout d'abord, l'hypothèse d'une sous-couche visqueuse plus épaisse que la couche limite solutale devient discutable pour des régimes turbulents pleinement développés. Dans ce cas, des termes relatifs au transport par la turbulence doivent être pris en compte dans l'équation (1.38). D'autre part, cette approche suppose un écoulement de couche limite parallèle au front de solidification. Elle n'est donc pas valide au voisinage d'éventuels décollements ou points d'arrêt.

D'autres approches ont également été proposées pour faire le lien entre la contrainte de frottement et le transfert de masse à l'interface solide/liquide. On peut notamment citer la thèse de Santara [80] qui propose des modèles basés sur les analogies de *Reynolds* et de *Colburn*, ainsi que la publication de Delannoy and Zaidat [23] qui étudie le transfert de masse dans une couche limite turbulente lors de la solidification dirigée sous brassage électromagnétique.

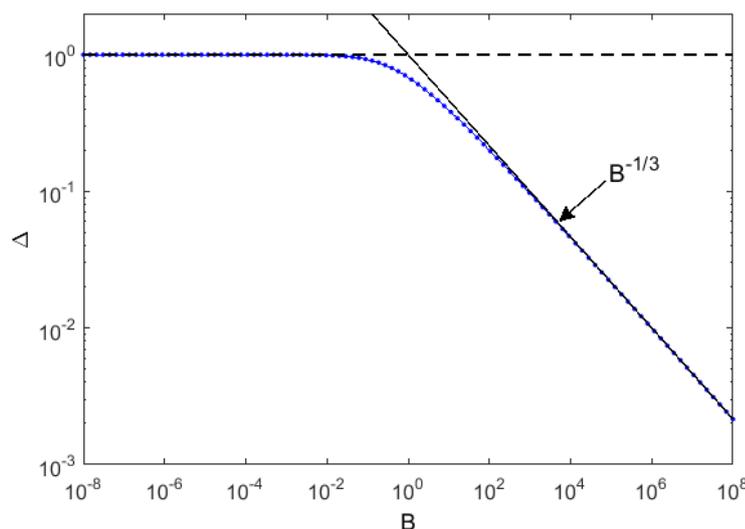


FIGURE 1.8 – Évolution du paramètre convecto-diffusif Δ en fonction du paramètre B , d'après la relation (1.47).

Remarque sur l'aspiration des couches limites

Dans leur publication, Delannoy et Zaidat [23] soulignent que lors de la solidification dirigée, un phénomène d'aspiration de la couche limite hydrodynamique peut être observé en raison du déplacement de l'interface solide/liquide à une vitesse V_I . L'aspiration de couche limite est un phénomène bien connu en aérodynamique ; la vitesse du fluide à travers la paroi étant susceptible de modifier le frottement pariétal. Néanmoins, Bejan [4] précise que pour que ce phénomène soit significatif, la vitesse d'aspiration (V_I dans notre cas) doit être au moins du même ordre que la vitesse transversale dans la couche limite (w dans notre cas). Or, d'après la relation (1.41), un rapport V_I/w de l'ordre de 1 conduit nécessairement à un régime de ségrégation proche d'un régime purement diffusif. Dans cette étude, nous nous intéressons essentiellement à des régimes convectifs intenses. Nous considérons donc ce phénomène comme négligeable pour les configurations étudiées ici.

1.1.4 Simulation numérique de la solidification

On a vu dans la section 1.1.1 que la solidification dirigée est un problème complexe faisant intervenir les transferts de chaleur dans l'enceinte du four, les mouvements convectifs dans la phase liquide et le changement de phase à l'interface solide/liquide. Sans oublier le transport d'espèces dans la phase liquide dans le cas des alliages ou de la ségrégation d'impuretés. Il s'agit d'un problème à frontière libre puisque la forme et la position de l'interface solide/liquide sont inconnues a priori. La simulation des procédés de solidification nécessite une procédure de suivi de l'interface afin d'y imposer les conditions aux limites sur le champ de vitesse et les flux de chaleur et de masse. Il existe deux approches pour la simulation numérique des interfaces solide/liquide.

La première, appelée **méthode enthalpique**, consiste à définir l'intervalle de température dans lequel le changement de phase se produit et à calculer en chaque point une variable appelée fraction liquide. L'interface est donc définie implicitement par une isovaleur de la fraction liquide. Cette technique utilise une grille de calcul fixe mais nécessite un raffinement constant du maillage afin d'obtenir une discrétisation suffisante pour la transition solide/liquide. De nombreuses études récentes utilisent cette méthode. Elle est notamment proposée dans le logiciel ANSYS FLUENT qui est utilisé par Bellmann et al. [6] pour simuler la solidification dirigée d'un lingot de silicium cylindrique de 12 kg (diamètre 25 cm et hauteur 10 cm). Le modèle présenté est 2D axisymétrique et permet d'étudier le transport et la ségrégation du carbone et de l'oxygène. Le même logiciel est utilisé par Cablea et al. [13] pour simuler un procédé *Bridgman* vertical en présence d'un brassage électromagnétique. Il est également utilisé par Delannoy et al. [24] pour simuler la solidification de lingots à échelle industrielle ($70 \times 70 \times 20 \text{ cm}^3$) en 3D. Pour ces trois études les modèles présentent une géométrie détaillée du four afin d'avoir une description réaliste des conditions de températures aux parois du creuset. Dans une autre publication, Bellmann and M'Hamdi [5] s'intéressent à l'influence de la structure des écoulements de convection naturelle en régime laminaire sur la ségrégation du bore, du carbone et de l'oxygène lors de la solidification dirigée du silicium. Un modèle 2D axisymétrique est alors implémenté sous FLUENT et des conditions de température sont imposées aux parois du creuset. Différentes configurations thermiques avec des fronts de solidification plan, concave et convexe sont étudiées. La méthode enthalpique est également utilisée pour simuler des procédés de tirage *Czochralski*. Pour ce procédé la contrainte sur le raffinement du maillage est sensiblement réduite puisque la position macroscopique de l'interface est connue et varie peu au cours de la solidification. Jung et al. [53] utilisent une approche couplée 2D/3D pour étudier l'influence de la convection sur la courbure de l'interface solide/liquide. La thermique du four est simulée

dans un modèle 2D axisymétrique à l'aide du logiciel CRYSMAS et la convection dans la phase liquide est simulée en 3D sous OPENFOAM avec une approche LES pour la modélisation de la turbulence. Une procédure itérative est utilisée pour faire converger la forme de l'interface entre les modèles 2D et 3D. Une approche similaire est utilisée par Liu and Kakimoto [60] pour simuler un procédé *Czochralski* en régime quasi-permanent.

La seconde méthode, généralement appelée méthode de **maillage adaptatif** (ou maillage déformable), consiste à définir explicitement l'interface solide/liquide. Pour cela, les nœuds du maillage de l'interface doivent être contraints à suivre son déplacement et sa déformation. Le déplacement de l'interface est calculé à chaque pas de temps par un bilan de flux et le maillage se déforme pour s'adapter à cette nouvelle position. Cette technique permet d'appliquer un raffinement local à l'interface, réduisant ainsi les temps de calculs par rapport à la méthode enthalpique (à précision égale). La définition des conditions aux limites est également simplifiée par la connaissance explicite de l'interface. Cette technique est utilisée par Dumitrica et al. [29] pour étudier la solidification dirigée de lingots de silicium à échelle pré-industrielle G2 ($38 \times 38 \times 40 \text{ cm}^3$) avec brassage mécanique en 3D. La convection forcée est simulée par une force volumique de rotation et les auteurs mettent en avant son influence sur la déformation de l'interface. Les simulations sont réalisées à l'aide du logiciel STHAMAS3D et le domaine de calcul se limite au volume de silicium avec des conditions de températures imposées aux parois du creuset. Dadzis et al. [22] utilisent un code développé sous OPENFOAM pour simuler la solidification dirigée du silicium en 3D à l'échelle du laboratoire (lingot de $22 \times 22 \times 11 \text{ cm}^3$) avec brassage électromagnétique. Le domaine de calcul est également limité au volume de silicium et la ségrégation de l'oxygène et du carbone est étudiée. Un module de solidification utilisant une technique de remaillage dynamique a également été développé sous le logiciel FLUENT dans le cadre de la thèse de Mircea Cablea [12] au laboratoire SIMAP¹. Ce module est utilisé pour simuler la solidification de lingots de silicium par un procédé *Bridgman* vertical avec un modèle 2D axisymétrique décrivant la thermique de l'ensemble du four. Ce modèle permet notamment d'étudier la ségrégation d'impuretés et l'influence d'une convection forcée par brassage électromagnétique. Par ailleurs, des simulations de solidification d'un alliage GaInSb ont été réalisées par Stelian et al. [83] à l'aide du logiciel FIDAP. Pour ce type d'alliage le transport d'espèces joue un rôle majeur puisque la température de solidification dépend de la composition. Ici le modèle est 2D axisymétrique et des simulations sont réalisées avec et sans champ magnétique. Les auteurs montrent que le brassage magnétique influence le transport de soluté ce qui modifie fortement la courbure de l'interface. Enfin, le logiciel CGSIM est utilisé par Teng et al. [87] pour simuler la solidification dirigée de lingots de silicium cylindriques de 69 cm de diamètre et 24.5 cm de hauteur. Le modèle est 2D axisymétrique et permet d'étudier l'influence de la convection sur la ségrégation du carbone. Un modèle global du four est utilisé pour déterminer les conditions de températures aux parois du creuset et un modèle local permet de résoudre la solidification, la convection et les transferts de chaleur et de masse dans le silicium.

Plusieurs approches sont donc en développement pour simuler les procédés de solidification à l'aide de différents logiciels. Le développement d'un modèle 3D permettant de décrire avec précision les conditions de température d'un four industriel et les phénomènes de convection et de transferts de chaleur et de masse dans le lingot reste cependant un défi. Comme évoqué en introduction, la principale difficulté réside dans la variété d'échelles de longueurs qui interviennent dans ce problème. Cette problématique justifie le développement d'une description analytique des phénomènes de ségrégation afin que ce ne soit plus un facteur dimensionnant du maillage. C'est cette approche qui est développée dans cette étude pour décrire la ségrégation des impuretés (particulièrement dans le chapitre 2).

1. Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés

1.2 Brassage et agitation

Comme on l'a vu dans la partie 1.1, la convection a une influence majeure sur la ségrégation solutale. L'un des objectifs de cette thèse est d'étudier l'influence d'un système de brassage sur la ségrégation des impuretés métalliques lors d'un procédé de solidification dirigée du silicium. Il existe différentes techniques de brassage possibles, telles que le brassage électromagnétique [27, 44, 85], le brassage par ultrasons [28, 57, 71] ou le brassage mécanique [29]. Le brassage électromagnétique est notamment utilisé dans l'industrie afin d'optimiser les procédés de tirage *Czochralski*. Il permet de contrôler le champ de convection sans risque de contamination du bain puisque c'est une technique sans contact. La technique mise en œuvre au LMPS pour la solidification dirigée est celle du brassage mécanique, qui permet une agitation intense et une bonne homogénéisation du liquide avec des contraintes de mise œuvre faibles. Les systèmes d'agitation mécaniques sont couramment utilisés dans l'industrie pour réaliser des opérations de mélanges qui peuvent faire intervenir des composés liquides, solides ou gazeux. Le système d'agitation doit être choisi en fonction de l'opération de mélange à réaliser et des conditions de fonctionnement.

1.2.1 Éléments de théorie sur les systèmes d'agitation

On distingue deux classes de mobiles d'agitation en fonction du mouvement qu'ils imposent au fluide : les mobiles à débit axial et les mobiles à débit radial (figure 1.9). De manière générale, on peut dire que les mobiles à débit axial assurent une forte circulation du fluide au sein de la cuve (fonction de pompage) alors que les mobiles à débit radial génèrent une forte turbulence et des effets de cisaillement importants. La géométrie de l'agitateur doit donc être choisie afin que l'écoulement généré soit optimal vis-à-vis de l'opération de mélange à réaliser. La figure 1.10 définit ces deux catégories pour les géométries classiques d'agitateurs [79].

Par ailleurs, le régime hydraulique obtenu dépend également des caractéristiques géométriques de la cuve telles que la présence de chicanes, l'excentration et l'inclinaison de l'arbre ou les dimensions de la cuve. Ces paramètres conditionnent notamment la formation d'un vortex autour de l'arbre, comme le montre la figure 1.11.

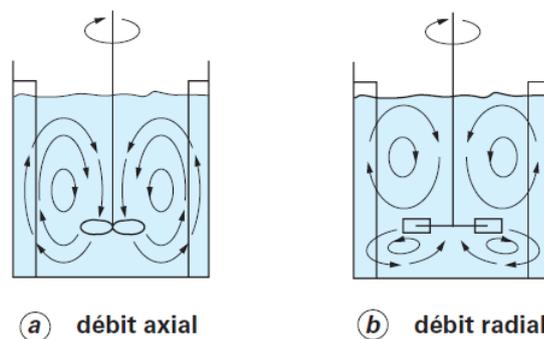


FIGURE 1.9 – Schémas de mobiles d'agitation à débit axial (a) et à débit radial (b). Image extraite des *Techniques de l'ingénieur* [79].

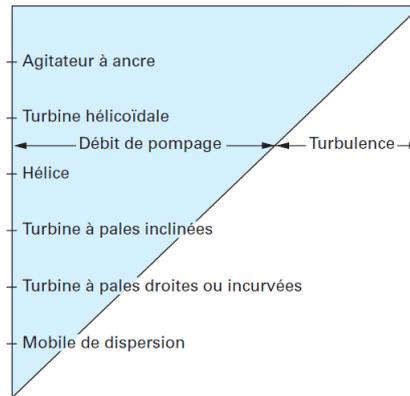


FIGURE 1.10 – Proportion entre pompage et turbulence pour différents mobiles d'agitation. Image extraite des *Techniques de l'ingénieur* [79].

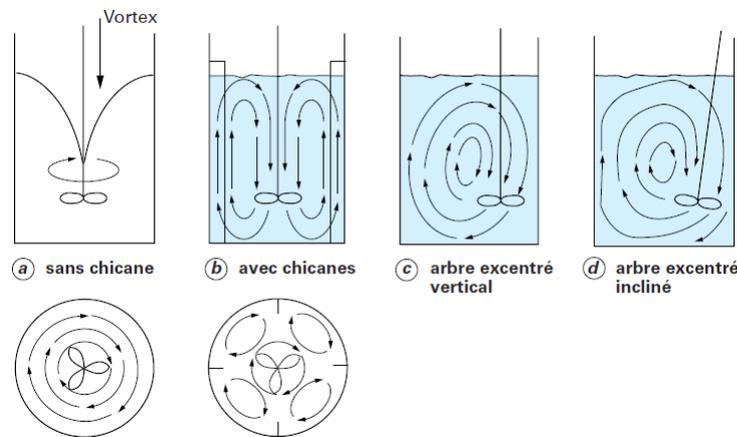


FIGURE 1.11 – Formes d'écoulements créés par un mobile d'agitation à débit axial. Image extraite des *Techniques de l'ingénieur* [79].

L'analyse dimensionnelle permet de déterminer les paramètres sans dimension caractéristiques d'un système d'agitation [79]. On peut tout d'abord définir le nombre de *Reynolds* de l'agitateur :

$$Re = \frac{Nd^2}{\nu}, \quad (1.48)$$

qui caractérise le rapport entre les forces d'inertie et les forces de viscosité. Il fait intervenir la vitesse de rotation N ($\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$), le diamètre de l'agitateur d (m) ainsi que la viscosité cinématique du fluide à mélanger, ν ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$). Le nombre de *Froude* représente le rapport des forces d'inertie et de gravité et s'exprime de la manière suivante :

$$Fr = \frac{N^2d}{g}. \quad (1.49)$$

Il caractérise le comportement de la surface libre de la cuve et notamment la présence éventuelle d'un vortex. g désigne ici la pesanteur ($\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$). Les effets liés à la tension superficielle du fluide sont décrits par le nombre de *Weber* :

$$We = \frac{\rho N^2 d^3}{\gamma}, \quad (1.50)$$

qui représente le rapport entre les forces d'inertie et de tension superficielle. Il fait intervenir la tension superficielle du fluide γ ($\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$) ainsi que sa masse volumique ρ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$). Enfin, le nombre de puissance représente le coefficient de traînée de l'agitateur dans le fluide :

$$Np = \frac{P}{\rho N^3 d^5}. \quad (1.51)$$

Il fait intervenir la puissance dissipée par l'agitateur P (W).

Lors de la conception d'un système d'agitation, il faut définir la géométrie de l'agitateur adaptée à l'opération de mélange (homogénéisation, dispersion ...) puis il faut dimensionner les composants du système (motorisation, arbre, paliers ...). Nous ne détaillerons pas ici toutes les étapes du dimensionnement, la démarche étant clairement exposée par Cognart et al. [20]. Néanmoins, il est important de noter que pour des géométries de cuve et d'agitateur données, la puissance dissipée par l'agitateur est définie par le régime hydrodynamique. On peut alors définir la caractéristique d'un agitateur (relation (1.52)) qui indique le nombre de puissance obtenu pour un des nombres de *Reynolds* et de *Froude* donnés [79]. Pour cela on utilise le paramètre adimensionnel Φ , défini par :

$$\Phi = \frac{Np}{Fr^y} = aRe^x, \quad (1.52)$$

a , x et y étant des constantes. La figure 1.12 donne l'allure d'une courbe caractéristique de puissance pour un agitateur donné. Ces courbes sont obtenues expérimentalement et permettent de définir différents régimes de fonctionnement de l'agitateur. Il est intéressant de voir que pour le régime turbulent, le nombre de puissance devient indépendant du nombre de *Reynolds*. Par ailleurs, l'influence du nombre de *Froude* est liée à la formation d'un vortex autour de l'arbre qui a pour effet de limiter la puissance dissipée par l'agitateur. On observe alors un comportement différent pour des cuves munies ou non de chicanes (ou contre-pales) afin d'empêcher la formation d'un vortex.

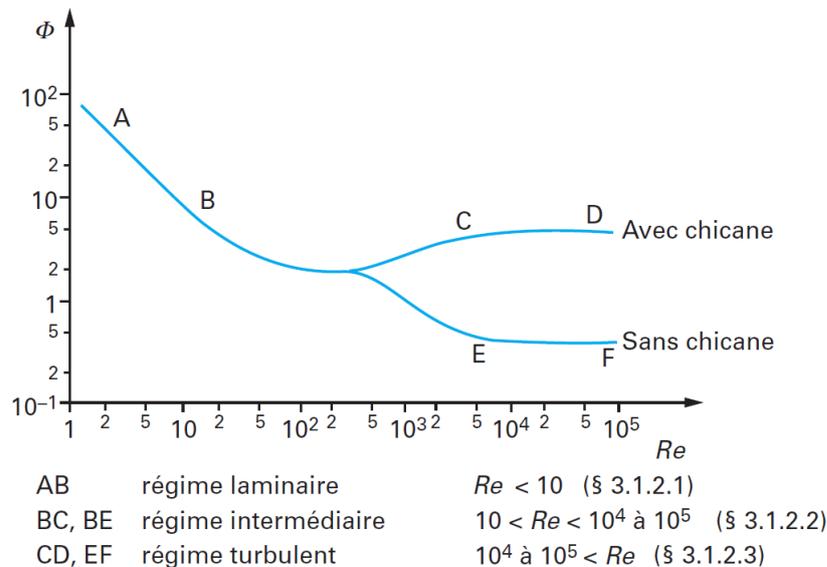


FIGURE 1.12 – Exemple de courbes caractéristiques de puissance. Image extraite des *Techniques de l'ingénieur* [79].

1.2.2 Choix de l'agitateur pour le dispositif LMPS

Un dispositif de brassage mécanique a été mis en place sur un four de cristallisation de taille G2 (lingots de 60 à 90 kg, largeur creuset de 38 cm) au laboratoire LMPS. Le choix de l'agitateur a fait l'objet d'une étude expérimentale et numérique, réalisée lors du stage de fin d'étude de Sylvère Caron au LMPS [15]. Cette étude a permis de concevoir un agitateur capable d'assurer l'opération de mélange et de résister aux contraintes de fonctionnement (température du silicium en fusion, infiltration dans les porosités du matériau ...). La géométrie de cet agitateur est présentée sur la figure 1.13. Si on considère un procédé de solidification dirigée du silicium, le brassage a pour objectif d'homogénéiser la phase liquide afin de diminuer l'épaisseur de la couche limite solutale. L'opération de mélange à réaliser est donc une homogénéisation. L'action principale du brasseur sera une action de pompage afin de créer une forte circulation du fluide dans le creuset. Pour cela, on privilégie des mobiles d'agitation à débit axial, dont le flux va venir impacter l'interface solide/liquide et faire circuler les impuretés au sein de la phase liquide. La géométrie idéale pour cette application est celle des agitateurs à débit axial que l'on trouve dans le commerce. Cependant, l'application visée entraîne de fortes contraintes sur le choix du matériau à utiliser. Afin de résister aux fortes températures (environ 1500 °C) le brasseur a été réalisé en graphite. Il s'agit d'un matériau difficile à usiner en raison de sa fragilité. Cette contrainte matériau a imposé une simplification de la géométrie par rapport aux agitateurs du commerce afin que l'usinage soit possible, avec un coût raisonnable. Afin de confirmer l'efficacité de la géométrie définitive, une étude numérique a été réalisée afin de comparer l'écoulement généré avec les écoulements de différents agitateurs du commerce.

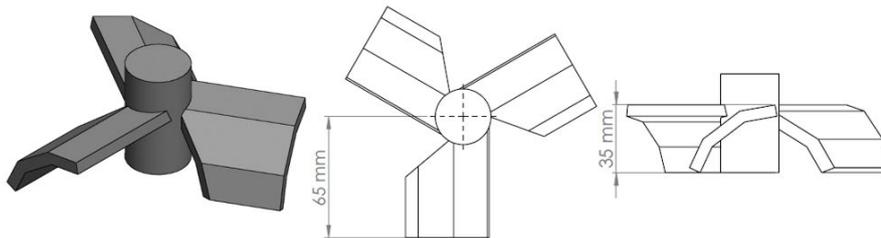


FIGURE 1.13 – Géométrie du brasseur développé et utilisé au LMPS pour un four de taille G2 (base du creuset $380 \times 380 \text{ mm}^2$).

1.2.3 Modélisation numérique d'un système d'agitation

La simulation numérique du brassage d'un fluide par un agitateur mécanique est délicate en raison du mouvement relatif qui existe entre l'agitateur et la cuve. Brucato et al. [9] indiquent que pour le cas des cuves cylindriques sans contre-pales, les codes de CFD permettent de résoudre explicitement l'écoulement généré par l'agitateur en décrivant sa géométrie exacte et en se plaçant dans un référentiel tournant lié à celui-ci. En revanche, pour des configurations de cuves munies de chicanes fixes, où dans notre cas de cuves carrées, le calcul de l'écoulement devient plus complexe. Il existe alors plusieurs approches pour modéliser le système de brassage.

Méthode IBC

La première méthode, souvent nommée IBC (pour *Impeller Boundary Condition*), est une approche de type « boîte noire ». Avec cette méthode on ne modélise pas la géométrie de l'agitateur, on se contente d'appliquer des conditions aux limites sur les frontières du volume qu'il occupe (volume balayé par les pales en rotation). Cette méthode permet de calculer des

écoulements stationnaires et évite le maillage de la géométrie souvent complexe de l'agitateur. Cependant, elle ne fournit aucune information sur le champ de vitesse dans la zone de l'agitateur et sur l'interaction entre le brasseur et la géométrie de la cuve. Par ailleurs, il faut une caractérisation précise de l'écoulement généré par l'agitateur pour pouvoir imposer les bonnes conditions aux limites. On doit alors disposer de mesures fines (souvent produites par LDV¹) des trois composantes du champ de vitesse, mais également des caractéristiques de la turbulence (énergie cinétique turbulente et taux de dissipation par exemple). Des comparaisons des résultats fournis par ces simulations à des mesures expérimentales [9] ont montré une grande sensibilité des modèles aux conditions aux limites imposées à la frontière de l'agitateur. Ces études ont également révélé une forte influence de la géométrie de la cuve sur l'écoulement proche de l'agitateur. On voit alors apparaître une limite de cette méthode puisqu'elle nécessite idéalement d'ajuster la condition limite lorsque l'on souhaite changer la géométrie de la cuve, ce qui implique de réaliser une nouvelle campagne expérimentale.

Termes sources équivalents

La deuxième approche vise également à simplifier le problème en ne modélisant pas la géométrie de l'agitateur. Le brassage est alors modélisé par des termes sources de quantité de mouvement intervenant dans les équations de *Navier-Stokes*. Ces termes sources sont équivalents aux forces volumiques induites par le brasseur dans le volume balayé par les pales. La définition de ces termes sources nécessite cependant une caractérisation préalable de l'agitateur. Plusieurs études ont été réalisées avec cette méthode pour des géométries classiques d'agitateurs mécaniques [26, 73, 74, 95].

Méthode MFR

La troisième approche est celle des référentiels multiples (*Multiple Frames of Reference*) introduite par Luo et al. [61]. Contrairement aux méthodes précédentes, on cherche ici à calculer l'écoulement en décrivant la géométrie exacte de l'agitateur. On se limite cependant à une solution stationnaire du champ de vitesse. Le principe consiste à diviser le domaine de calcul en deux zones : une zone proche de l'agitateur à laquelle on associe un référentiel tournant afin de simuler la rotation du brasseur et le reste du domaine auquel on associe un référentiel fixe. Comme l'explique Aubin et al. [2], la méthode MFR est une approximation de régime quasi-permanent qui est valable lorsque la distance entre l'agitateur et les parois de la cuve est suffisamment grande pour que l'écoulement proche de l'agitateur soit peu influencé par le reste de la cuve. L'interface entre la zone fixe et la zone tournante doit alors être positionnée de manière à ce que l'écoulement soit indépendant de la position tangentielle au niveau de l'interface. Les études réalisées avec cette méthode ont montré une bonne correspondance des résultats avec les mesures expérimentales pour les vitesses moyennes radiales et axiales. Les profils de vitesse tangentielle concordent moins avec l'expérience. L'énergie cinétique turbulente est systématiquement sous-estimée mais ceci est davantage lié aux modèles de turbulence utilisés (modèles type RANS² ou RSM³) qu'à la méthode MFR. La figure 1.14, extraite de la publication de Aubin et al. [2], donne un exemple de maillage utilisé pour une simulation MFR d'un agitateur à pales inclinées. La méthode de moyenne tangentielle (*Circumferential Averaging*) est une variante de cette méthode qui consiste à moyennner les variables dans la direction tangentielle au niveau de l'interface entre les deux domaines de calcul. Une fois encore, cette méthode donne peu d'informations sur l'influence que la géométrie de la cuve peut avoir sur

1. Laser Doppler Velocimetry
2. Reynolds Average *Navier-Stokes*
3. Reynolds Stress Model

l'écoulement à proximité de l'agitateur. Brucato et al. [9] proposent également une adaptation de cette méthode en définissant une zone interne à proximité des pales et une zone externe qui se recoupent partiellement. Dans la zone interne l'écoulement est résolu dans un référentiel tournant lié à l'agitateur. Cet écoulement sert ensuite de condition limite pour la résolution de l'écoulement dans la zone externe par une approche IBC. L'écoulement externe sert à son tour de condition limite pour le calcul dans la zone interne et une procédure itérative est réalisée pour assurer la convergence des deux solutions.

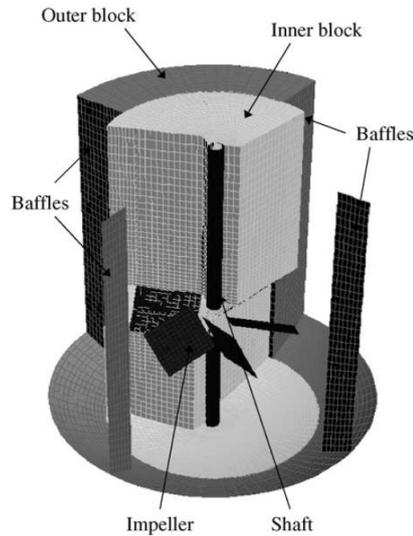


FIGURE 1.14 – Exemple de maillage pour le calcul MFR d'un agitateur à pales inclinées. Image extraite de Aubin et al. [2].

Méthode de maillage glissant

Enfin, la quatrième approche consiste à utiliser un maillage glissant pour simuler le mouvement du brasseur dans le temps. On réalise alors un calcul instationnaire et le pas de temps doit être adapté en fonction de la vitesse de rotation du brasseur. La grille de calcul est construite de manière similaire à celle de la méthode MFR. Le domaine de calcul est divisé en deux zones, une zone proche de l'agitateur et l'autre recouvrant le reste du domaine. On impose alors un mouvement relatif entre ces deux zones pour simuler la rotation du brasseur. Cette méthode permet de prendre en compte les interactions entre la cuve et l'agitateur et d'étudier l'évolution temporelle de l'écoulement. Des études réalisées avec cette technique [2, 9] ont montré que cette méthode fournit les résultats les plus proches des mesures expérimentales. Néanmoins, l'énergie cinétique turbulente reste sous-estimée et le temps de calcul nécessaire à ces simulations est bien plus important que pour la méthode MFR.

L'un des objectifs de cette étude est de simuler l'écoulement généré par un agitateur mécanique afin de quantifier son influence sur le transport dans la phase liquide et la ségrégation des impuretés. On a vu dans la section 1.1 que la ségrégation des espèces chimiques dans un four de dimensions métriques est intrinsèquement multi-échelles. Lorsque l'on introduit un brasseur doté d'une vitesse de rotation élevée par rapport à celle de l'interface solide/liquide, s'ajoute la difficulté de résoudre des échelles de temps courtes (rotation de la pale de l'ordre de la seconde) dans un problème de longue durée (cycle de solidification de plusieurs heures). Cette contrainte devra être prise en compte pour le choix des méthodes numériques.

1.3 Mesure de champ de vitesse par la technique PIV

Comme nous l'avons évoqué en introduction, l'un des objectifs de cette étude est de caractériser expérimentalement le champ de vitesse généré par un agitateur. Pour cela, on souhaite réaliser des mesures de champ de vitesse sur un dispositif modèle en eau. Il existe différentes techniques de mesure de champ de vitesse qui peuvent être regroupées suivant certains critères [64]. On peut tout d'abord distinguer les techniques intrusives, telles que l'anémométrie par fil chaud, et les techniques non-intrusives utilisant généralement des dispositifs optiques. Ces techniques peuvent ensuite être classées suivant qu'elles permettent une mesure ponctuelle du champ de vitesse (anémométrie laser à effet Doppler ou encore anémométrie par fil chaud) ou une mesure d'ensemble, telle que la technique PIV (vélocimétrie par images de particules). Pour cette étude la technique PIV, à la fois non-intrusive et permettant d'accéder au champ de vitesse sur tout un plan de l'écoulement, a été retenue.

1.3.1 Principe général

La figure 1.15 illustre le principe général de la mesure de champ de vitesse par PIV. La technique PIV consiste à acquérir des images de particules qui ensemencent le fluide à deux instants rapprochés. Le traitement de ces images par des fonctions de corrélation permet de calculer le déplacement moyen dans des zones d'interrogation et d'en déduire le champ de vitesse dans le fluide. La technique repose donc sur :

- L'ensemencement de l'écoulement par des particules capables de ré-émettre la lumière.
- L'éclairement du plan de mesure par une nappe laser.
- L'acquisition de paires d'images de particules à deux instants successifs à l'aide d'une caméra.
- Un post-traitement basé sur un algorithme de traitement d'image et de traitement du signal.

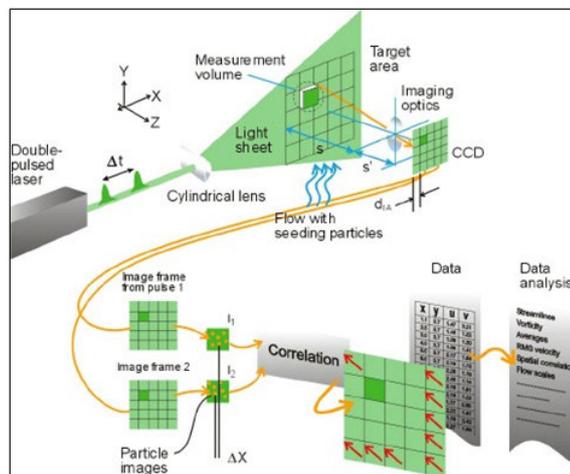


FIGURE 1.15 – Principe de la technique PIV - www.dantecdynamics.com.

Une fois l'acquisition terminée, les images, généralement en niveaux de gris, doivent être traitées afin de supprimer le fond et corriger les déformations éventuelles. Elles sont ensuite découpées en zones d'interrogation contenant plusieurs particules. Puis, une fonction de corrélation est utilisée pour déterminer le déplacement d'ensemble des particules contenues dans chaque zone d'interrogation. Le champ de vitesse peut alors être déduit du champ de déplacement puisque la fréquence d'acquisition des images est connue.

Cette technique repose sur l'hypothèse que les particules suivent parfaitement l'écoulement. Il faut donc vérifier que le temps de relaxation des particules reste très inférieur au temps caractéristique de l'écoulement que l'on cherche à mesurer. Par ailleurs, la concentration de traceurs

doit être ajustée afin qu'il y ait suffisamment de particules pour mesurer les déplacements mais que les particules soient suffisamment espacées pour éviter les effets liés à leur agglomération.

1.3.2 Paramètres et protocole expérimental

Afin de garantir la validité des mesures, plusieurs paramètres doivent être pris en compte lors des acquisitions et lors du traitement des données. Tout d'abord, la qualité des images de particules est une condition essentielle pour minimiser les erreurs de traitement par les algorithmes de corrélation. L'objectif est d'avoir un éclairage uniforme, une densité de particules adaptée au traitement statistique et de limiter le nombre de vecteurs aberrants dans les champs calculés. Lors du traitement, la taille des zones d'interrogations détermine la résolution spatiale de la mesure et le nombre de particules par zone doit être suffisant pour que le déplacement d'ensemble soit statistiquement représentatif du mouvement du fluide. Comme la mesure de champ de vitesse s'effectue dans un plan, on comprend aisément que la majorité des particules doit rester dans le plan entre les acquisitions afin de pouvoir mesurer leur déplacement. Ce critère va influencer le choix de l'épaisseur de la nappe laser et de la fréquence des acquisitions. Une fois l'acquisition terminée, un traitement des images peut être réalisé dans le but de supprimer l'arrière plan et de corriger d'éventuelles déformations liées à la forme de la cuve ou à l'angle d'observation par exemple. Une image de calibration doit également être réalisée en plaçant une mire dans l'écoulement afin de pouvoir étalonner les déplacements.

À l'issue du traitement des données, un équipement de PIV "classique" donne accès aux deux composantes du champ de vitesse situées dans le plan de mesure (technique dite de PIV 2D/2C). Des équipements plus perfectionnés utilisant par exemple deux caméras permettent de déterminer la troisième composante du champ de vitesse, c'est la stéréo-PIV. D'autres techniques dites 3D/3C, permettent d'acquérir un champ complet de vitesse. Elles sont en général onéreuses et limitées à des volumes modestes. Enfin, la détermination des incertitudes de mesure reste un aspect délicat de cette technique. Il est possible de quantifier l'erreur inhérente au traitement des images de particules en utilisant des images de synthèse et en comparant les déplacements estimés par le programme de post-traitement et ceux utilisés pour la création des images [65].

1.3.3 Mesures de champ de vitesse en cuve agitée

Depuis plusieurs années les techniques de mesure optiques sont utilisées pour étudier les systèmes de brassage qui interviennent couramment dans l'industrie [59]. Une première application de ces techniques concerne la caractérisation fine des écoulements générés par les agitateurs. En effet, ces techniques permettent d'avoir accès aux champs de vitesse et aux caractéristiques de la turbulence dans des zones très proches des pales des agitateurs. Ces mesures apportent des informations essentielles pour la compréhension des phénomènes de mélange et pour le développement des codes de calcul. La LDV (vélocimétrie laser à effet Doppler) est généralement privilégiée pour ce type de mesure puisqu'elle offre une résolution spatio-temporelle adaptée aux petites échelles de la turbulence. Néanmoins, les agitateurs peuvent également être caractérisés par des mesures PIV. Bugay et al. [10] ont utilisé cette technique pour caractériser l'écoulement généré par un agitateur à débit axial. Ils ont notamment pu estimer les termes de production, de transport et de dissipation de l'énergie cinétique turbulente. Pour cela, ils ont utilisé des zones d'interrogation de dimension 1.5 mm. Cette dimension a été choisie en fonction de l'échelle de *Taylor* de l'écoulement étudié, qui était comprise entre 1 et 2 mm. Les auteurs indiquent également que l'écoulement moyen (au sens de la turbulence) produit par un

agitateur n'est pas forcément stationnaire car la rotation des pales peut induire des fluctuations périodiques. Ils ont cependant considéré que ce phénomène était négligeable pour leur étude puisqu'il s'agissait d'un agitateur à débit axial.

La qualité principale de la PIV, outre sa faible intrusivité, est sa capacité à fournir le champ de vitesse sur un plan complet de l'écoulement. C'est pour cette raison qu'elle est très utilisée pour mesurer des écoulements en cuve agitée. Elle permet notamment de visualiser la structure de l'écoulement, avec ses boucles de recirculation, ce qui est particulièrement intéressant lorsque l'on souhaite étudier un procédé de mélange d'un point de vue macroscopique. Ainsi, il est possible de mettre en avant l'influence de la configuration géométrique, comme l'ont fait Hall et al. [47] en étudiant une configuration d'agitateur excentré par rapport à la cuve. Il est également possible d'étudier des systèmes diphasiques tels que celui présenté par Aubin et al. [3] où l'influence de la phase gazeuse sur le champ de vitesse et la turbulence a été analysée. Pour ce type de mesure il est utile de travailler avec des traceurs fluorescents, tels que des billes de verre creuses recouvertes de rhodamine B. Il est alors possible de différencier les traceurs des bulles de gaz en utilisant un filtre de longueur d'onde identique à celle de la source laser. Enfin, Camacho-Martínez et al. [14] ont utilisé cette technique pour étudier un dispositif modèle de dégazage de l'aluminium par un système de brassage mécanique. Ils ont travaillé sur un système en eau avec une injection d'air afin de modéliser l'aluminium liquide et l'injection de gaz utilisée pour faire réagir les impuretés dissoutes dans l'aluminium. Ils ont tenu compte de la différence de température, de pression et de rapport de masse volumique en définissant des conditions de similitudes.

La technique PIV présente donc des avantages certains pour étudier un système d'agitation d'un point de vue macroscopique et il est possible de l'appliquer à des dispositifs modèles pour des applications métallurgiques. Les conditions de similitudes appliquées au dispositif expérimental doivent alors être soigneusement définies en fonction du problème étudié. Pour notre étude, les enjeux de ces mesures sont la caractérisation de l'écoulement lié au brassage mécanique et la validation des simulations numériques. Les renseignements fournis par les mesures guideront également notre choix sur la méthode numérique à utiliser pour simuler le brassage (voir section 1.2.3).

1.4 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que la ségrégation des impuretés lors de la solidification dirigée du silicium est un problème multi-physiques et multi-échelles. Différentes méthodes numériques sont actuellement en développement pour simuler ce phénomène. Cependant, la simulation d'un procédé de solidification dirigée à échelle industrielle nécessite des moyens et des temps de calculs souvent trop conséquents pour permettre une étude paramétrique étendue. En effet, on a vu que les échelles spatiales et temporelles mises en jeu sont très variées, avec des fours d'échelle métrique et des cycles thermiques de plusieurs heures. L'introduction d'une convection forcée pour homogénéiser efficacement la phase liquide constitue une difficulté supplémentaire puisque la couche limite solutale devient très fine (de l'ordre quelques dizaines de micromètres) et le temps caractéristique des fluctuations de l'écoulement est de l'ordre de la seconde dans le cas d'un brassage mécanique (associé à la période de rotation de l'agitateur). Il est donc aujourd'hui essentiel de mettre au point des stratégies de modélisation efficaces.

Parallèlement, les travaux théoriques sur la ségrégation ont permis de développer une formulation analytique de la couche limite solutale basée sur une analyse en ordres de grandeur. Ce modèle analytique offre une piste pour estimer l'influence de la convection sur la ségrégation en s'affranchissant du calcul numérique du transport des impuretés. Il fait intervenir une hypothèse de régime quasi-stationnaire et une simplification 1D de l'équation de la concentration. Il suppose également une épaisseur de couche limite solutale inférieure à l'épaisseur de la sous-couche visqueuse de la couche limite hydrodynamique. La turbulence est donc prise en compte de manière incomplète par ce modèle. Le premier objectif de cette étude est de développer cette approche analytique, d'étudier la validité des hypothèses utilisées pour la définition du modèle dans différentes configurations de ségrégation et d'évaluer la possibilité de prédire la concentration dans un lingot.

Par ailleurs, un agitateur mécanique spécifique à la purification du silicium par voie métallurgique a été développé au LMPS. Ce système a pour but d'optimiser un procédé de ségrégation des impuretés métalliques par solidification dirigée. Le second objectif de cette étude est de caractériser expérimentalement et numériquement l'écoulement généré par cet agitateur afin de quantifier son influence sur la ségrégation des impuretés. Différentes méthodes numériques permettant de simuler un agitateur en rotation ont été identifiées. Ici les méthodes de référentiels multiples et de maillage glissant seront privilégiées car elles ne nécessitent pas de caractérisation expérimentale préalable. La mesure de champ de vitesse par PIV a été choisie pour caractériser expérimentalement le brassage. La littérature montre que cette technique est particulièrement adaptée pour caractériser la structure du champ de vitesse dans une cuve agitée. Cette étude expérimentale sera réalisée sur un dispositif modèle en eau et permettra d'étayer l'approche numérique et d'en valider les résultats.

Chapitre 2

Développement de fonctions de paroi solitaires

Ce chapitre traite de la modélisation de la ségrégation solutale lors de la solidification dirigée du silicium. Nous avons vu dans le chapitre 1 que la solidification dirigée est un problème multi-physiques qui fait intervenir un couplage entre les conditions thermiques dans le four, la convection dans la phase liquide (naturelle et/ou forcée) et le changement de phase à l'interface solide/liquide. Pour simuler la ségrégation, il faut également calculer le transport du soluté dans la phase liquide et son incorporation dans la phase solide, avec la formation de la couche limite solutale. Cependant, les échelles de longueurs mises en jeux par la thermique du four et par la ségrégation sont très différentes. L'épaisseur de la couche limite solutale peut-être de l'ordre quelques dizaines de micromètres dans le cas d'un transport convectif important, alors que les creusets industriels ont des dimensions de l'ordre du mètre (les dimensions d'un lingot de 800 kg échelle G6 sont $100 \times 100 \times 34 \text{ cm}^3$). Si l'on souhaite calculer numériquement la couche limite solutale, il est nécessaire d'utiliser des méthodes de suivi d'interface couplées à un remaillage dynamique afin d'avoir une discrétisation spatiale suffisante au voisinage du front de solidification. Ces méthodes sont actuellement en développement (voir section 1.1.4) mais nécessitent d'importants moyens de calcul lorsque l'on souhaite traiter des configurations industrielles en 3D.

Afin de répondre à cette problématique, un modèle analytique de la couche limite solutale a été développé à partir d'une analyse en ordres de grandeur (voir paragraphe 1.1.3). Cette approche a pour but d'estimer la ségrégation à partir des conditions de convection. Ceci permet d'alléger les simulations en affranchissant l'utilisateur du calcul numérique de la couche limite solutale. Pour tester les capacités et le domaine de validité d'une telle approche un cas de validation numérique a été développé à l'aide du logiciel ANSYS FLUENT. Il s'agit d'un modèle prototype de ségrégation dans une configuration de cavité entraînée en 2D. La première partie de ce chapitre présente ce cas de validation numérique. La seconde partie présente les résultats numériques de ségrégation obtenus avec ce modèle 2D. Enfin, la troisième partie s'intéresse à l'application et à l'optimisation du modèle analytique de couche limite solutale. Les profils de ségrégation analytiques sont alors comparés aux résultats numériques. Une partie de ces travaux a été publiée dans *Journal of Crystal Growth* [17].

2.1 Présentation du modèle numérique 2D

2.1.1 Description du problème

Comme expliqué précédemment, on s'intéresse à une configuration de solidification dirigée dans une cavité 2D où l'on impose un écoulement de cavité entraînée par le haut. Ce travail fait suite à une étude similaire réalisée en régime quasi-permanent avec une hauteur de liquide constante [41]. Ici, nous avons fait évoluer ce modèle vers un régime transitoire avec un déplacement imposé de l'interface solide/liquide afin d'étudier les instationnarités liées à la dynamique du système.

La figure 2.1 illustre la configuration étudiée. Dans la phase liquide, on considère un écoulement de cavité entraînée par le haut avec une vitesse $V_E \vec{x}$ imposée au niveau de la frontière supérieure. On s'attend alors à ce que l'écoulement soit composé d'une recirculation principale et de recirculations secondaires localisées dans les coins. Les tailles respectives de ces recirculations sont déterminées par l'intensité de la vitesse d'entraînement, mais également par l'élanement de la cavité H/L . Les différentes recirculations sont séparées par des points caractéristiques (décollements et points d'arrêt). En ces points l'écoulement change de sens, donc la contrainte pariétale τ change de signe. La solidification est simulée par le déplacement de l'interface solide/liquide à une vitesse imposée $V_I \vec{z}$. Le front de solidification est supposé plan

et son déplacement au cours du temps entraîne la réduction progressive de la zone liquide et l'augmentation de la zone solide. On voit alors que l'élanement H/L évolue dans le temps, ce qui modifie sensiblement la structure de l'écoulement. Cet écoulement en recirculation peut simuler une boucle de convection naturelle ou l'écoulement généré par un système de brassage suivant l'intensité du champ de vitesse obtenu. Les principales hypothèses utilisées sont données dans le tableau 2.1.

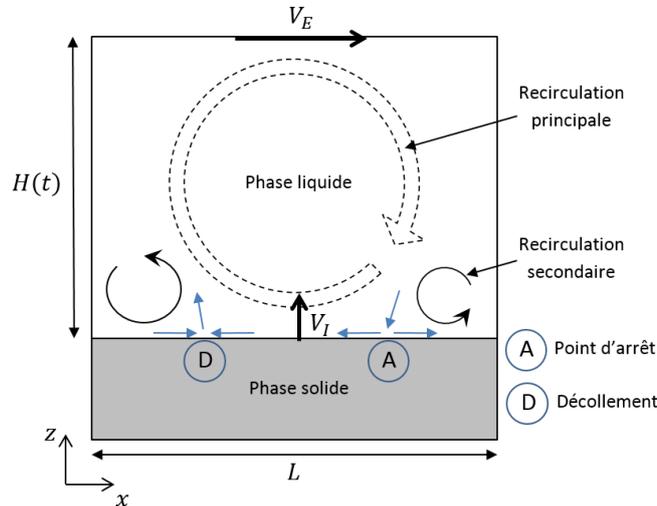


FIGURE 2.1 – Schéma de la configuration de cavité entraînée en régime transitoire : géométrie, vitesse de solidification V_I , vitesse d'entraînement V_E et représentation schématique de l'écoulement, avec en bleu une représentation des points caractéristiques de l'écoulement proche de l'interface solide/liquide.

Tableau 2.1 – Principales hypothèses du modèle transitoire de ségrégation dans une cavité entraînée en 2D.

<i>Hypothèse 1</i>	Le front de solidification est supposé plan.
<i>Hypothèse 2</i>	La vitesse de solidification \vec{V}_I est imposée.
<i>Hypothèse 3</i>	La convection naturelle liée à la thermique du procédé n'est pas modélisée, seul l'écoulement de cavité entraînée est pris en compte.
<i>Hypothèse 4</i>	La diffusion des impuretés dans la phase solide est négligée devant la diffusion dans la phase liquide.
<i>Hypothèse 5</i>	La stabilité de l'interface et la précipitation des impuretés ne sont pas considérées dans cette étude.

La largeur de la cavité est fixée à $L = 0.2$ m afin de correspondre à l'étude précédente en régime quasi-permanent. La hauteur de silicium liquide à l'instant initial t_0 est $H_0 = 0.18$ m et le calcul est réalisé jusqu'à ce que le front de solidification soit à une hauteur $H(t_{final}) = 0.16$ m, ce qui correspond à une fraction solide $f_S = 89\%$. Cette limite a été fixée arbitrairement pour deux raisons. Tout d'abord, lorsque le rapport d'aspect H/L devient trop faible, la validité de notre solution d'écoulement de cavité entraînée est discutable. Ensuite, on sait que pour notre problème de ségrégation, les impuretés vont être rejetées dans le haut du lingot. Or, lorsque la concentration en impuretés dans la phase liquide devient trop importante, il se produit un phénomène de précipitation que notre modèle ne prend pas en compte. Les concentrations calculées dans la phase solide au delà de cette limite ne sont donc pas pertinentes. Pour caractériser le régime d'écoulement on définit un nombre de *Reynolds* basé sur la largeur de la cavité :

$$Re_L = \frac{V_E L}{\nu}. \quad (2.1)$$

On se propose d'étudier différents régimes de convection allant du régime diffusif à des régimes pleinement turbulents ($Re_L = 10^6$). Les vitesses d'entraînement varient alors de 0 à $1.49 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

2.1.2 Équations, conditions aux limites et maillage dynamique

2.1.2.1 Équations générales

Compte tenu des hypothèses présentées dans la partie précédente, le problème que l'on traite est défini par les équations de mouvement du fluide et de transport du soluté dans la phase liquide. Nous sommes dans le cas d'un fluide incompressible, l'équation de continuité se résume donc à :

$$\nabla \cdot (\rho \vec{u}) = 0, \quad (2.2)$$

et la conservation de la quantité de mouvement est donnée par les équations de *Navier-Stokes* :

$$\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{\mu}{\rho} \nabla^2 \vec{u}, \quad (2.3)$$

où \vec{u} , p , ρ et μ désignent respectivement le champ de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), le champ de pression (Pa), la masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) et la viscosité dynamique ($\text{Pa}\cdot\text{s}$). Le problème traité ici s'exprime cependant en deux dimensions (x et z) et le champ de vitesse \vec{u} ne présente que deux composantes u et w ($v = 0$). Le transport des impuretés dans le fluide est traité par le modèle de transport d'espèces disponible dans FLUENT. Si on définit C_L comme la fraction massique d'impuretés dans la phase liquide, alors l'équation de transport (1.10) peut être mise sous la forme :

$$\frac{\partial \rho C_L}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{u} C_L) = D \nabla^2 (\rho C_L), \quad (2.4)$$

où D ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) représente la diffusivité moléculaire de l'impureté considérée dans le silicium liquide. Pour écrire les équations précédentes nous avons fait l'hypothèse que les concentrations en impuretés sont suffisamment faibles pour ne pas modifier les propriétés du silicium liquide (alliages fortement dilués). Ainsi, la masse volumique ρ et la viscosité dynamique μ sont considérées constantes au cours du procédé.

2.1.2.2 Modélisation de la turbulence

Dans cette étude, différents régimes d'écoulement allant du cas laminaire au cas turbulent pleinement développé sont étudiés. L'impact de la turbulence sur le transport de quantité de mouvement et de soluté doit donc être modélisé. Pour cela, on utilise un modèle de turbulence de type RANS (*Reynolds Average Navier-Stokes*). Ces modèles sont basés sur la décomposition de *Reynolds*, qui consiste à définir le champ de vitesse du fluide comme la somme d'une composante moyenne statistique \bar{u} et d'une fluctuation u' de moyenne nulle ($\overline{u'} = 0$). En appliquant cette décomposition aux équations (2.2) et (2.3) on obtient les équations :

$$\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_i} = 0, \quad (2.5)$$

$$\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} + \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial^2 \bar{u}_i}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\partial \overline{u'_i u'_j}}{\partial x_j}, \quad (2.6)$$

où les indices i et j désignent les différentes composantes suivant x , y et z (avec sommation sur les indices répétés). L'équation (2.6) présente des termes supplémentaires par rapport à

l'équation (2.3). Ces termes font intervenir les contraintes de *Reynolds* et représentent l'influence de la turbulence sur le transport de quantité de mouvement dans le fluide. On dispose alors de 4 équations pour 10 inconnues, qui sont :

- Les composantes du champ de vitesse moyenné : \bar{u} , \bar{v} et \bar{w}
- La pression moyennée : \bar{p}
- Les 6 composantes du tenseur de *Reynolds* (tenseur symétrique) :

$$R = -\rho \begin{pmatrix} \overline{u'^2} & \overline{u'v'} & \overline{u'w'} \\ \overline{v'u'} & \overline{v'^2} & \overline{v'w'} \\ \overline{w'u'} & \overline{w'v'} & \overline{w'^2} \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

On considère ici une configuration 2D, on a donc $\bar{v} = 0$. Le problème fait alors intervenir trois équations : l'équation de continuité (2.5) et les équations RANS (2.6) pour les composantes \bar{u} et \bar{w} du champ moyen. Tout se passe comme si le tenseur de *Reynolds* se réduisait à trois composantes non nulles puisque les gradients de champ moyen sont nuls suivant la direction y . Les modèles de turbulence permettent de combler le manque d'équations en introduisant des hypothèses pour réduire le nombre d'inconnues et en apportant un certain nombre d'équations supplémentaires. Ici on travaille avec le modèle *realizable* $k - \varepsilon$ qui est un modèle de turbulence à deux équations : l'équation de transport de l'énergie cinétique turbulente k et l'équation de transport du taux de dissipation ε . Ce modèle fait l'hypothèse d'une viscosité turbulente $\nu_t = \mu_t/\rho$ pour exprimer le tenseur de *Reynolds* sous une forme isotrope. Le modèle utilise donc une hypothèse de turbulence isotrope et les contraintes de *Reynolds* sont exprimées par la relation suivante :

$$-\overline{u'_i u'_j} = \nu_t \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} k \delta_{ij}. \quad (2.8)$$

Par analogie avec la viscosité moléculaire, on exprime ν_t comme le produit de l'échelle de vitesse liée à l'agitation turbulente : $u \propto \sqrt{k}$, et de l'échelle de longueur des gros tourbillons : $l \propto u^3/\varepsilon$. Ce qui conduit à :

$$\nu_t \propto lu \propto \frac{u^4}{\varepsilon} = C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon}. \quad (2.9)$$

Dans la formulation du modèle $k - \varepsilon$ standard, C_μ est une constante issue de résultats expérimentaux. Le modèle *realizable* $k - \varepsilon$ est issu du modèle $k - \varepsilon$ standard mais il intègre certaines contraintes mathématiques qui en font un modèle réalisable (il vérifie par exemple $u'^2_i \geq 0$). C_μ n'est donc plus une constante, mais une fonction des taux de déformation et de rotation, de la vitesse de rotation du système, de l'énergie cinétique turbulente k et du taux de dissipation ε [49].

Par ailleurs, la turbulence affecte également le terme de diffusion des impuretés dans le liquide. Pour tenir compte de cet aspect, FLUENT propose une équation de transport modifiée qui fait intervenir une diffusivité turbulente D_t . Pour définir ce coefficient on utilise le nombre de *Schmidt* turbulent :

$$Sc_t = \frac{\nu_t}{D_t}, \quad (2.10)$$

qui est le rapport de la viscosité cinématique turbulente ν_t et de la diffusivité turbulente D_t . FLUENT propose une valeur constante et uniforme par défaut de $Sc_t = 0.7$ qui est cohérente avec différentes études de référence [82, 90]. C'est cette valeur de nombre de *Schmidt* turbulent qui est utilisée dans cette étude. La diffusion turbulente D_t est donc calculée à partir des caractéristiques de la turbulence k et ε . Il faut ensuite ajouter ce terme de diffusion à l'équation de transport (2.4), ce qui conduit à la relation :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) C_L = \nabla \cdot [(D + D_t) \nabla C_L], \quad (2.11)$$

où C_L est la composante moyenne de concentration dans le liquide. Il faut noter que pour les écoulements turbulents la diffusion turbulente prédomine face à la diffusion moléculaire tant qu'on est à l'extérieur de la sous-couche visqueuse. Il en va de même pour les viscosités.

2.1.2.3 Traitement des parois

Pour le calcul de l'écoulement a proximité des parois nous utilisons l'option *Enhanced Wall Treatment* proposée par FLUENT. Cette option permet d'utiliser un modèle de type bi-couches pour le calcul en proche paroi afin d'adapter le modèle de turbulence en fonction d'un nombre de *Reynolds* local basé sur la hauteur de la maille adjacente à la paroi. Concrètement, si le centre de la première maille adjacente à la paroi se trouve dans la sous-couche visqueuse, la vitesse est calculée en supposant un profil de vitesse linéaire. En revanche, si le centre de la première maille est dans la zone pleinement turbulente alors le profil de vitesse à la paroi est calculé à l'aide d'une fonction de paroi logarithmique (voir section 1.1.3.1). L'option *Enhanced Wall Treatment* fournit également des fonctions de raccordement pour améliorer le calcul lorsque la première maille se situe entre la sous-couche visqueuse et la zone pleinement turbulente ("buffer layer").

2.1.2.4 Conditions aux limites et maillage dynamique

La figure 2.2 représente le maillage utilisé ainsi que les différentes conditions aux limites appliquées au champ de vitesse dans le liquide et au déplacement des parois. Le maillage est raffiné au niveau de l'interface solide/liquide afin de pouvoir calculer précisément le transport des impuretés dans la couche limite solutale. Pour cette étude la taille de maille est fixée à $h_x = h_z = 2$ mm sur les domaines solide et liquide. Pour le raffinement de la couche limite on impose une hauteur de maille $h_z^I = 5$ μ m au niveau de l'interface et un taux de croissance de 1.2 dans la direction \vec{z} sur les 30 rangées suivantes. Le maillage final est alors constitué de 13 400 cellules. Pour traiter ce problème on se place dans le référentiel lié au front de solidification. Dans ce référentiel, l'ensemble de la cavité est animée d'une vitesse $-V_I$ suivant la direction z . On associe aux parois latérales et au front de solidification une condition de non-glissement. Au niveau de la frontière supérieure on impose au fluide une vitesse $\vec{V}_{top} = V_E \vec{x} - V_I \vec{z}$ afin de définir l'entraînement de la cavité et de respecter le référentiel mobile lié à l'interface. On impose des flux de soluté nuls au niveau des parois latérales et du front de solidification et la concentration est fixée à la concentration initiale C_0 au niveau de la frontière supérieure. Le déplacement des frontières au cours du calcul nous impose également de définir les conditions de déplacement et de modification du maillage. La définition de ces conditions est assurée par les options de maillage dynamique proposées par FLUENT. Concrètement, ces options permettent d'assurer le déplacement des frontières supérieure et inférieure de la cavité en supprimant des mailles dans la zone liquide et en ajoutant des mailles dans la zone solide, tout en conservant le raffinement au niveau de l'interface solide/liquide. Pour cela on utilise l'option *Layering* qui permet de supprimer progressivement des rangées de mailles au niveau de la frontière supérieure côté liquide et d'en ajouter au niveau de l'interface solide/liquide côté solide.

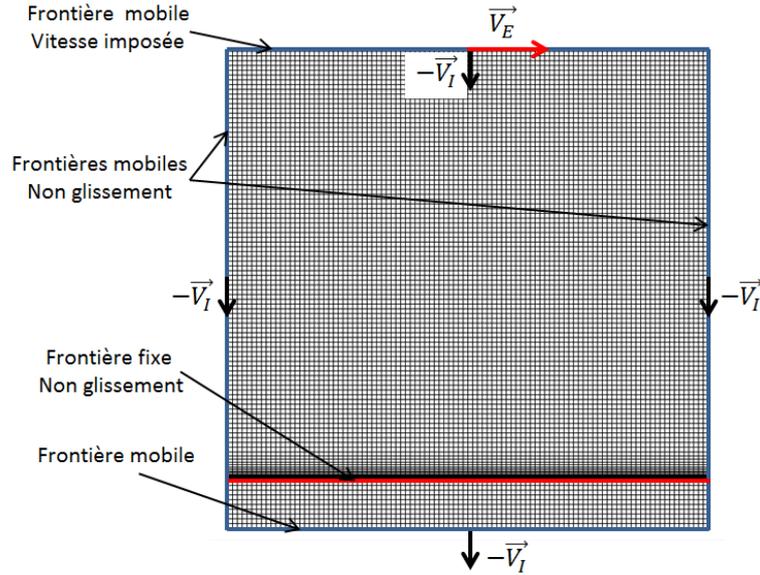


FIGURE 2.2 – Maillage et conditions aux limites hydrodynamiques du modèle de cavité entraînée.

Enfin, la réduction du volume de fluide au cours du temps, nous impose de définir un terme source de masse S_m au niveau du front de solidification, défini par :

$$S_m = -\frac{\rho V_I}{h_z^I}. \quad (2.12)$$

Ceci permet de simuler la solidification du liquide par un flux de masse de la zone liquide vers la zone solide. Cette approche a déjà été utilisée lors de l'étude en régime quasi-permanent [41], dans l'étude de Delannoy and Zaidat [23] ainsi que dans les travaux de thèse de Santara [80]. Ce terme source intervient dans le second membre de l'équation de continuité (2.2). Comme expliqué dans la thèse de Santara [80], le terme source de masse impose de définir un terme source pour les équations de transport des autres variables du problème à savoir : les quantités de mouvement suivant \vec{x} et \vec{z} et la fraction massique d'impureté dans le liquide. Dans le cas où un modèle de turbulence est utilisé, il faut également définir ces termes pour les variables associées (énergie cinétique turbulente et taux de dissipation). Le terme source de quantité de mouvement pour la composante de vitesse u_i s'exprime sous la forme :

$$S_{u_i} = u_i S_m = -u_i \frac{\rho V_I}{h_z^I}. \quad (2.13)$$

Ce terme intervient au second membre des équations de mouvement du fluide (2.3). Pour le terme source de soluté il faut tenir compte du fait qu'une partie des impuretés est rejetée dans la phase liquide. Le terme source s'écrit alors :

$$S_i = k_0 C_L^I S_m = -k_0 C_L^I \frac{\rho V_I}{h_z^I}, \quad (2.14)$$

où C_L^I représente la fraction massique d'impureté dans le liquide au niveau de la maille adjacente au front de solidification. Ce terme intervient au second membre de l'équation de transport (2.4).

2.1.3 Validité des résultats et influence des paramètres numériques

Dans les paragraphes précédents nous avons détaillé le modèle transitoire de cavité entraînée en 2D. Nous présentons ici une comparaison des résultats numériques à des données d'écoulement de cavité entraînée issues de la littérature. Une étude de sensibilité vis-à-vis des paramètres numériques est également détaillée.

2.1.3.1 Étude du champ de vitesse en régime stationnaire

La première étape des simulations consiste à faire converger le champ de vitesse en régime stationnaire. Ce champ de vitesse servira par la suite de condition initiale au calcul de ségrégation en régime transitoire. Afin de valider ce calcul de champ de vitesse stationnaire, on se propose de comparer les résultats obtenus à ceux présentés dans la littérature. Le problème de l'écoulement en cavité entraînée a été largement étudié en mécanique des fluides, notamment à l'aide de simulations numériques. La simplicité de la géométrie et des conditions aux limites et la complexité de l'écoulement (recirculations, décollements aux parois, aspects 3D ...) en ont fait un cas test standard pour le développement des codes de calcul. Néanmoins, la résolution de cet écoulement pour des régimes fortement turbulents reste une question d'actualité [31].

Dans sa revue de la littérature sur la cavité entraînée, Erturk [31] précise que d'un point de vue expérimental, ce type d'écoulement présente des caractéristiques instationnaires et 3D, même à faible *Reynolds*. Dès lors, le calcul d'un écoulement de cavité entraînée stationnaire en 2D conduit à un écoulement "fictif". Les simulations numériques directes en 2D montrent une transition vers des régimes turbulents pour des nombres de *Reynolds* compris entre 6000 et 8000. Sur les figures 2.3, 2.4 et 2.5 nous avons tracé les profils de vitesse u_x , pris au centre de la cavité, obtenus avec notre modèle. Du fait de l'entraînement à la frontière supérieure, l'écoulement va de gauche à droite dans la partie haute de la cavité. Pour assurer la conservation de la masse, il revient de droite à gauche dans la partie basse. Nous avons également tracé les données de simulation numérique directe fournies par Ghia et al. [42] et Erturk et al. [32]. Les résultats sont donnés pour des *Reynolds* de 10^2 , 10^3 et 10^4 . Les simulations à $Re_L = 10^2$ et $Re_L = 10^3$ ont été réalisées avec le modèle laminaire de FLUENT. Les profils de vitesse obtenus sont cohérents avec la littérature. Pour le cas à $Re_L = 10^4$, quatre calculs différents ont été réalisés. Le premier utilise le modèle laminaire et les trois autres utilisent différents modèles de turbulence : *realizable k - ε*, *k - ε RNG* et *k - ω SST*. Il apparaît clairement que le modèle laminaire est le plus proche des résultats de la littérature, en dépit des caractéristiques turbulentes observées par les auteurs pour des nombres de *Reynolds* de cet ordre. Les modèles turbulents surestiment le transfert de quantité de mouvement depuis la frontière supérieure, ce qui donne des vitesses plus importantes dans la cavité. Néanmoins, plus que de reproduire exactement les caractéristiques dynamiques d'un écoulement de cavité entraînée, notre objectif est ici d'évaluer l'influence d'un régime d'écoulement donné sur la ségrégation d'impuretés. Pour cette étude, on s'autorisera donc à utiliser des écoulements, en particulier à fort *Reynolds*, même si l'on a conscience qu'ils reproduisent de manière imparfaite la réalité expérimentale de cette configuration. Il s'agira donc pour nous de montrer l'adéquation de notre approche semi-analytique de la ségrégation avec les résultats des simulations numériques. D'autre part, la littérature donne peu de résultats pour des nombres de *Reynolds* excédant 10^4 . Nous avons fait le choix de simuler tout de même des écoulements à nombres de *Reynolds* élevés (jusqu'à 10^6). On utilise donc le modèle de turbulence *realizable k - ε* lorsque le nombre de *Reynolds* atteint 10^4 , notamment pour prendre en compte la diffusion turbulente D_t .

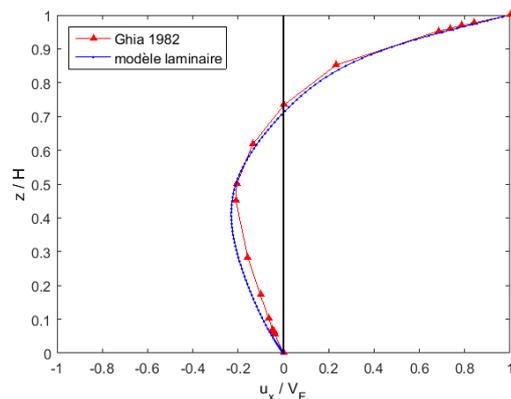


FIGURE 2.3 – Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^2$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42].

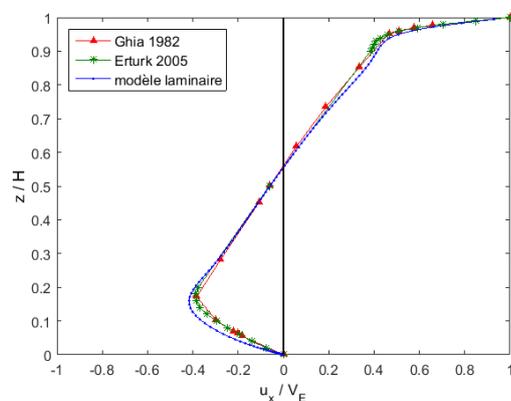


FIGURE 2.4 – Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^3$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42] et Erturk et al. [32].

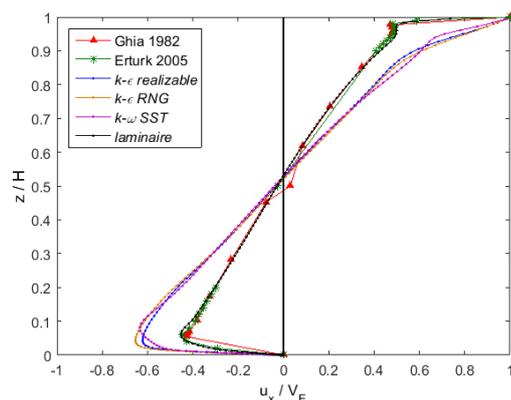


FIGURE 2.5 – Profils de vitesse horizontale normalisée au centre de la cavité entraînée pour $Re_L = 10^4$. Comparaison des résultats numériques aux résultats de DNS présentés par Ghia et al. [42] et Erturk et al. [32].

2.1.3.2 Calcul transitoire et paramètres numériques

Dans le paragraphe précédant nous avons présenté les résultats des calculs de champ de vitesse en régime stationnaire. Nous allons à présent nous intéresser au calcul en régime transitoire, avec déplacement du front de solidification et ségrégation des impuretés. Afin de s'assurer de la convergence des calculs nous nous sommes appuyés sur deux critères. Le premier critère consiste à vérifier l'évolution décroissante des résidus pour les différentes équations traitées à chaque pas de temps. Afin d'assurer une convergence suffisante le nombre d'itérations réalisées à chaque pas de temps a été fixé à 1000. La taille des pas de temps est choisie de manière à imposer un faible déplacement élémentaire de l'interface solide/liquide, afin de ne pas trop perturber le champ de vitesse entre deux pas de temps. Le déplacement élémentaire de l'interface à chaque pas de temps est alors fixé à 1 mm, ce qui équivaut à un pas de temps de 100 s pour une vitesse d'interface de $10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. La figure 2.6 donne l'évolution des résidus sur dix pas de temps pour le cas $Re_L = 10^4$.

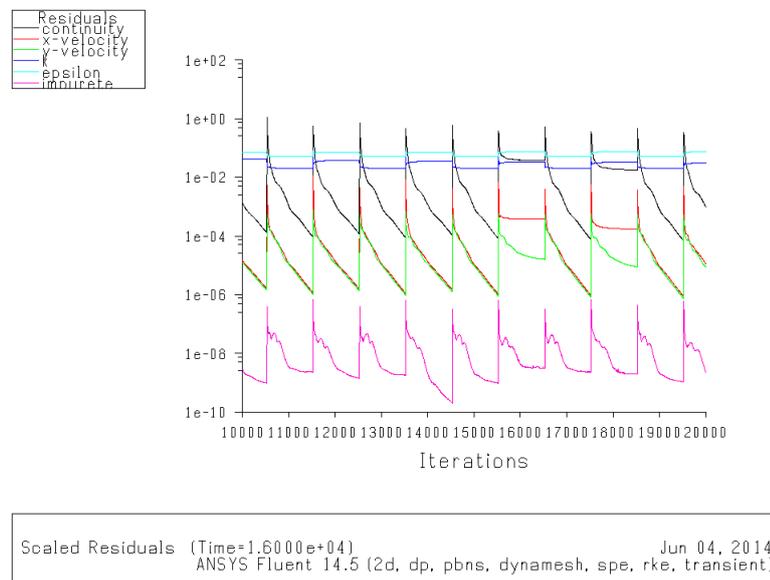


FIGURE 2.6 – Évolution des résidus sur dix pas de temps pour la configuration $Re_L = 10^4$.

Le second critère consiste à vérifier la conservation de la masse d'impureté dans le système au cours du calcul. Pour cela les masses d'impureté dans les phases liquide et solide sont calculées par intégration des fractions massiques sur les deux domaines (en supposant une profondeur unitaire de la cavité). La figure 2.7 donne l'évolution des masses dans les phases liquide et solide et de la masse totale au cours du calcul. Ces courbes sont tracées en fonction du temps. On observe alors une diminution progressive de la masse d'impureté dans la phase liquide qui est compensée par une augmentation de la masse dans la phase solide, avec une masse totale constante au cours du temps.

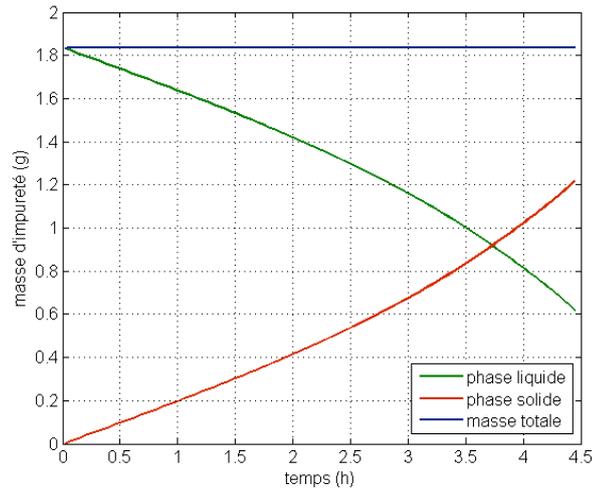


FIGURE 2.7 – Évolution du bilan de masse d'impureté au cours du calcul de solidification pour la configuration $Re_L = 10^4$.

L'influence de la discrétisation spatiale et temporelle sur les résultats a également été étudiée. Pour cela deux calculs tests ont été réalisés. Pour le premier test, le pas de temps Δt a été réduit à 50 secondes. Le maillage et le nombre d'itérations par pas de temps sont identiques à la configuration de référence. Pour le second test un maillage raffiné a été utilisé, avec une taille de maille $h_x = h_z = 0.5$ mm. Le raffinement de l'interface solide/liquide reste identique avec une hauteur de première maille $h_z^I = 5$ μ m. Le maillage obtenu comprend alors 168000 cellules. Le pas de temps a également été adapté à ce nouveau maillage en le réduisant à 50 secondes. Ainsi, pour la vitesse de solidification choisie, le déplacement du front à chaque pas de temps correspond à la hauteur d'une maille dans la phase solide. Ces tests ont été réalisés sur une configuration turbulente avec un nombre de *Reynolds* de 10^4 . La figure 2.8 donne les profils de vitesse u_x normalisés, au centre de la cavité, pour le maillage standard et le maillage raffiné. Ces profils correspondent à la solution du calcul en régime stationnaire. L'écart relatif moyen entre ces deux profils est de 3.4% ce qui montre que la discrétisation spatiale est suffisante pour obtenir une solution convergée du champ de vitesse. La figure 2.9 présente les profils de norme de la contrainte au niveau de l'interface solide/liquide pour le calcul de référence et pour les deux calculs tests. Ces profils sont extraits du calcul transitoire, lorsque le front a progressé de 8 cm, ce qui correspond à une fraction solidifiée $f_S = 44\%$. Ils montrent des minimums locaux correspondant aux changements de signe de la contrainte de cisaillement à la paroi. Ces minimums donnent donc la localisation des points caractéristiques de décollement où d'arrêt situés entre deux recirculations de l'écoulement. On remarque que la position de ces points caractéristiques n'est pas influencée par la modification du pas de temps mais qu'elle diffère légèrement lorsque l'on modifie le maillage (décalage de 3.75 mm pour le détachement de la recirculation principale). On considérera par conséquent que l'on capte de manière satisfaisante la topologie de l'écoulement.

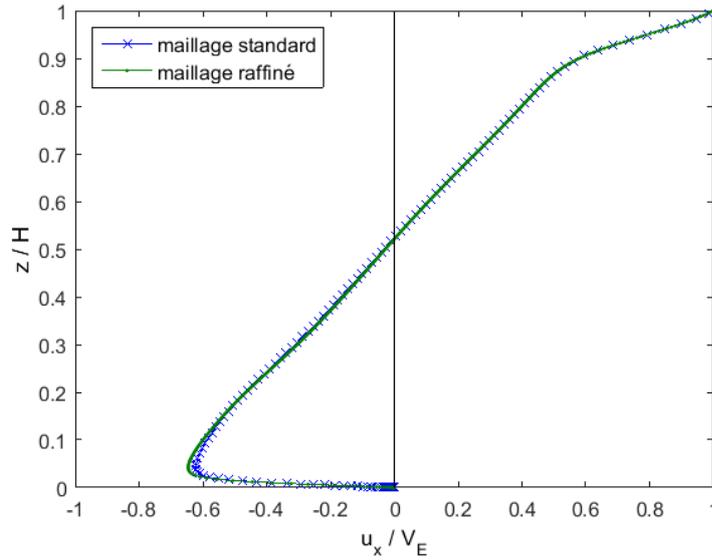


FIGURE 2.8 – Profils de vitesse u_x normalisés au centre de la cavité obtenus avec un maillage standard et un maillage raffiné pour $Re_L = 10^4$, à l’issue du calcul stationnaire d’initialisation du champ de vitesse.

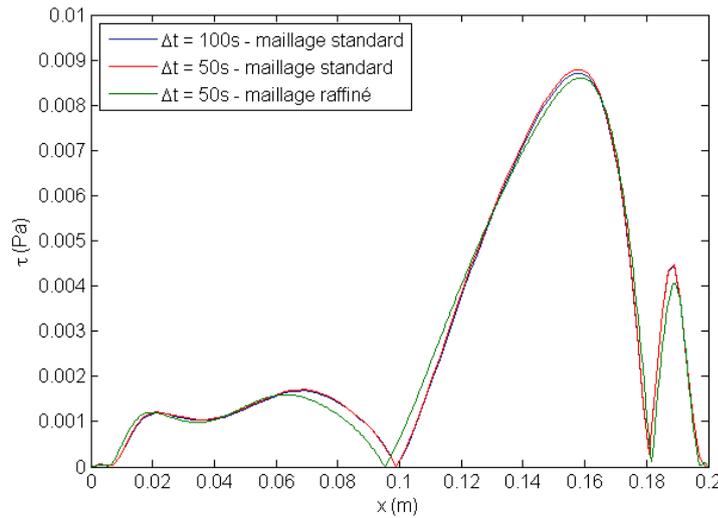


FIGURE 2.9 – Profils de contrainte à l’interface obtenus avec un maillage standard et un maillage raffiné pour une fraction solide $f_S = 44\%$, $Re_L = 10^4$.

En conclusion, cette étude a permis d’étudier l’influence des différents paramètres numériques sur les résultats du modèle de cavité entraînée. Les résultats de champ de vitesse en régime stationnaire ont pu être comparés à des données de la littérature issues de simulations numériques directes. Pour les régimes laminaires, les résultats numériques sont en accord avec ceux présentés dans la littérature. Pour les régimes turbulents, les différents modèles de turbulence testés fournissent des résultats similaires et le choix a été fait d’utiliser le modèle *realizable k-ε*. Enfin, des simulations tests ont montré que les discrétisations spatiale et temporelle utilisées sont suffisamment fines pour assurer la convergence des solutions numériques.

2.2 Résultats de l'étude paramétrique

Dans cette partie nous présentons les résultats numériques de ségrégation obtenus avec le modèle 2D pour différents régimes d'écoulements. Le tableau 2.2 définit les différents régimes hydrodynamiques étudiés en précisant les nombre de *Reynolds* et les vitesses d'entraînement associées.

Tableau 2.2 – Configurations des calculs transitoires. Nombres de *Reynolds* et vitesses d'entraînement associées.

Configuration	Re_L	V_E ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)
A	0	0
B	10^2	1.485×10^{-4}
C	10^3	1.485×10^{-3}
D	10^4	1.485×10^{-2}
E	10^5	1.485×10^{-1}
F	10^6	1.485

Pour cette étude nous avons choisi de conserver les paramètres utilisés pour l'étude de Garandet et al. [41] en régime quasi-permanent. La vitesse de solidification est fixée à $V_I = 10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. La diffusivité moléculaire des impuretés dans le silicium liquide est fixée à $D = 10^{-8} \text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$. Le coefficient de ségrégation des impuretés dans le silicium est fixé à $k_0 = 0.3$. La fraction massique d'impureté dans la phase liquide à l'instant initial est fixée à $C_0 = 2 \times 10^{-5}$ (soit 20 ppm¹). La masse volumique du silicium liquide est fixée à $\rho = 2550 \text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ et sa viscosité dynamique est fixée à $\mu = 7.5 \times 10^{-4} \text{Pa}\cdot\text{s}$.

2.2.1 Analyse du champ de vitesse

La figure 2.10 présente les champs de vitesse obtenus à l'issue des calculs en régime stationnaire. Ce sont ces champs de vitesse qui servent de conditions initiales pour les calculs transitoires. Pour le cas diffusif ($Re_L = 0$) le champ de vitesse dans le liquide est uniforme et égal à $-V_I \vec{z}$ puisqu'il est représenté dans le référentiel lié à l'interface solide/liquide. Pour les configurations B à F, le champ de vitesse est constitué d'une recirculation principale et de zones de faible vitesse localisées dans les coins. La taille de la recirculation principale est déterminée par l'intensité de la vitesse d'entraînement. Les figures 2.11 et 2.12 représentent le champ de vitesse pour le cas turbulent $Re_L = 10^4$. L'analyse du champ de vitesse permet de comprendre la structure de l'écoulement et son influence sur la ségrégation des impuretés. On observe une amplitude du champ de vitesse plus importante au sein de la recirculation principale que dans les recirculations secondaires. Les gradients verticaux $\partial u / \partial z$ à l'interface solide/liquide sont donc plus importants, ce qui favorise le transport du soluté depuis l'interface vers le bain de silicium liquide. D'autre part, les recirculations secondaires sont associées à la présence de points caractéristiques au niveau de l'interface solide/liquide (voir figure 2.12). Ces points caractéristiques sont des zones de cisaillement nul (localement $\partial u / \partial z = 0$) que l'on peut classer en deux catégories. Tout d'abord les points de décollement (à gauche sur la figure 2.12) sont provoqués par un décollement de couche limite le long de l'interface. La composante normale de vitesse $w \vec{z}$ y est positive dans le référentiel choisi. Ensuite, les points d'arrêt (à droite sur la figure 2.12), sont des zones où l'écoulement vient impacter le front de solidification, avec une composante normale de vitesse $w \vec{z}$ négative.

1. Partie Par Million.

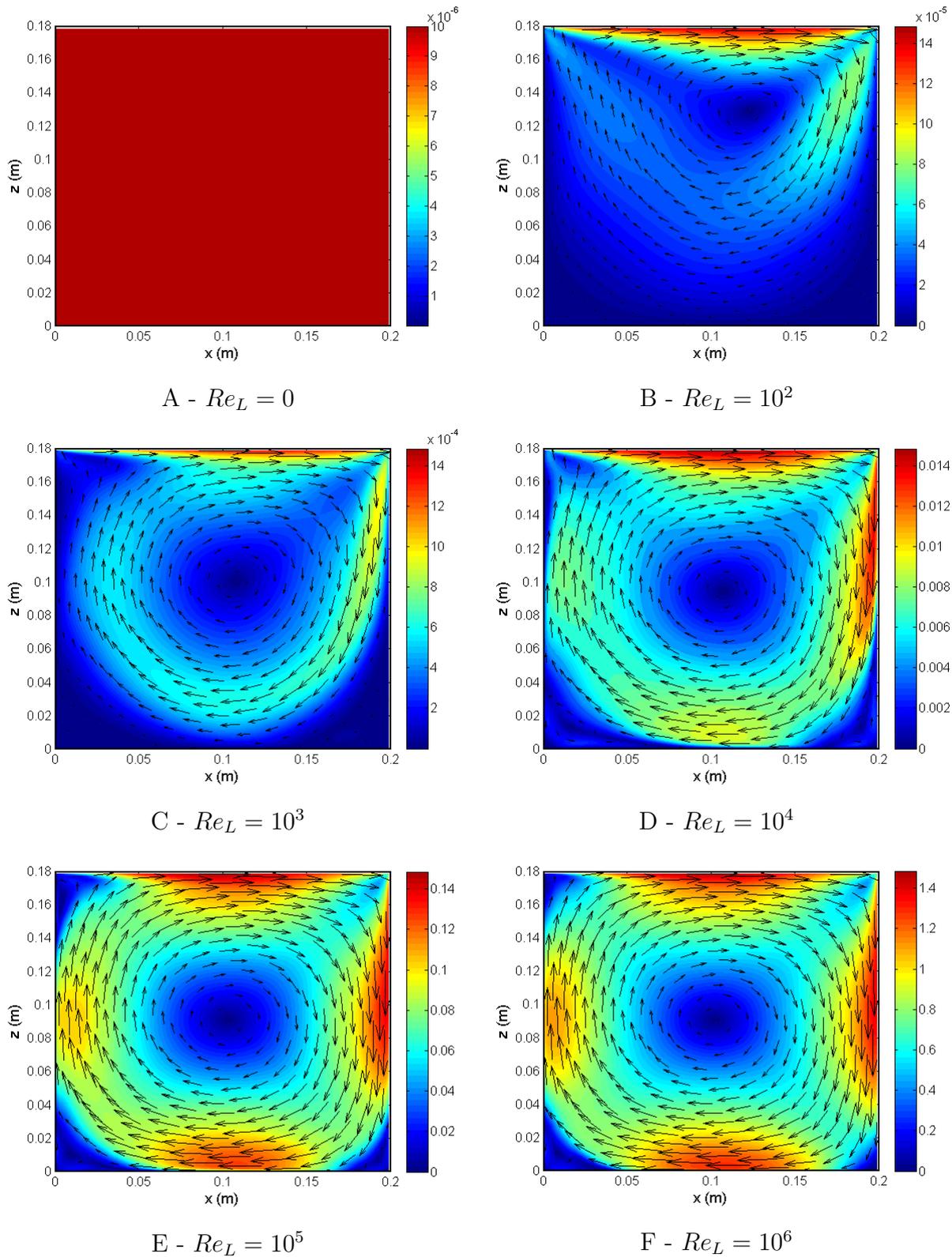


FIGURE 2.10 – Amplitude des champs de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) à l'instant t_0 , après convergence du calcul stationnaire.

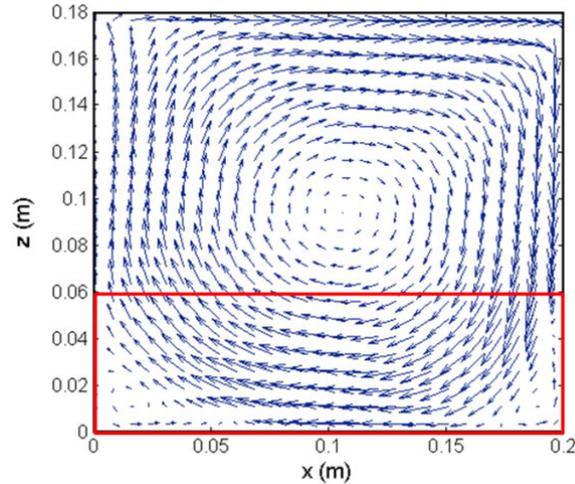


FIGURE 2.11 – Champ de vitesse vectoriel à l'instant t_0 pour $Re_L = 10^4$.

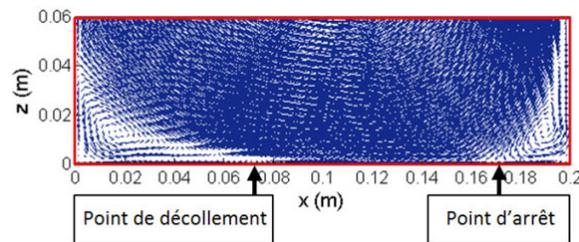
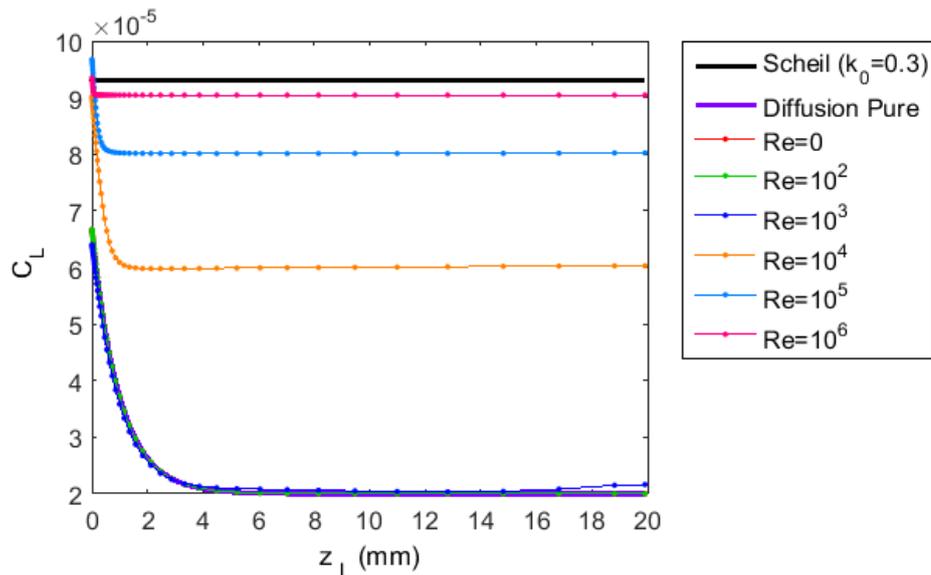


FIGURE 2.12 – Recirculations secondaires à l'instant t_0 pour $Re_L = 10^4$.

2.2.2 Analyse de la concentration dans le liquide

Nous nous intéressons maintenant à la concentration en impuretés dans la phase liquide. La figure 2.13 présente des profils de concentration C_L au centre de la cavité, pour une fraction solidifiée de 89% (position du front $z_f = 16$ cm). On peut alors observer la présence d'une couche limite solutale pour tous les régimes testés. En dehors de cette couche limite, la concentration C_L^∞ est uniforme et sa valeur dépend du régime d'écoulement. Pour le régime diffusif et les régimes laminaires les profils obtenus suivent la solution analytique du régime diffusif pur avec $C_L^\infty = C_0$ (voir section 1.1.2.2). Puis, lorsque l'on augmente la vitesse d'entraînement, l'épaisseur de couche limite solutale diminue et la concentration dans le bain C_L^∞ augmente. Le profil de concentration tend asymptotiquement vers la loi de *Scheil* (avec $k_0 = 0.3$) lorsque le nombre de *Reynolds* tend vers l'infini. L'intensification de la convection permet donc une meilleure homogénéisation du liquide.


 FIGURE 2.13 – Profils de concentration dans la phase liquide C_L au centre de la cavité, à $f_S = 89\%$.

La figure 2.13 donne les profils de concentration à un instant donné et en un point donné de l'interface. Néanmoins, la couche limite solutale est contrôlée par la convection dans le fluide. L'épaisseur caractéristique de couche limite δ , telle que définie par la relation (1.19), varie le long de l'interface et au cours de la solidification puisque le champ de vitesse évolue. Pour illustrer ce phénomène, nous avons tracé sur la figure 2.14 les profils de δ le long de l'interface pour les différents régimes, lorsque la fraction solidifiée est de 44% (position du front $z_f = 8$ cm). Pour le régime diffusif pur, on peut voir que δ est bien égale rapport D/V_I , qui vaut 1 mm pour la configuration choisie. Dans le cas des écoulements turbulents, on peut voir que δ diminue lorsque Re_L augmente et que les variations locales deviennent de plus en plus faibles. Si l'on part du principe qu'en régime turbulent la composition est quasiment homogène loin de l'interface, l'intensification du champ de vitesse a donc pour effet d'uniformiser la composition à l'interface, en limitant notamment l'apparition de points de décollement. Le résultat le plus surprenant est sans doute celui du régime laminaire $Re_L = 10^3$ puisque l'on observe une couche limite localement plus épaisse que pour le cas diffusif. Ce résultat est entièrement dû à un phénomène de transport par l'écoulement laminaire. La figure 2.15 présente les champs de concentration et de vitesse dans la phase liquide pour $Re_L = 10^3$, lorsque le front a progressé de 8 cm. La recirculation secondaire présente une concentration de soluté plus grande que la recirculation principale. Elle est en fait enrichie par un flux qui provient du point de décollement de la recirculation principale et qui est advecté dans la couche de mélange des deux recirculations. Le caractère laminaire de l'écoulement limite le transfert de masse entre les deux recirculations et le soluté se retrouve piégé dans la recirculation secondaire. Cet enrichissement à l'interface au niveau du point de décollement explique l'épaisseur de couche limite localement supérieure à l'épaisseur théorique du cas diffusif. On observe un phénomène similaire avec la recirculation secondaire du coin inférieur droit, cette recirculation secondaire étant beaucoup plus petite.

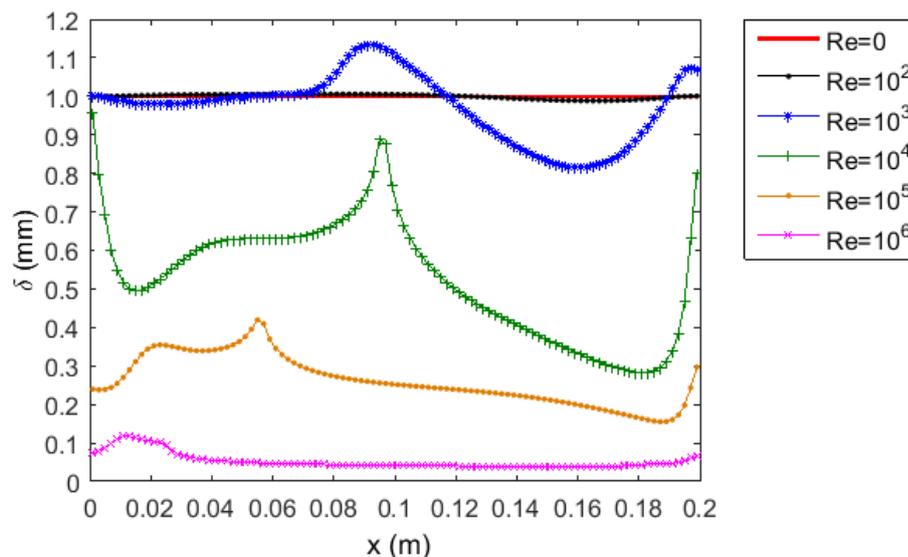


FIGURE 2.14 – Évolution de δ le long de l'interface à $f_S = 44\%$ pour les différents régimes d'écoulement.

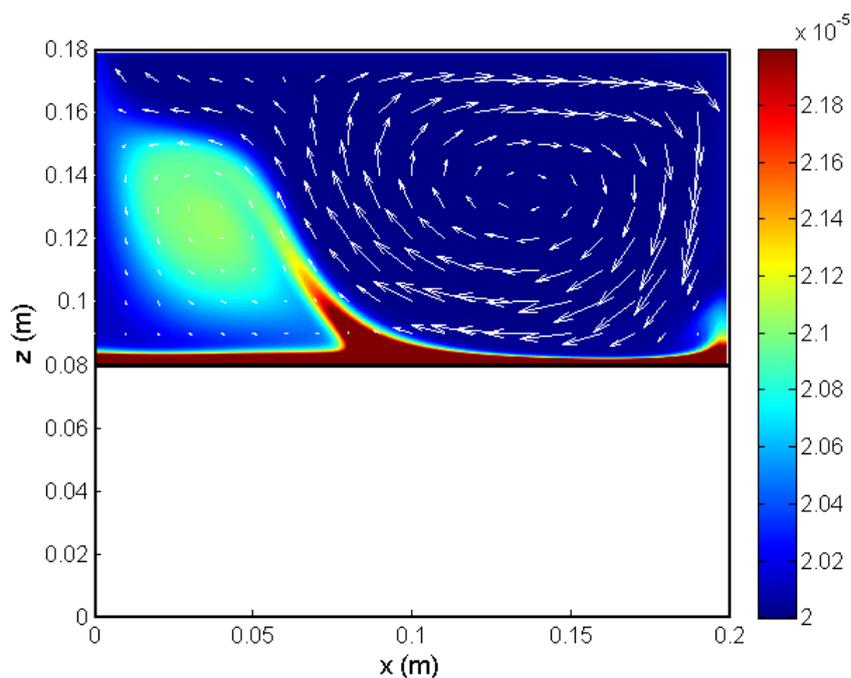


FIGURE 2.15 – Concentration d'impureté (en fraction massique) et champ de vitesse dans la phase liquide à $f_S = 44\%$, pour $Re_L = 10^3$. Une vidéo de l'écoulement et du transport du soluté au cours de la solidification est accessible à cette adresse : <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2015.08.013>.

2.2.3 Analyse de la concentration dans le solide

La figure 2.16 donne la fraction massique d'impureté dans la phase solide obtenue à la fin des calculs transitoires pour les différents régimes d'écoulement. Le front de solidification a progressé de 16 cm, ce qui correspond à une fraction solide $f_S = 89\%$. Si on s'intéresse au cas diffusif pur ($Re_L = 0$), on remarque un gradient de concentration suivant la direction verticale sur les deux premiers centimètres de solide. Ce gradient correspond à un régime transitoire, au cours duquel la concentration à l'interface dans le liquide passe de C_0 à C_0/k_0 (formation de la couche limite de concentration). On atteint ensuite un régime établi où la concentration dans le solide est uniforme et vaut C_0 . La concentration obtenue par le modèle 2D est donc conforme à la solution analytique du régime diffusif pur présentée dans la partie 1.1.2. Si on s'intéresse maintenant aux régimes convectifs ($Re_L = 10^2$ à 10^6), on peut voir que la concentration dans le solide n'est pas uniforme. On observe à la fois des variations de concentration dans les directions x et z , c'est à dire des marques de ségrégation latérale et axiale. Ces variations dépendent fortement du régime d'écoulement. On remarque en effet que la configuration $Re_L = 10^6$ présente une concentration quasiment uniforme dans la direction horizontale. Cela suppose que l'intensité du champ de vitesse est suffisante pour assurer une concentration uniforme en impureté dans le liquide au niveau de l'interface. À l'inverse, pour les régimes à $Re_L = 10^3$, 10^4 et 10^5 , on peut observer des pics de concentration suivant la direction x . On s'attend à ce que ces pics correspondent à des zones de décollement de l'écoulement au niveau de l'interface, dont la position évolue au cours de la solidification. Il s'agit en effet des zones où le transport convectif est le plus faible, ce qui provoque une sur-concentration en impuretés à l'interface.

Les abscisses des points d'arrêt et de décollement ont été enregistrées à différents pas de temps au cours des simulations transitoires. Les trajectoires suivies par ces points au cours de la solidification ont été symbolisées sur la figure 2.17, en superposition avec certaines cartographies de concentration de la figure 2.16. Pour le régime laminaire (figure 2.17.A) et les régimes turbulents (figures 2.17.B, 2.17.C et 2.17.D), pour une hauteur solidifiée donnée, le maximum de concentration dans la phase solide coïncide effectivement avec le point de décollement de la recirculation principale. Ceci illustre clairement la corrélation entre la structure de l'écoulement et la répartition du soluté dans le liquide. On peut ainsi clairement affirmer que les principaux motifs de ségrégation dans une coupe du lingot sont les empreintes laissées par les points caractéristiques de décollement durant la solidification.

Afin de comparer l'influence des différents régimes d'écoulement sur la ségrégation axiale des impuretés, nous avons tracé sur la figure 2.18 les profils normalisés de ségrégation longitudinale. La notation $\langle C_S \rangle$ désigne la concentration moyennée suivant la largeur de la cavité. On remarque que les profils numériques obtenus pour le régime diffusif et les cas laminaires ($Re_L = 10^2$ et $Re_L = 10^3$) sont similaires et suivent la solution analytique du régime diffusif pur avec un transitoire initial lié à la formation de la couche limite solutale, puis une concentration constante et égale à C_0 dans le reste du lingot (1.1.2.2). D'autre part, les régimes turbulents ($Re_L = 10^4$, $Re_L = 10^5$ et $Re_L = 10^6$) suivent une loi de *Scheil* avec un coefficient de partage effectif k_{eff} qui tend vers k_0 lorsque Re_L augmente.

Ces résultats montrent que les simulations de ségrégation dans la configuration de cavité entraînée en 2D sont cohérentes avec les lois analytiques connues (loi de *Scheil* et régime diffusif pur). L'annexe C présente une comparaison de ce modèle 2D à des expériences de solidification réalisées au LMPS. L'objectif est d'estimer à quel point le modèle 2D peut être représentatif d'un procédé de solidification dirigée. Ce type de comparaison est délicate compte tenu des hypothèses du modèle et des incertitudes expérimentales.

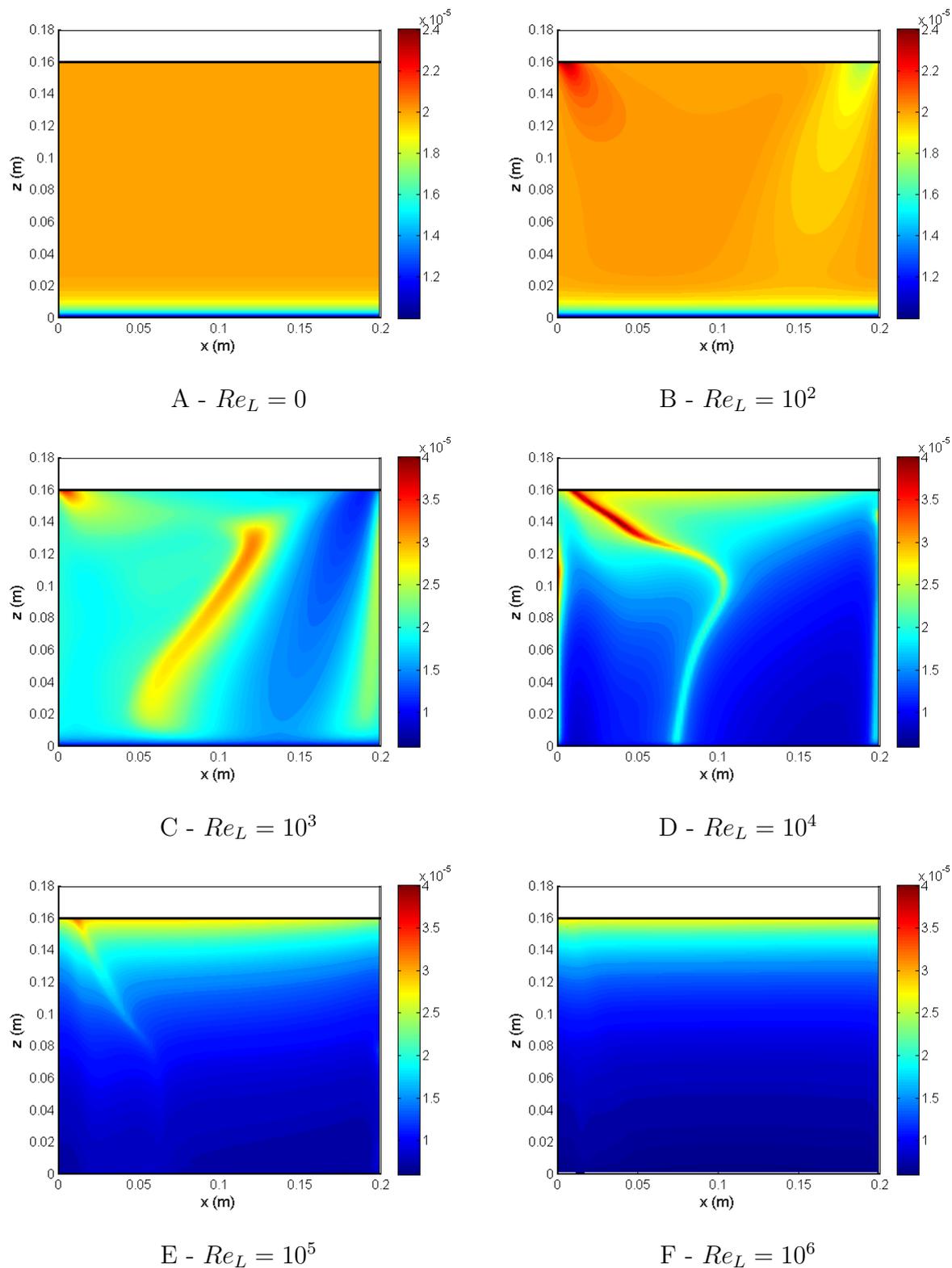


FIGURE 2.16 – Fractions massiques d'impureté dans le solide C_S pour les différents régimes d'écoulement étudiés. Les échelles de couleurs ont été adaptées pour améliorer le contraste de certaines figures.

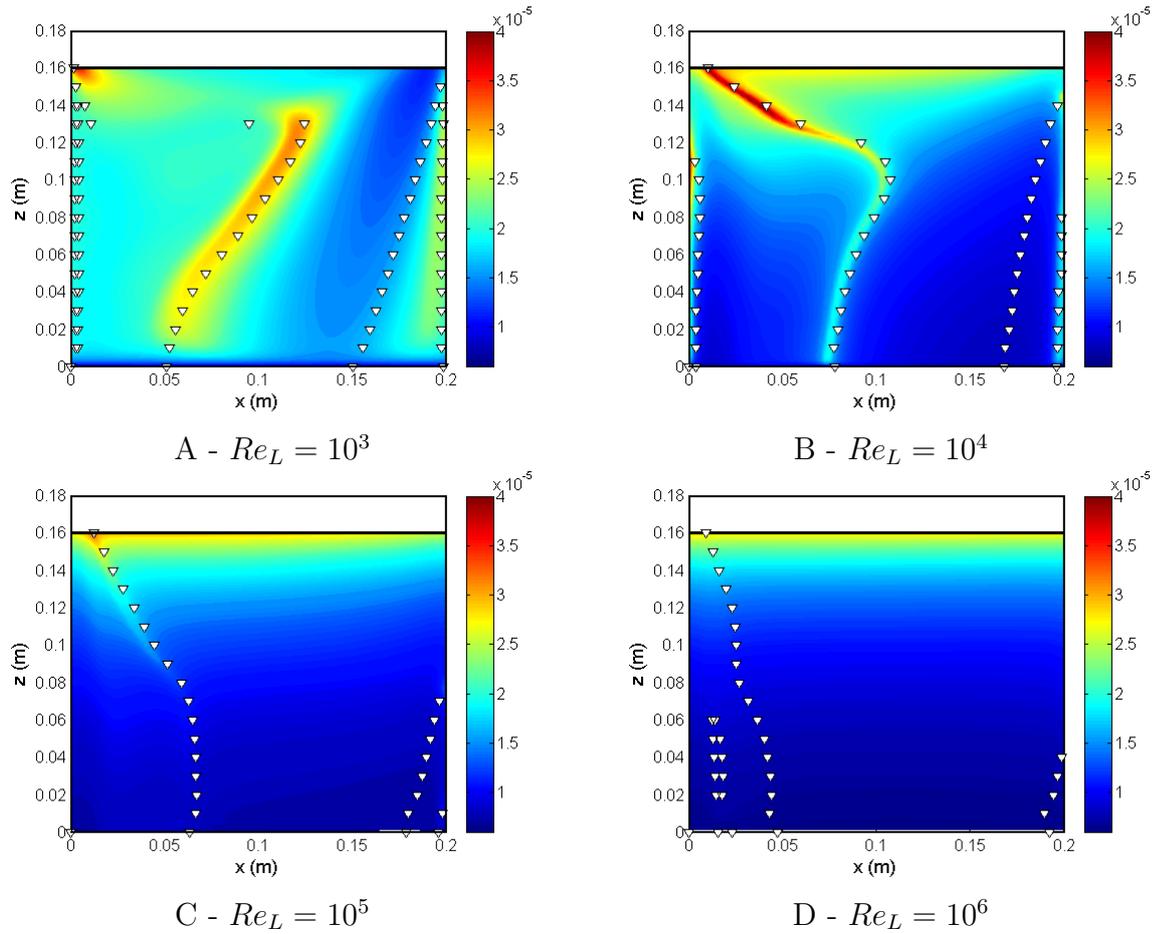


FIGURE 2.17 – Corrélation entre les points d’arrêt et de décollement à l’interface solide/liquide (symboles blancs) et les ségrégations latérales dans le solide, pour des *Reynolds* de 10^3 (A), 10^4 (B), 10^5 (C) et 10^6 (D).

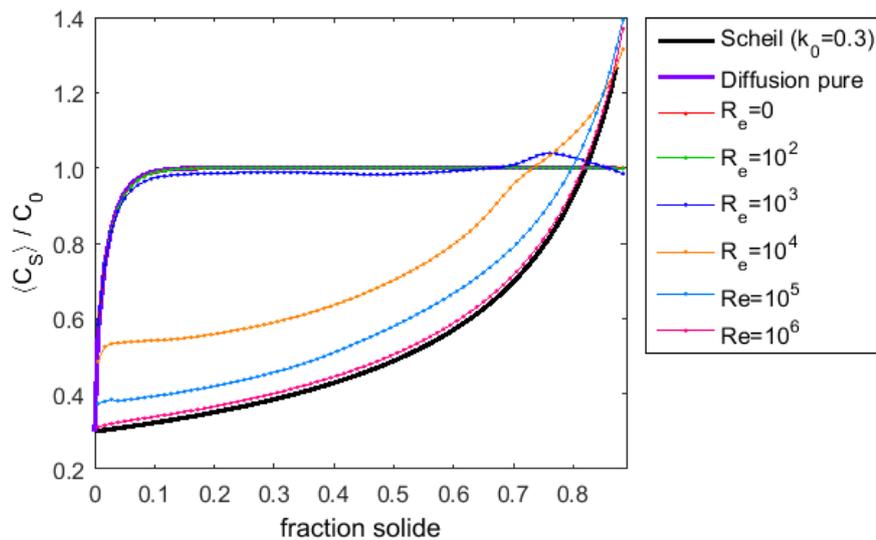


FIGURE 2.18 – Profils de ségrégation longitudinale normalisés $\langle C_S \rangle / C_0$ obtenus numériquement pour les différents régimes d’écoulement. Comparaison avec la loi de *Scheil* (équation (1.12)) et la solution analytique du régime diffusif pur (équation (1.17)).

2.3 Modèle analytique de ségrégation

L'objectif de cette étude est de comparer les résultats issus de la résolution numérique de l'équation de transport du soluté à ceux obtenus par une approche analytique basée sur une analyse en ordre de grandeur. Le principe et certaines limites de cette analyse ont été présentés dans la partie 1.1.3; elle permet de relier l'épaisseur de couche limite solutale δ à la contrainte pariétale τ au niveau du front de solidification. Il est alors possible d'évaluer le paramètre convecto-diffusif Δ en fonction d'un paramètre sans dimension B défini par $B = (\tau D^2)/(V_I^3 \mu L)$. Par la suite, nous noterons Δ_{num} le paramètre convecto-diffusif obtenu numériquement en simulant l'hydrodynamique et la ségrégation comme indiqué dans la section précédente. On s'appuie notamment sur la formule (1.19). Nous noterons Δ_{th} les résultats obtenus grâce au modèle analytique. Δ_{th} est calculé à partir des valeurs de contrainte pariétale τ obtenues par simulation numérique des écoulements de cavité entraînée. **Les résultats analytiques de ségrégation sont donc issus d'une approche couplée entre le modèle analytique de couche limite solutale et la simulation numérique du champ de vitesse (et uniquement du champ de vitesse) dans la phase liquide.**

2.3.1 Prise en compte de la turbulence à l'échelle de la CLS

Le modèle analytique proposé par Garandet et al. [41] fait l'hypothèse que l'épaisseur de la couche limite solutale est plus fine que l'épaisseur de la sous-couche visqueuse. Cela revient à considérer que la turbulence n'intervient pas dans la couche limite solutale et que le profil de vitesse y est linéaire. Les auteurs soulignent que cette hypothèse est discutable pour les régimes fortement convectifs. Pour ces régimes on observe alors une divergence entre le modèle analytique et les résultats numériques, qui semblent suivre une pente plus forte (voir figure 6 de la publication [41]). L'épaisseur de la sous-couche visqueuse est donnée par la relation :

$$\delta_{scv} = \delta_{scv}^+ \frac{\nu}{u_\tau}, \quad (2.15)$$

où δ_{scv}^+ représente l'épaisseur adimensionnée, telle que $\delta_{scv}^+ \approx 5$ (voir section 1.1.3.1). En normalisant δ_{scv} par D/V_I et en introduisant le paramètre B on peut exprimer l'épaisseur normalisée Δ_{scv} de manière comparable à un paramètre convecto-diffusif :

$$\Delta_{scv} = \delta_{scv} \frac{V_I}{D} = \delta_{scv}^+ (B Re_{V_I})^{-1/2}. \quad (2.16)$$

Cette expression fait apparaître un nombre de *Reynolds* basé sur la vitesse de l'interface : $Re_{V_I} = (V_I L)/\nu$. La figure 2.19 présente l'évolution de Δ_{th} et de la sous-couche visqueuse normalisée Δ_{scv} en fonction de B . On considère ici une diffusivité moléculaire $D = 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et une vitesse d'interface $V_I = 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Les valeurs de $\langle \Delta_{num} \rangle$ obtenues par simulations transitoires pour chaque régime d'écoulement sont également représentées. Ces valeurs sont relevées tous les 10 pas de temps et notées Δ_{dyn} . Les valeurs obtenues en régime stationnaire par Garandet et al. [41] ont aussi été reportées à titre de comparaison et sont notées Δ_{stat} . On a vu dans la section 1.1.3 que pour des régimes très convectifs ce modèle prédit une variation de Δ_{th} en $B^{-1/3}$. Or la relation (2.16) indique que Δ_{scv} varie en $B^{-1/2}$. Il existe donc nécessairement une valeur de B pour laquelle la sous-couche visqueuse devient du même ordre de grandeur que la couche limite solutale. Cette valeur est de l'ordre de $B = 10^2$ pour la configuration tracée sur la figure 2.19. La divergence des résultats analytiques et numériques coïncide avec cette valeur et se manifeste par un changement de pente : la couche limite solutale semble alors suivre la

même évolution que la sous-couche visqueuse lorsque B augmente. Ces résultats montrent que pour traiter les régimes très convectifs il est nécessaire de modifier le modèle analytique afin de prendre en compte le transport par les fluctuations turbulentes au sein de la couche limite hydrodynamique.

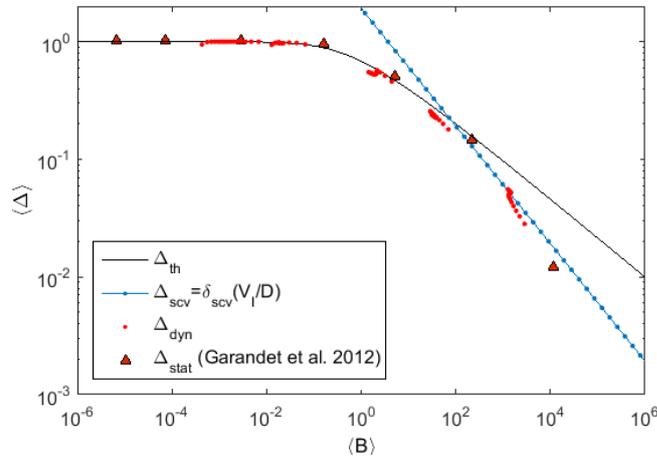


FIGURE 2.19 – Paramètre convecto-diffusif moyen $\langle \Delta \rangle$ en fonction du paramètre moyen $\langle B \rangle$. Comparaison entre la relation analytique (1.47), les résultats numériques issus des simulations en régime stationnaire, notés Δ_{stat} [41], les résultats numériques issus des simulations en régime transitoire, notés Δ_{dyn} et l'épaisseur normalisée de la sous-couche visqueuse Δ_{scv} , donnée par la relation (2.16). Pour ces tracés on a pris $V_I = 10^{-5} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $D = 10^{-8} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$.

2.3.1.1 Analyse en ordres de grandeur modifiée

On se propose donc de modifier l'analyse en ordres de grandeur proposée par Garandet et al. [41] et détaillée dans la section 1.1.3, afin de corriger le modèle analytique. Si l'on écarte l'hypothèse d'une couche limite solutale plus fine que la sous-couche visqueuse, il est nécessaire de prendre en compte les termes associés à la turbulence dans l'équation de transport du soluté. Le transport par la turbulence peut être modélisé par un terme de diffusivité turbulente D_t . L'équation de transport est alors donnée par la relation (2.11). Pour une configuration 1D en régime stationnaire cette équation s'écrit :

$$D \frac{\partial^2 C_L}{\partial z^2} + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_t \frac{\partial C_L}{\partial z} \right) + (V_I - w) \frac{\partial C_L}{\partial z} = 0. \quad (2.17)$$

Il est nécessaire d'étudier le terme $D_t(\partial C_L/\partial z)$ pour poursuivre l'analyse. À l'interface solide/liquide il n'y a pas de diffusion turbulente, D_t est nulle. À la frontière extérieure de la couche limite solutale D_t est positive et le gradient de concentration $\partial C_L/\partial z$ est négatif. On a donc :

- $D_t(\partial C_L/\partial z) = 0$ en $z = 0$.
- $D_t(\partial C_L/\partial z) < 0$ en $z = \delta$.

Ces observations montrent que le terme $D_t(\partial C_L/\partial z)$ est négatif et globalement décroissant dans la couche limite solutale. Sa dérivée $\partial[D_t(\partial C_L/\partial z)]/\partial z$ est donc négative pour z allant de 0 à δ . Il est logique que ce terme soit négatif puisqu'il modélise le transport convectif par la turbulence, qui permet d'évacuer le soluté qui diffuse depuis l'interface. Afin de confirmer cette analyse, les profils de diffusion turbulente D_t et de gradient de concentration $\partial C_L/\partial z$ ont été extraits des simulations numériques de ségrégation. La figure 2.20 présente un profil de

$D_t(\partial C_L/\partial z)$ pris au centre de la cavité pour la configuration $Re_L = 10^5$ et une hauteur solidifiée de 2 cm. L'épaisseur de la couche limite solutale δ est repérée par une ligne discontinue. On observe que le terme $D_t(\partial C_L/\partial z)$ est bien nul à l'interface solide/liquide ($z_L = 0$) et décroissant dans la couche limite solutale. Ce terme devient ensuite croissant en dehors de la couche limite puisque le gradient de concentration tend vers 0. On peut d'ores et déjà rappeler que le tracé dépend du modèle de turbulence choisi pour la simulation numérique. Ainsi, on peut s'attendre à ce que le minimum de la courbe varie sensiblement d'un modèle à l'autre. L'allure globale de cette courbe sera néanmoins la même pour tous les modèles classiques.

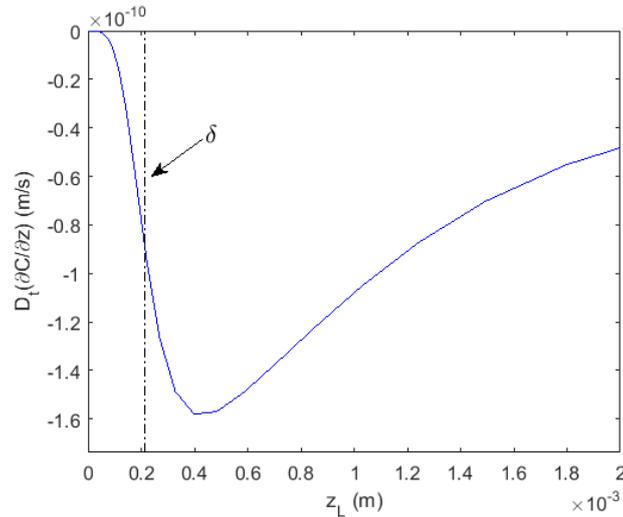


FIGURE 2.20 – Profil normal à l'interface du flux $D_t(\partial C_L/\partial z)$ pour la configuration $Re_L = 10^5$. Le profil est pris au centre de la cavité, pour une hauteur solidifiée de 2 cm.

On considère que l'ordre de grandeur des variations de concentration dans la couche limite solutale est donné par $\Delta c = C_L^I - C_L^\infty$. L'épaisseur caractéristique de la couche limite solutale δ est définie par la relation (1.18). En termes d'ordre de grandeur l'équation de transport (2.17) s'exprime alors par :

$$D \frac{\Delta c}{\delta^2} - D_t \frac{\Delta c}{\delta^2} - (V_I - w) \frac{\Delta c}{\delta} = 0. \quad (2.18)$$

En simplifiant par $\Delta c/\delta$ on obtient une nouvelle équation permettant d'estimer δ en ordre de grandeur, en tenant compte de la diffusivité tourbillonnaire :

$$\frac{D}{\delta} - \frac{D_t}{\delta} = V_I - w. \quad (2.19)$$

Pour résoudre cette équation il faut définir les profils de vitesse et de diffusivité turbulente au sein de la couche limite solutale. Considérons l'expression générale d'un profil de vitesse moyenne tangentielle dans la couche limite :

$$u(z) = f(z). \quad (2.20)$$

Comme dans la section 1.1.3, on considère que la longueur caractéristique des variations de u dans la direction horizontale est donnée par L et que la distance à la paroi z représente la longueur caractéristique des variations de w dans la direction verticale. La relation de continuité (1.43) nous permet alors d'écrire :

$$\frac{w}{z} \sim -\frac{u}{L}, \quad (2.21)$$

soit :

$$w(z) \sim -\frac{z}{L} f(z). \quad (2.22)$$

En définissant la diffusivité turbulente à partir de la viscosité tourbillonnaire ν_t et du nombre de *Schmidt* turbulent Sc_t , on obtient une relation générale de la forme :

$$\frac{D}{\delta} - \frac{\nu_t(\delta)}{Sc_t \delta} = V_I + \frac{\delta}{L} f(\delta). \quad (2.23)$$

Il faut à ce stade choisir un profil de vitesse moyenne et un modèle de turbulence pour expliciter $f(z)$ et ν_t/Sc_t en $z = \delta$. Les simulations numériques montrent que l'épaisseur de la couche limite solutale dépasse plus ou moins celle de la sous-couche visqueuse en fonction de la diffusivité moléculaire. Mais pour les configurations étudiées δ reste nettement inférieure à la limite de la zone tampon $z^+ \approx 50$. On peut alors décrire le profil de vitesse à l'aide de la formule de *Rannie* :

$$u^+(z) = A \tanh\left(\frac{z^+}{A}\right), \quad (2.24)$$

où $A = 14.53$ est une constante empirique. Cette formule est certes moins célèbre que le profil logarithmique de *Prandtl* et *Taylor* [4], mais présente l'avantage de décrire le profil de vitesse à l'aide d'une expression unique, simple et dérivable pour toutes les valeurs de z^+ comprises dans l'intervalle $[0; 27.5]$. La viscosité tourbillonnaire peut être exprimée à l'aide d'un modèle de longueur de mélange :

$$\nu_t = l^2 \left| \frac{\partial u}{\partial z} \right|, \quad (2.25)$$

où la longueur de mélange l peut être définie grâce à l'expression de *Van Driest* qui reste valable dans la sous-couche visqueuse :

$$l = \kappa z \left(1 - e^{-z^+/c}\right), \quad (2.26)$$

où $c = 26$ est également une constante empirique et $\kappa = 0.4$ est la constante de *Von Karman*. Là encore, d'autres modèles de turbulence peuvent être envisagés. Celui-ci présente l'intérêt d'être suffisamment simple pour permettre une approche analytique relativement poussée. Le gradient de vitesse $\partial u/\partial z$ peut être estimé en ordre de grandeur par :

$$\frac{\partial u}{\partial z} \sim \frac{u}{z} \sim \frac{f(z)}{z}. \quad (2.27)$$

En introduisant la formule de *Rannie* et le modèle de longueur de mélange dans l'équation générale (2.23), et en supposant un nombre de *Schmidt* turbulent Sc_t uniforme, on obtient :

$$\frac{D}{\delta} - \frac{\kappa^2}{Sc_t} \left(1 - e^{-\delta u_\tau/(\nu c)}\right)^2 Au_\tau \tanh\left(\frac{\delta u_\tau}{A\nu}\right) = V_I + \frac{\delta}{L} Au_\tau \tanh\left(\frac{\delta u_\tau}{A\nu}\right). \quad (2.28)$$

Cette équation peut être résolue numériquement pour déterminer l'épaisseur de la couche limite solutale. Afin d'estimer l'influence des différents paramètres on peut chercher à linéariser les termes de convection et de diffusion turbulente. Pour cela on introduit un développement limité du premier ordre au voisinage de 0 :

$$Au_\tau \tanh\left(\frac{\delta u_\tau}{A\nu}\right) \approx \frac{u_\tau^2}{\nu} \delta, \quad (2.29)$$

$$\left(1 - e^{-\delta u_\tau/(\nu c)}\right)^2 Au_\tau \tanh\left(\frac{\delta u_\tau}{A\nu}\right) \approx \frac{u_\tau^2}{\nu} \left(\frac{u_\tau}{\nu c}\right)^2 \delta^3. \quad (2.30)$$

On notera que le développement limité à l'ordre 0 du profil de *Rannie* nous ramène au profil linéaire de vitesse de la sous-couche visqueuse. En introduisant les paramètres adimensionnels Δ et B l'équation (2.28) devient :

$$1 - \Delta - B\Delta^3 - \left(\frac{\kappa}{c}\right)^2 \frac{Sc}{Sc_t} Re_{V_I}^2 B^2 \Delta^4 = 0. \quad (2.31)$$

Un terme de degré 4 associé à la diffusion turbulente vient s'ajouter à l'équation du troisième ordre obtenue par Garandet et al. [41], qui pour mémoire s'écrit de la manière suivante :

$$1 - \Delta - B\Delta^3 = 0. \quad (2.32)$$

On s'intéresse aux régimes fortement convectifs. Le terme d'ordre 1 en Δ de l'équation (2.31) peut donc être négligé en considérant que la vitesse d'interface V_I est négligeable devant la vitesse de convection w . On définit le paramètre $\psi = (\kappa/c)\sqrt{Sc/Sc_t}Re_{V_I}$. Le régime asymptotique lorsque B tend vers l'infini est ainsi donné par :

$$\Delta = (\psi B)^{-1/2}. \quad (2.33)$$

En introduisant la relation (2.33) dans l'équation (2.32) il est possible de définir une valeur critique B_c à partir de laquelle le transport par la turbulence devient non négligeable :

$$B_c = \frac{1}{\psi} \left(1 + \frac{1}{\psi}\right)^2. \quad (2.34)$$

La figure 2.21 présente l'évolution de B_c en fonction du paramètre ψ . Elle met en avant les deux régimes asymptotiques en $B_c \approx \psi^{-1}$ pour $\psi \gg 1$ et en $B_c \approx \psi^{-3}$ pour $\psi \ll 1$. Cette valeur critique borne le domaine de validité du modèle analytique proposé par Garandet et al. [41]. Lorsque B est inférieur à B_c la couche limite solutale est correctement décrite par l'équation (2.32). Au delà de cette valeur le transport par la turbulence ne peut plus être négligé. L'épaisseur de la couche limite solutale peut alors être calculée par résolution numérique de l'équation (2.28) ou estimée à l'aide de la relation (2.33).

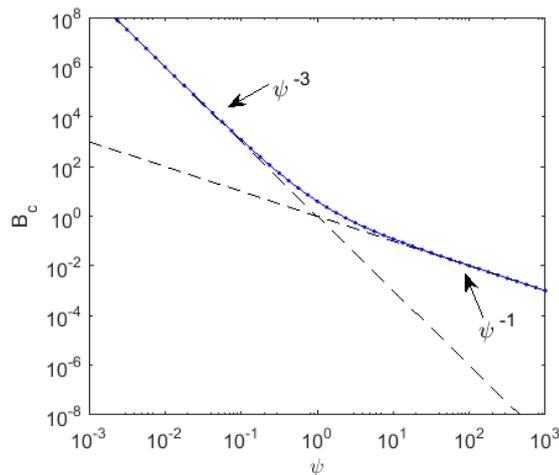


FIGURE 2.21 – Valeur critique B_c en fonction du paramètre ψ (relation (2.34)).

2.3.1.2 Comparaison avec les résultats numériques

Nous avons réalisé des simulations numériques afin d'étudier l'influence de la diffusivité moléculaire D et de la vitesse de solidification V_I sur la valeur critique B_c et sur l'évolution de Δ en fonction de B . Pour les différentes configurations étudiées la diffusivité varie entre 10^{-9} et $10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et la vitesse d'interface entre 2.8×10^{-6} et $7 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Pour chaque série de calculs le nombre de *Reynolds* varie de 10^2 à 10^7 . Pour les cas à $Re_L = 10^7$, le raffinement du maillage à l'interface solide/liquide est accentué avec une hauteur de la première maille à la paroi de $1 \mu\text{m}$ afin d'assurer une discrétisation suffisante dans la couche limite solutale.

La figure 2.22 présente les valeurs moyennes $\langle \Delta \rangle$ en fonction de $\langle B \rangle$, pour l'ensemble des configurations étudiées. Les résultats numériques obtenus par simulations transitoires et stationnaires [41] sont comparés aux valeurs obtenues par résolution numérique de l'équation (2.28). Les simulations numériques montrent que la valeur critique B_c diminue lorsque V_I augmente ou lorsque D diminue, comme le prévoit la relation (2.34). Les résultats analytiques sont en bon accord avec les résultats numériques. L'équation (2.28) sous-estime sensiblement Δ par rapport aux simulations mais les écarts observés sont tout à fait satisfaisants pour une approche en ordre de grandeur. Cette équation permet de retrouver les ruptures de pentes observées numériquement pour les régimes fortement convectifs. Pour les différentes valeurs de V_I et D testées, la relation (2.34) prévoit des valeurs critiques B_c comprises entre 0.3 et 207. Les valeurs critiques obtenues pour les deux cas extrêmes $V_I = 2.8 \times 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et $7 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ sont représentées sur la figure 2.22.A par des traits mixtes. Elles coïncident avec les changements de pente observés sur les résultats numériques. Par ailleurs, le régime asymptotique proposé par la relation (2.33) fournit une très bonne approximation de Δ lorsque B devient supérieur à B_c . Ces régimes asymptotiques sont également représentés sur la figure 2.22.A, seulement pour les cas $V_I = 2.8 \times 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et $7 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ afin de conserver la lisibilité des courbes.

En conclusion, l'introduction d'un terme de diffusion turbulente dans le modèle analytique de couche limite solutale permet d'estimer Δ pour les régimes turbulents pleinement développés. **Le transport par la turbulence est un élément essentiel pour décrire la ségrégation en présence d'écoulements turbulents. L'équation (2.28) permet de décrire l'ensemble des configurations étudiées, du régime diffusif au régime convectif. L'association de la relation (1.47) et du régime asymptotique (2.33) fournit également une très bonne estimation de l'épaisseur de couche limite solutale pour les différents régimes et ne nécessite pas de résolution numérique.**

Remarque :

Les résultats numériques obtenus pour le régime turbulent $Re_L = 10^7$ présentent une variation importante de $\langle \Delta \rangle$ vis à vis de $\langle B \rangle$ au cours de la solidification. Cette dispersion est liée au confinement du décollement de la recirculation principale vers la paroi latérale lorsque la hauteur de liquide diminue. Le décollement a alors de moins en moins d'influence sur la valeur moyenne du profil de Δ le long de l'interface. Ce phénomène est particulièrement marqué pour ce régime fortement convectif puisque la couche limite solutale est globalement très fine, ce qui accentue l'influence relative des décollements. Afin de confirmer cette hypothèse, les valeurs de Δ ont été relevées au centre de la cavité, loin du point de décollement, pour une hauteur solidifiée de 1 cm. Ces valeurs sont repérées par des croix noires sur la figure 2.22 et sont très proches des valeurs prédites par l'équation (2.28). Ceci confirme que la dispersion des résultats numériques est liée à des effets 2D et qu'en s'affranchissant de ces phénomènes l'accord avec le modèle analytique est excellent.

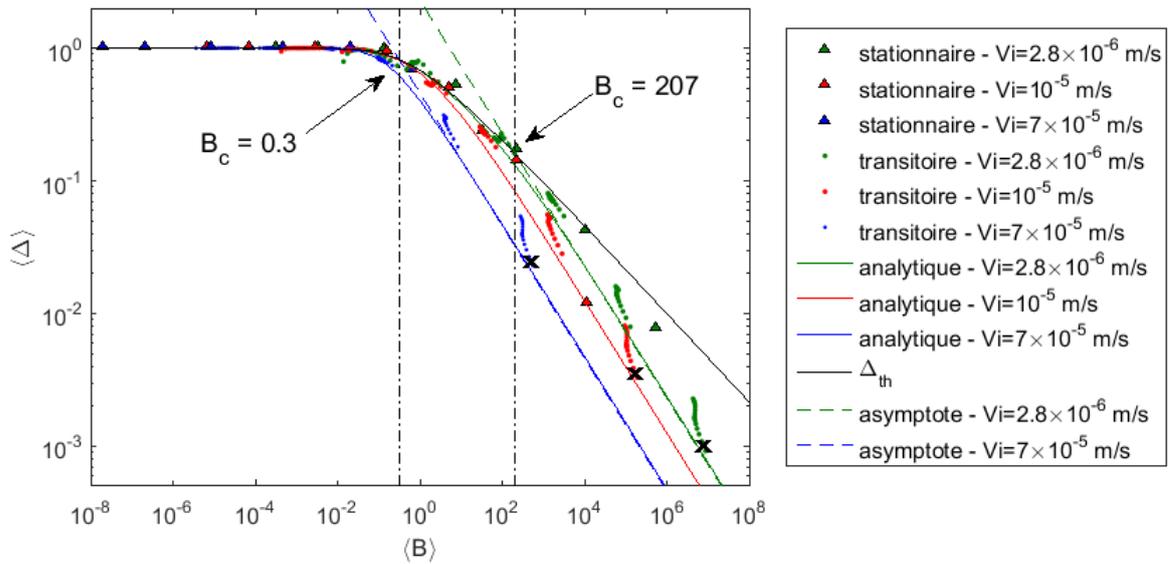
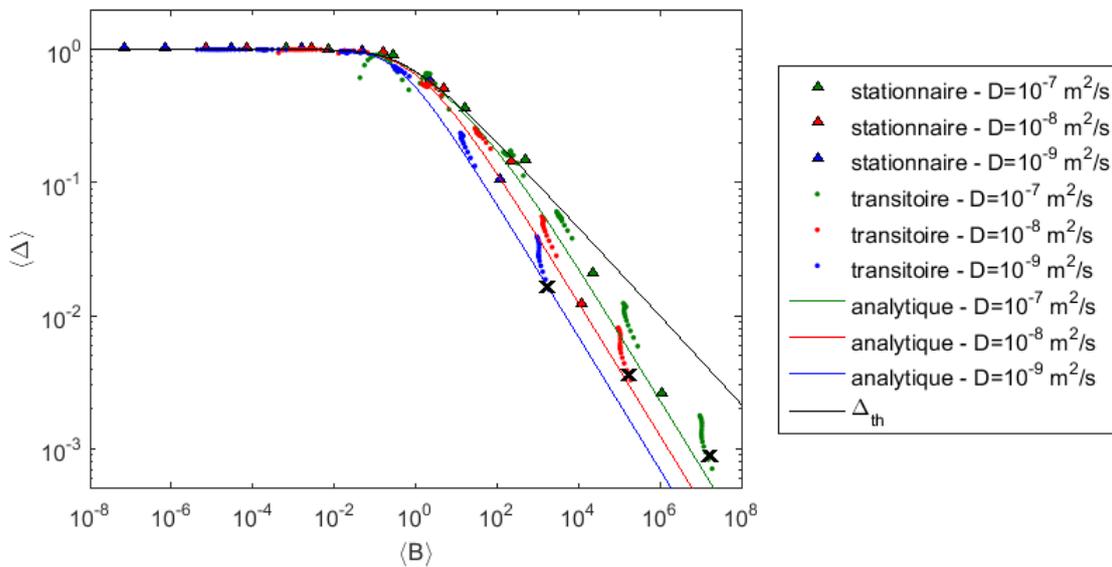

 A - Influence de V_I ($D = 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$).

 B - Influence de D ($V_I = 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$).

FIGURE 2.22 – Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen $\langle \Delta \rangle$ en fonction de $\langle B \rangle$. Influence de la vitesse de solidification V_I (A) et de la diffusivité moléculaire D (B). Comparaison des résultats numériques transitoires et stationnaires [41] avec l'équation (2.28) et la relation (1.47). Les valeurs critiques obtenues par la relation (2.34) et les régimes asymptotiques définis par la relation (2.33) sont représentés pour les cas $V_I = 2.8 \times 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et $7 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (A). Les croix noires (\times) représentent les valeurs obtenues pour $Re_L = 10^7$ au centre de la cavité, pour une hauteur solidifiée de 1 cm.

2.3.2 Description des ségrégations latérales à l'aide du modèle analytique

On souhaite étudier la capacité du modèle analytique à fournir une bonne estimation des variations locales de la couche limite solutale le long de l'interface solide/liquide. Ces variations sont à l'origine des ségrégations latérales et entraînent des variations de composition dans les lingots de silicium. On cherche alors à exprimer le paramètre convecto-diffusif $\Delta(x)$ en fonction du paramètre $B(x)$ défini localement le long de l'interface. Pour calculer $B(x)$ il est nécessaire d'utiliser le profil de contrainte pariétale $\tau(x)$. Le paramètre B fait également intervenir la longueur caractéristique de la recirculation dans la cavité. En première approche Garandet et al. [41] assimilent cette longueur caractéristique à la largeur de la cavité L , en négligeant les recirculations secondaires. Cependant, les résultats numériques montrent que les ségrégations latérales sont influencées par ces recirculations secondaires. Il semble donc pertinent d'associer à chaque recirculation une longueur caractéristique L_i définie par la distance entre les points caractéristiques encadrant la recirculation. La figure 2.23 illustre le cas d'un écoulement à trois recirculations et définit les longueurs caractéristiques à partir des points d'arrêt, des décollements et des parois latérales de la cavité.

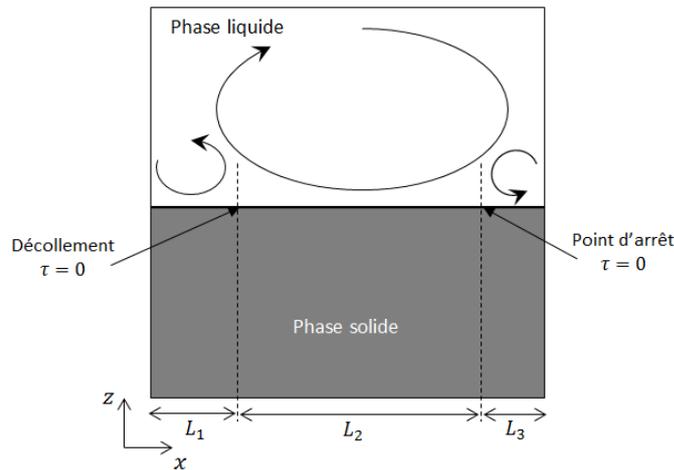


FIGURE 2.23 – Schéma de la configuration de cavité entraînée avec trois recirculations, définition des différentes longueurs caractéristiques et localisation des points caractéristiques.

La figure 2.24 donne des profils typiques de contrainte pariétale τ (en Pa) et de paramètre convecto-diffusif Δ au niveau de l'interface, pour les configurations $Re_L = 10^3, 10^4$ et 10^5 . Ces profils sont pris à une fraction solide de 44% (position du front $z_f = 8$ cm), les résultats obtenus pour d'autres fractions solides étant similaires. Les abscisses des décollements et des points d'arrêt sont notées respectivement x_d et x_a . Sur les figures 2.24.A2, 2.24.B2 et 2.24.C2, les profils numériques Δ_{num} sont comparés aux profils analytiques Δ_{th} obtenus en considérant une ou plusieurs longueurs caractéristiques de recirculations. Entre les points caractéristiques, les valeurs de Δ_{th} fournies par le modèle analytique sont en bon accord avec les résultats numériques pour les régimes turbulents. Il est intéressant de voir que l'analyse en ordres de grandeur, qui utilise une formulation 1D, est capable de fournir une bonne estimation des variations locales de la couche limite solutale. Ceci confirme que la contrainte de frottement à l'interface est un bon indicateur du transport convectif à l'interface solide/liquide. La définition de plusieurs longueurs caractéristiques associées aux différentes recirculations améliore sensiblement les résultats analytiques.

Pour le régime laminaire (figure 2.24.A2) le transport est majoritairement diffusif avec Δ de

l'ordre de 1. L'influence des points caractéristiques s'étend alors sur une large zone de l'interface solide/liquide. Les ségrégations latérales sont très importantes et les flux de soluté dans la phase liquide peuvent être complexes (voir paragraphe 2.2.2). L'analyse en ordres de grandeur n'est pas bien adaptée pour décrire de tels gradients horizontaux de concentration, même si elle permet de reproduire qualitativement certaines variations. On remarque notamment que le modèle analytique ne permet pas de prédire un Δ localement plus grand que 1, tel qu'on l'observe sur le résultat numérique de la figure 2.24.A2, puisque Δ_{th} tend asymptotiquement vers 1 lorsque B tend vers 0. En toute rigueur, ces configurations nécessiteraient de prendre en compte l'inhomogénéité dans le liquide à l'extérieur de la couche limite solutale. Ces cas laminaires restent néanmoins légèrement en marge de notre étude qui s'intéresse avant tout à des écoulements turbulents générés par des systèmes de brassage.

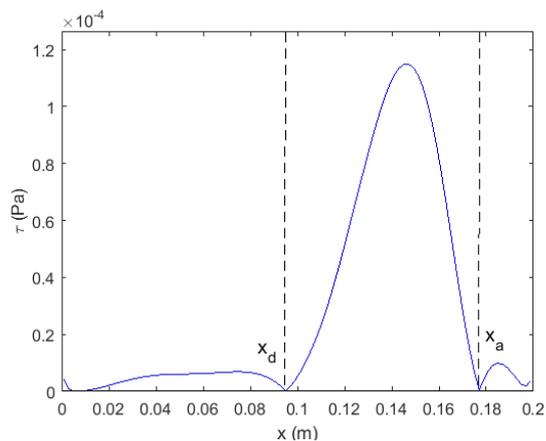
Remarque sur les points caractéristiques

Le modèle analytique de ségrégation fait l'hypothèse d'un écoulement de couche limite le long de l'interface solide/liquide. Cette description n'est pas valable à proximité des décollements et des points d'arrêt puisque l'écoulement devient complètement bidimensionnel. On observe sur la figure 2.24 un écart significatif entre les profils numériques et analytiques de Δ au voisinage des points caractéristiques.

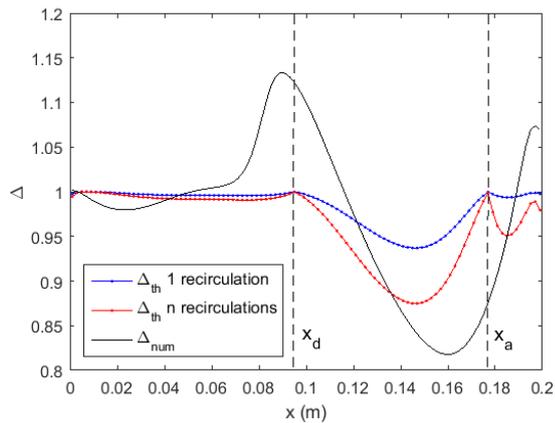
Considérons tout d'abord le cas des décollements. Pour les différents régimes, les simulations numériques mettent en évidence un pic de Δ_{num} au niveau des décollements. Cet enrichissement local de l'interface résulte des flux convectifs provenant des recirculations situées de part et d'autre du point caractéristique. La hauteur de ce pic de concentration dépend du régime de convection global dans la cavité. Pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$, on observe que Δ_{num} est localement supérieur à 1. Le modèle analytique prévoit également un pic de Δ_{th} aux décollements puisque Δ_{th} tend vers 1 lorsque τ tend vers 0. Le pic est alors surestimé par le modèle analytique pour les régimes turbulents et sous-estimé pour le régime laminaire.

Au niveau des points d'arrêt, la contrainte s'annule également et le modèle analytique prévoit aussi un pic de Δ_{th} . Cependant, les résultats numériques montrent que les points d'arrêt correspondent en fait à un minimum de Δ_{num} . En effet, au point d'arrêt l'écoulement est dirigé vers l'interface et apporte du liquide avec une faible concentration d'impureté. Le flux convectif est ensuite dévié par l'interface et s'éloigne du point d'arrêt. Tout se passe donc comme si l'écoulement normal à la paroi écrasait ou au contraire épaississait la couche limite solutale en fonction de sa direction (décollement ou impact). Ces caractéristiques des profils de ségrégation sont en accord avec les résultats numériques présentés par Teng et al. [87].

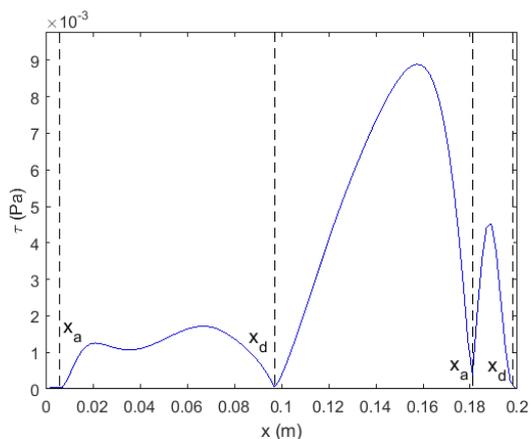
Les flux convectifs aux points caractéristiques ne peuvent être correctement décrits par une approche 1D. Des critères spécifiques doivent donc être définis pour ces points particuliers, ce qui fera l'objet de la section 2.3.4 où une procédure est proposée pour détecter les points d'arrêt et filtrer les pics de Δ_{th} associés.



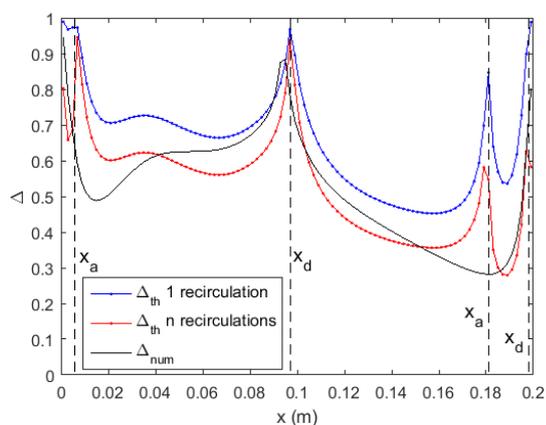
A1 : Profil de τ , $Re_L = 10^3$



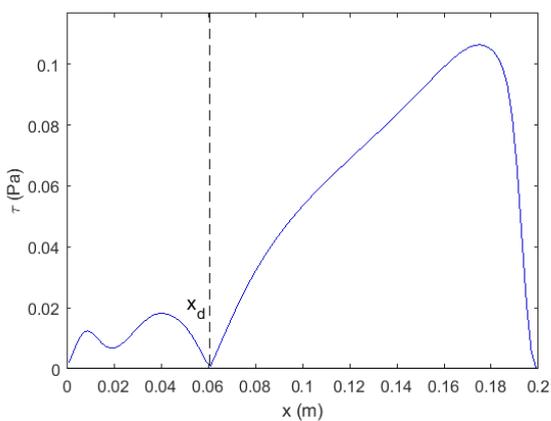
A2 : Profil de Δ , $Re_L = 10^3$



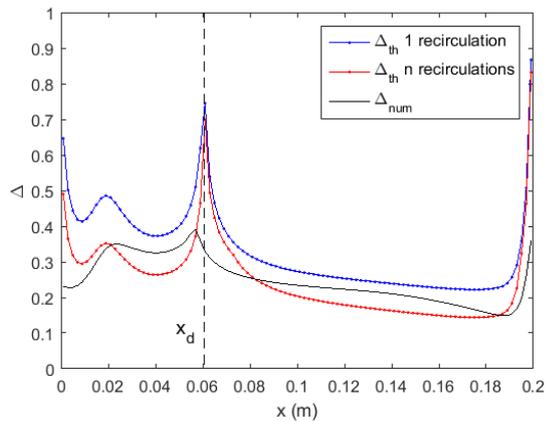
B1 : Profil de τ , $Re_L = 10^4$



B2 : Profil de Δ , $Re_L = 10^4$



C1 : Profil de τ , $Re_L = 10^5$



C2 : Profil de Δ , $Re_L = 10^5$

FIGURE 2.24 – Évolution de la contrainte de frottement τ et du paramètre convecto-diffusif Δ le long de l'interface pour $Re_L = 10^3$ (A), $Re_L = 10^4$ (B) et $Re_L = 10^5$ (C). Les profils sont pris à une fraction solide de 44%.

2.3.3 Réponse aux instationnarités

Comme on l'a vu dans les sections 1.1.3 et 2.3.1, le modèle analytique fait intervenir une hypothèse de quasi-stationnarité. Or, des instationnarités liées aux variations temporelles de la convection et de la vitesse de solidification interviennent lors des procédés de solidification dirigée. L'objectif est ici de déterminer dans quelle mesure un modèle en régime quasi-permanent est suffisant pour capturer la physique de ces procédés.

2.3.3.1 Instationnarités liées à la convection

La première cause de fluctuations que l'on peut identifier dans nos simulations numériques est liée à la convection par l'écoulement de cavité entraînée. Cet écoulement est influencé par l'élanement H/L de la zone liquide qui évolue au cours de la solidification. On observe donc des changements de tailles et de positions des différentes recirculations au cours du procédé. La compréhension de ces phénomènes transitoires est importante pour la suite de l'étude puisque ce type de fluctuation intervient également lorsque l'on s'intéresse au brassage mécanique (voir chapitre 3). En effet, la réduction de la hauteur de liquide entraîne une modification de l'écoulement généré par l'agitateur. Par ailleurs, la rotation des pales provoque des fluctuations rapides du régime de convection à l'interface solide/liquide. Ce dernier point est traité dans la section 3.2.3.3.

La figure 2.25 présente l'évolution de la contrainte moyenne $\langle \tau \rangle$ à l'interface solide/liquide en fonction de la fraction solidifiée, pour un régime laminaire ($Re_L = 10^3$, 2.25.A) et un régime turbulent ($Re_L = 10^5$, 2.25.B). La figure 2.26 présente la variation temporelle du paramètre convecto-diffusif moyen à l'interface. Les courbes rouges représentent les résultats obtenus numériquement. Comme on pouvait s'y attendre, $\langle \Delta_{num} \rangle$ varie en sens inverse de $\langle \tau \rangle$. Le temps caractéristique de la diffusion à l'échelle de la couche limite solutale est défini par la relation :

$$t_c = \frac{\delta^2}{D}. \quad (2.35)$$

Ce temps est de l'ordre de 100 s pour le cas laminaire et de 10 s pour le cas turbulent. La durée du procédé de solidification simulé est de 4 heures. Cela montre que les fluctuations de $\langle \tau \rangle$ et $\langle \Delta_{num} \rangle$ sont lentes devant t_c . L'hypothèse de quasi-stationnarité utilisée dans la formulation analytique semble donc bien adaptée à ce type de configuration. Les courbes bleues de la figure 2.26 présentent les résultats obtenus par le modèle analytique à partir des valeurs instantanées de $\langle \tau \rangle$. Dans le cas du régime turbulent, les variations obtenues sur $\langle \Delta_{th} \rangle$ sont identiques à celles de $\langle \Delta_{num} \rangle$. Le modèle analytique permet donc de décrire l'influence des variations du régime de convection sur la ségrégation lorsque le transport des impuretés reste principalement convectif. Pour le régime laminaire on observe également une bonne correspondance des résultats numériques et analytiques, excepté lorsque la fraction solide est comprise entre 75% et 85%. Cet intervalle correspond à un changement de régime d'écoulement avec le confinement de la recirculation secondaire. Il faut noter que le caractère laminaire de l'écoulement limite l'homogénéisation du liquide. La recirculation secondaire est alors plus concentrée en impuretés que la recirculation principale et son confinement provoque un enrichissement de l'interface et une augmentation de l'épaisseur de couche limite solutale (voir figure 2.15). Ce type de phénomène ne peut être correctement décrit qu'en modélisant le transport de soluté dans toute la cavité. Cela nécessiterait de coupler le modèle analytique à une résolution de l'équation de la concentration dans le bain. Ce cas laminaire n'étant pas représentatif des configurations de brassage que l'on souhaite étudier ici, nous n'avons pas poussé l'étude plus loin.

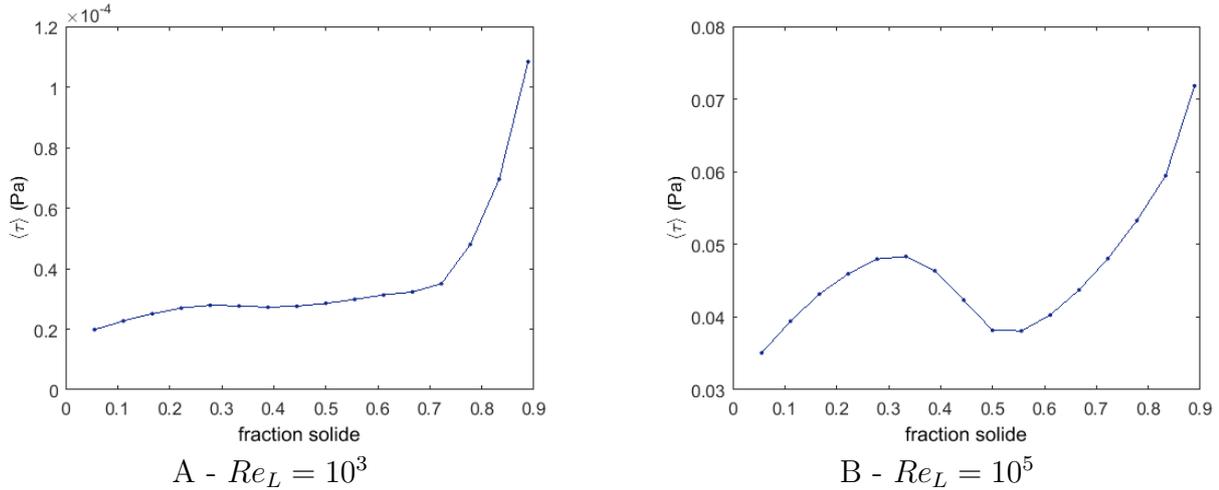


FIGURE 2.25 – Évolution de la contrainte moyenne à l'interface au cours de la solidification pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$ (A) et le régime turbulent $Re_L = 10^5$ (B).

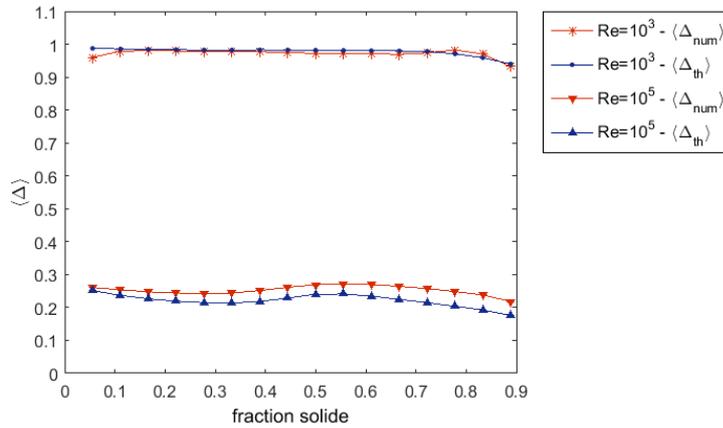


FIGURE 2.26 – Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen à l'interface au cours de la solidification pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$ et le régime turbulent $Re_L = 10^5$. Comparaison des résultats numériques $\langle \Delta_{num} \rangle$ et analytiques $\langle \Delta_{th} \rangle$.

2.3.3.2 Fluctuations de la vitesse de solidification

Nous nous intéressons maintenant à l'influence de fluctuations de la vitesse de solidification. Dans une configuration de solidification dirigée, la vitesse de solidification est contrôlée par les conditions de température dans le four. L'inertie thermique du procédé permet de limiter les fluctuations à des fréquences faibles, contrairement à des configurations de tirage *Czochralski* où les fréquences des fluctuations peuvent être élevées (et source de striation de concentration dans les lingots). La fréquence de ces fluctuations doit en fait être comparée au temps caractéristique de la diffusion des impuretés à l'échelle de l'épaisseur de la couche limite solutale t_c (équation (2.35)). Il est alors possible de définir un nombre adimensionnel Fq pour caractériser le régime fréquentiel [35] :

$$Fq = t_c \omega_f = \frac{\omega_f \delta^2}{D}, \quad (2.36)$$

où ω_f représente la pulsation des fluctuations de vitesse ($\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$). L'influence d'oscillations périodiques de la vitesse de solidification a été étudiée analytiquement par Garandet [35] et numériquement par Haddad et al. [45, 46]. Ces deux études ont permis de montrer l'influence

de la fréquence des fluctuations de vitesse sur l'amplitude et le déphasage des fluctuations de ségrégation. Elles mettent notamment en évidence l'existence d'un régime basse fréquence où les variations de vitesse sont suffisamment lentes pour que la couche limite solutale s'y adapte sans déphasage. Ce régime basse fréquence est obtenu lorsque Fq tend vers 0 et la transition entre haute et basse fréquence se passe à $Fq = 1$. L'hypothèse de quasi-stationnarité utilisée dans le modèle analytique de ségrégation peut donc être justifiée si l'on reste dans la limite de ce régime basse fréquence. Afin de simuler numériquement des fluctuations de vitesse, nous imposons dans notre modèle numérique une variation sinusoïdale de la vitesse de solidification :

$$V_I(t) = \overline{V}_I[1 + \alpha \sin(\omega_f t)], \quad (2.37)$$

où \overline{V}_I représente la vitesse moyenne de solidification et α l'amplitude des oscillations. Pour cette simulation nous nous plaçons dans le cas turbulent $Re_L = 10^6$. Les données numériques nous permettent d'estimer une valeur moyenne de l'épaisseur de couche limite solutale $\langle \delta \rangle \approx 52 \mu\text{m}$ dans le cas d'une vitesse de solidification constante. Nous définissons alors une période de 2000 s pour les oscillations de vitesse, ce qui implique $Fq \approx 8.5 \times 10^{-4}$. Les résultats théoriques montrent qu'un tel régime fréquentiel entraîne un déphasage pratiquement nul entre les fluctuations de vitesse et de concentration [35]. Par ailleurs, nous conservons une vitesse de solidification moyenne $\overline{V}_I = 10^{-5} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et l'amplitude des fluctuations est fixée à $\alpha = 0.5$. La figure 2.27 illustre l'évolution de la vitesse de solidification normalisée V_I/\overline{V}_I en fonction de la fraction solidifiée. On voit alors que les oscillations sont périodiques mais pas sinusoïdales. En effet, lors de la première demi-période V_I/\overline{V}_I est supérieur à 1 donc la hauteur solidifiée est plus importante que pour la seconde demi-période où V_I/\overline{V}_I est inférieur à 1. C'est pour cette raison que sur ce tracé les oscillations avec $V_I/\overline{V}_I > 1$ apparaissent plus larges que les oscillations avec $V_I/\overline{V}_I < 1$.

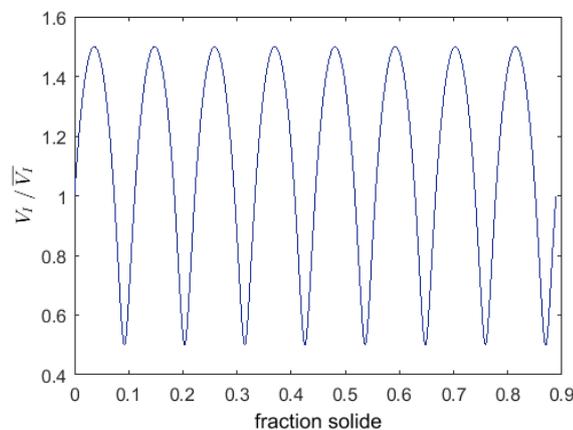


FIGURE 2.27 – Évolution de la vitesse de solidification normalisée au cours de la solidification.

Afin d'analyser les variations de concentration dans le solide suivant la hauteur du lingot, il est utile de définir une concentration normalisée $\langle C_n \rangle$:

$$\langle C_n \rangle = \frac{\langle C_s \rangle - \langle \overline{C_s} \rangle}{\langle \overline{C_s} \rangle}, \quad (2.38)$$

où $\langle \overline{C_s} \rangle$ désigne la concentration moyenne dans le solide obtenue pour une vitesse de solidification constante. Dans cette partie on s'intéresse essentiellement aux ségrégations longitudinales, c'est pourquoi on travaille avec des concentrations moyennées suivant la largeur. La figure 2.28 donne l'évolution de la concentration normalisée en fonction de la fraction solidifiée. On remarque que les fluctuations de concentration sont en phase avec les fluctuations de vitesse, ce

qui confirme le régime basse fréquence. On voit également que l'amplitude de ces oscillations n'est pas constante. Pour expliquer ces variations on peut également utiliser le modèle théorique proposé par Garandet [35]. Dans le régime basse fréquence, ce modèle donne la relation suivante pour les fluctuations de concentration :

$$\langle C_n \rangle = \alpha \sin(\omega_f t) \left[\frac{(1 - k_0) \langle \bar{\Delta} \rangle (1 - \langle \bar{\Delta} \rangle)}{1 - (1 - k_0) \langle \bar{\Delta} \rangle} \right], \quad (2.39)$$

où $\langle \bar{\Delta} \rangle$ représente le paramètre convecto-diffusif dans le cas d'une vitesse de solidification constante. Or, nous avons vu dans le paragraphe 2.3.3.1 que les instationnarités du champ de vitesse induisent une variation de ce paramètre durant la solidification. C'est ce phénomène qui est responsable des variations d'amplitude observées sur les oscillations de $\langle C_n \rangle$. Si on considère la valeur moyenne de $\langle \bar{\Delta} \rangle \approx 0.052$ (équivalent à $\langle \bar{\delta} \rangle \approx 52 \mu\text{m}$ avec notre choix de paramètres), la relation (2.39) nous permet d'estimer l'amplitude moyenne des oscillations de $\langle C_n \rangle$:

$$|\langle C_n \rangle| = 2\alpha \frac{(1 - k_0) \langle \bar{\Delta} \rangle (1 - \langle \bar{\Delta} \rangle)}{1 - (1 - k_0) \langle \bar{\Delta} \rangle} \approx 0.036, \quad (2.40)$$

ce qui correspond aux amplitudes observées sur la figure 2.28.

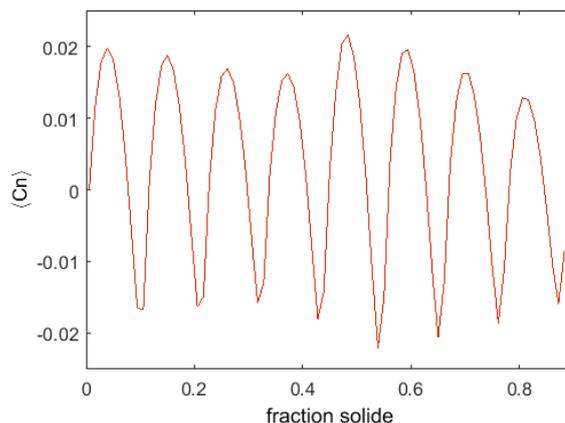


FIGURE 2.28 – Évolution de la concentration normalisée dans la phase solide.

Enfin, la figure 2.29 compare les fluctuations du paramètre convecto-diffusif $\langle \Delta_{th} \rangle$ obtenu avec le modèle analytique aux résultats numériques $\langle \Delta_{num} \rangle$. $\langle \Delta_{th} \rangle$ est calculé à partir des valeurs instantanées de la vitesse de solidification $V_I(t)$ et de la contrainte de frottement $\langle \tau(t) \rangle$ moyennée le long de l'interface solide/liquide. Afin de simplifier la comparaison, $\langle \Delta_{num} \rangle$ et $\langle \Delta_{th} \rangle$ sont normalisés respectivement par $\langle \bar{\Delta}_{num} \rangle$ et $\langle \bar{\Delta}_{th} \rangle$ qui sont les valeurs obtenues avec une vitesse de solidification constante. On remarque tout d'abord que l'amplitude des signaux obtenus est constante, ce qui est en accord avec le modèle théorique [35] pour cette configuration. Par ailleurs, les deux signaux présentent la même amplitude et un très faible déphasage. Cela confirme la capacité du modèle analytique à prédire l'influence de fluctuations à basse fréquence de la vitesse de solidification sur l'épaisseur de la couche limite solutale.

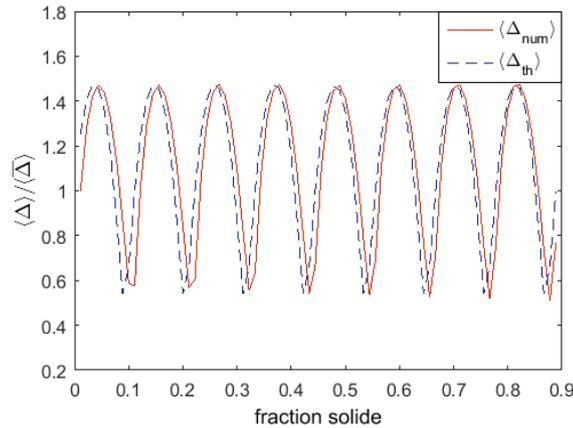


FIGURE 2.29 – Évolution du paramètre convecto-diffusif $\langle \Delta \rangle$ normalisé, au cours de la solidification. Comparaison des résultats analytiques et numériques.

En conclusion, le modèle analytique permet de retranscrire les fluctuations de convection et de vitesse de solidification dans la mesure où celles-ci restent lentes devant le temps caractéristique de diffusion à l'échelle de la couche limite solutale ($Fq = (\omega_f \delta^2)/D \ll 1$). Cette limitation n'est pas restrictive pour l'étude des procédés de solidification dirigée dans la mesure où l'inertie thermique limite la fréquence des perturbations. L'introduction d'un terme de convection forcée peut néanmoins induire des fluctuations rapides de l'écoulement. Ces fluctuations doivent alors être étudiées au cas par cas afin de vérifier la validité de l'hypothèse de régime quasi-permanent.

2.3.4 Calcul des champs de concentration dans le solide

Cette section s'intéresse à l'application pratique du modèle analytique de couche limite solutale pour déterminer les profils de ségrégation dans la phase solide. On se place dans l'hypothèse où une simulation numérique de la convection dans la phase liquide a été réalisée. L'utilisateur dispose donc de l'évolution de la contrainte pariétale en tout point de l'interface solide/liquide au cours de la solidification. La méthode de calcul proposée permet alors d'estimer les profils de ségrégation dans la phase solide. Cette méthodologie a été développée dans le cadre du stage de master de Soufyen Rhouzlane au LMFA [78].

2.3.4.1 Méthode générale

La méthode proposée repose sur le calcul des profils de coefficient de partage effectif à l'interface solide/liquide. Un calcul itératif est réalisé pour déterminer à chaque pas de temps la concentration incorporée dans la phase solide. La concentration rejetée dans la phase liquide est obtenue par conservation de la masse de soluté. À l'initialisation la hauteur de liquide dans la cavité est H_0 et la position du front de solidification est égale à $z_f = 0$. La phase liquide est alors parfaitement homogène avec une concentration C_0 .

Étape 1 : coefficient de partage effectif

La première étape consiste à calculer en chaque point de l'interface le coefficient de partage effectif k_{eff} à partir de la contrainte de frottement τ . Pour cela, le paramètre convecto-diffusif Δ est calculé à l'aide du modèle analytique de couche limite solutale. Le coefficient de partage

effectif est ensuite obtenu par la relation (1.22) :

$$k_{eff} = \frac{k_0}{1 - (1 - k_0)\Delta}.$$

Étape 2 : Concentration incorporée dans le solide

On calcule ensuite la concentration incorporée localement dans la phase solide au pas de temps considéré. Cette concentration C_S^I peut être obtenue par la relation exacte (1.24) ou par la relation simplifiée (1.25) qui tiennent compte du transitoire initial lié à la formation de la couche limite solutale. On notera qu'il est nécessaire de substituer C_L^∞ à C_0 dans les relations (1.24) et (1.25) afin de tenir compte de l'enrichissement de la phase liquide. Dans un souci de simplicité la relation (1.25) a été utilisée et modifiée sous la forme :

$$C_S^I = C_L^\infty k_{eff} \left[1 - (1 - k_0)\Delta \exp\left(-\frac{z_f}{z_T}\right) \right]. \quad (2.41)$$

z_f désigne la position du front de solidification au pas de temps considéré et z_T représente la longueur caractéristique du transitoire initial de ségrégation défini par la relation (1.26). La concentration C_L^∞ est égale à C_0 à l'initialisation puis elle est recalculée à chaque itération en fonction de la masse d'impureté rejetée dans la phase liquide.

Étape 3 : Bilan de masse dans la phase liquide

Lors de la troisième étape un bilan de masse global est appliqué au système afin de déterminer la concentration moyenne d'impuretés restant dans le liquide à la fin du pas de temps. En effet, la masse de solide formée au cours du pas de temps considéré est déterminée par le déplacement de l'interface solide/liquide. La masse d'impureté incorporée dans le solide est alors égale à la masse de solide formée multipliée par la concentration C_S^I calculée à l'étape 2. Par conservation de la masse on peut alors déterminer la masse de liquide restante ainsi que la masse d'impuretés encore présente dans la phase liquide à la fin du pas de temps. On fait ici l'hypothèse que l'écoulement dans la cavité est suffisamment convectif pour que le soluté soit homogénéisé instantanément à l'extérieur de la couche limite solutale. Cette approche évite de résoudre l'équation de la concentration dans le bain, mais trouve ses limites pour les régimes à faible nombre de *Reynolds*.

Étape 4 : Calcul de C_L^∞

Enfin, la quatrième étape consiste à calculer la nouvelle concentration C_L^∞ , qui sera utilisée à l'itération suivante. Pour cela, on dispose de l'équation (1.39) qui exprime la conservation du soluté pour un régime convecto-diffusif dans une configuration 1D. La résolution analytique de l'équation (1.39) permet de définir le profil de concentration dans la phase liquide à l'avant du front. En imposant en conditions aux limites la conservation du soluté au niveau du front (relation (1.14)) et une concentration C_L^∞ lorsque z tend vers l'infini, on obtient [35] :

$$C_L(z) = C_L^\infty \left[1 + \frac{\Delta(1 - k_0)}{1 - \Delta(1 - k_0)} \exp\left(-\frac{z}{\delta}\right) \right]. \quad (2.42)$$

La concentration moyenne dans la phase liquide peut alors être exprimée par l'intégrale de ce profil de concentration sur la hauteur totale de liquide restante à l'instant considéré :

$$C_{L\text{ moyenne}} = \frac{C_L^\infty}{H} \int_0^H \left[1 + \frac{\Delta(1 - k_0)}{1 - \Delta(1 - k_0)} \exp\left(-\frac{z}{\delta}\right) \right] dz. \quad (2.43)$$

Comme la concentration $C_{L\text{ moyenne}}$ a été déterminée par bilan de masse à l'étape 3, la concentration C_L^∞ peut être calculée par la relation :

$$C_L^\infty = \frac{C_{L\text{ moyenne}}}{1 + \frac{\delta}{H} \left[\frac{\Delta(1-k_0)}{1-\Delta(1-k_0)} \left(1 - \exp\left(-\frac{H}{\delta}\right) \right) \right]}. \quad (2.44)$$

Remarque :

On notera que l'approche utilisée pour l'étape 4 n'est pas parfaitement rigoureuse puisque le calcul du profil de concentration dans la phase liquide est fait en régime permanent. On a donc négligé le transitoire de formation de la couche limite. Une approche plus rigoureuse consisterait à utiliser l'expression analytique proposée par Garandet et al. [39]. Cependant, l'intégration analytique de cette équation n'est pas évidente. Une procédure d'intégration numérique pourrait être envisagée, mais l'apport en terme de précision sur le calcul des concentrations dans le solide reste limité, en particulier pour les régimes très convectifs qui nous intéressent particulièrement car le transitoire initial y est très court.

2.3.4.2 Application au cas 2D

La méthode de calcul présentée dans le paragraphe précédent est appliquée à la configuration de cavité entraînée en 2D. L'objectif est de retrouver les champs de concentration présentés dans la section 2.2.3. Les profils de contrainte à l'interface solide/liquide sont donc relevés à chaque pas de temps des simulations transitoires et utilisés pour calculer les profils de concentration incorporés dans le solide. Les calculs analytiques tiennent compte des remarques de la section 2.3.2 sur les ségrégations latérales. Les longueurs caractéristiques des recirculations sont calculées après détection des points caractéristiques. Les pics de Δ associés à des points d'arrêt sont filtrés par une procédure d'interpolation. Cette procédure définie arbitrairement consiste à raccorder à l'aide d'une fonction spline les minimums locaux qui encadrent le pic. La fonction de raccordement est alors bornée par ces minimums. La figure 2.30 illustre la procédure sur un profil de Δ obtenu pour le régime $Re_L = 10^4$. Par ailleurs, en chaque point de l'interface le paramètre B est comparé à la valeur critique B_c donnée par l'équation (2.34). Si B est inférieur à B_c , Δ est calculé par la relation (1.47). Sinon, Δ est estimé par la relation (2.33).

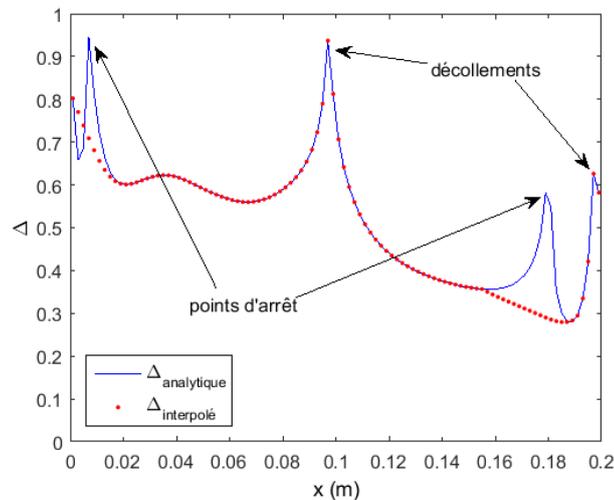


FIGURE 2.30 – Profils du paramètre convecto-diffusif le long de l'interface solide/liquide pour le régime $Re_L = 10^4$ et $z_f = 8$ cm. La courbe bleue représente le résultat analytique et la courbe rouge le même résultat avec filtrage des pics associés à des points d'arrêt.

Les figures 2.31 et 2.32 comparent les champs de concentration obtenus analytiquement et numériquement pour les régimes turbulents $Re_L = 10^7$ et 10^6 . Pour ces deux régimes les variations latérales sont très faibles et les lignes d'iso-concentration sont pratiquement horizontales. On observe néanmoins l'influence d'un point de décollement sur la partie gauche du profil numérique pour le cas $Re_L = 10^6$. Les écarts relatifs entre le calcul numérique et le calcul analytique de ségrégation sont donnés sur les figures 2.31.C et 2.32.C. Cet écart relatif est défini par :

$$Er = \frac{|C_S^{num} - C_S^{th}|}{C_S^{num}}. \quad (2.45)$$

Pour le cas $Re_L = 10^6$ on remarque des zones d'erreurs fortes situées sur la trajectoire du point de décollement, ce qui est prévisible puisque le calcul analytique surestime la concentration en ces points. L'écart relatif moyen sur l'ensemble du champ est de 1% et l'erreur maximale observée localement est de 110%. Pour le cas $Re_L = 10^7$ l'erreur moyenne est de 0.5% et l'erreur maximale est de 52%.

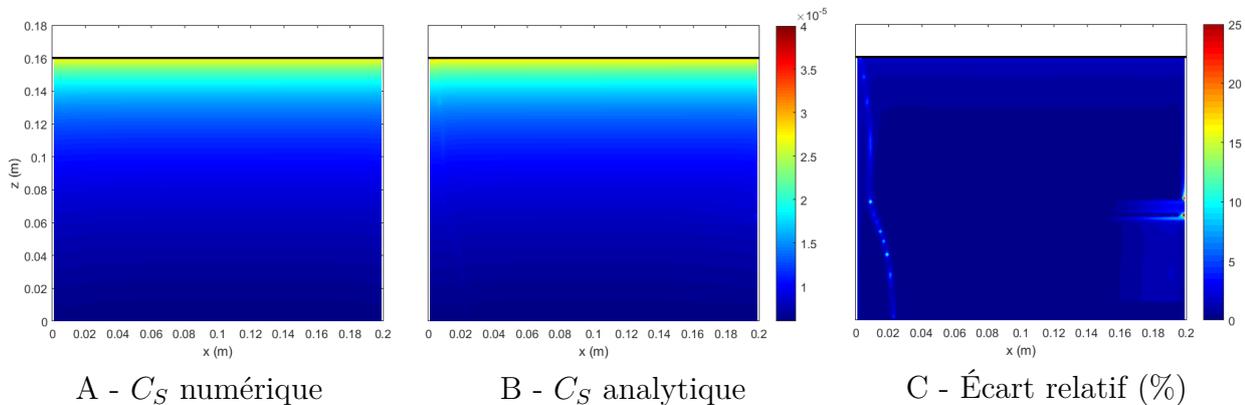


FIGURE 2.31 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^7$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C). Les concentrations sont données en fraction massique, avec la même échelle de couleur pour les résultats numérique et analytique.

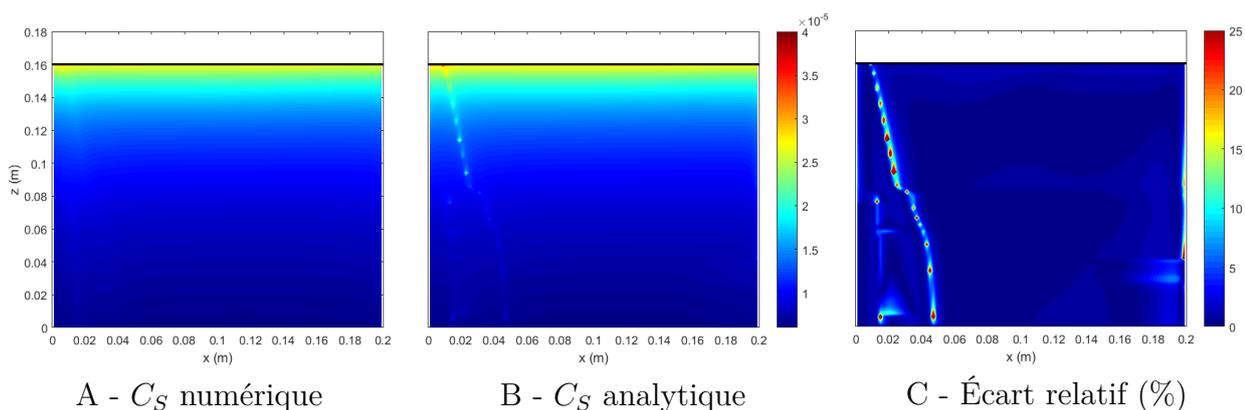


FIGURE 2.32 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^6$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).

Les figures 2.33 et 2.34 donnent les résultats obtenus pour les régimes turbulents $Re_L = 10^5$ et 10^4 . Les ségrégations latérales sont plus marquées que pour les régimes précédents et le calcul analytique reproduit très bien les courbures locales des lignes d'iso-concentration ainsi que l'influence du point de décollement de la recirculation principale. La figure 2.33.C met en

évidence un écart relatif important le long de la trajectoire de ce point de décollement. Cet écart provient du fait que le pic de concentration obtenu par le calcul analytique est situé exactement au niveau du point de décollement alors que ce pic est en fait légèrement décalé sur la gauche sur le résultat numérique. Ce décalage provient du fait que le flux convectif apporté par la recirculation principale et plus important que celui apporté par la recirculation secondaire. Pour le cas $Re_L = 10^5$ l'écart relatif moyen sur l'ensemble du champ est de 3.6% et l'erreur locale maximale est de 140%. La figure 2.34.C montre des zones d'erreurs élevées à proximité des parois latérales pour le cas $Re_L = 10^4$. Ces erreurs sont liées à des difficultés d'interpolation des points d'arrêt lorsqu'ils se rapprochent des parois latérales. L'erreur moyenne sur le champ 2D est de 6.3% et l'erreur maximale observée est de 69%.

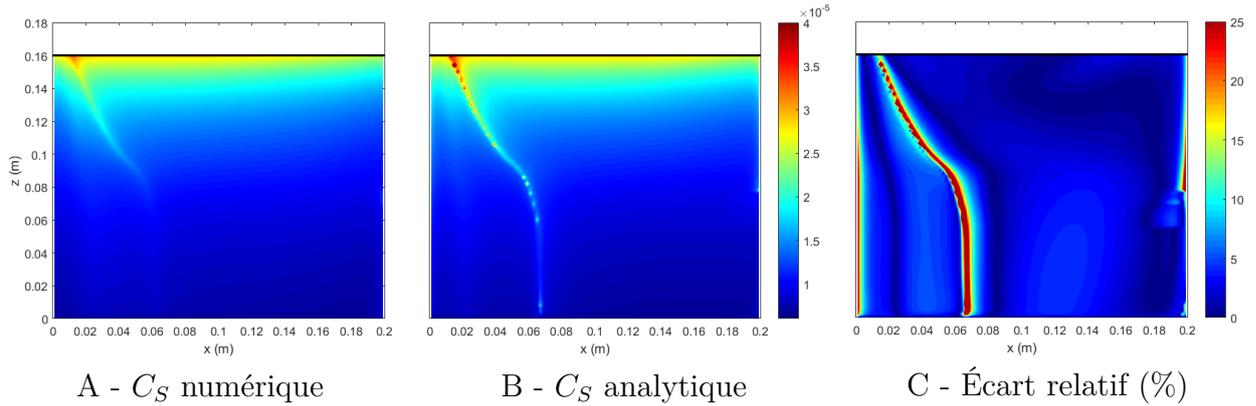


FIGURE 2.33 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^5$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).

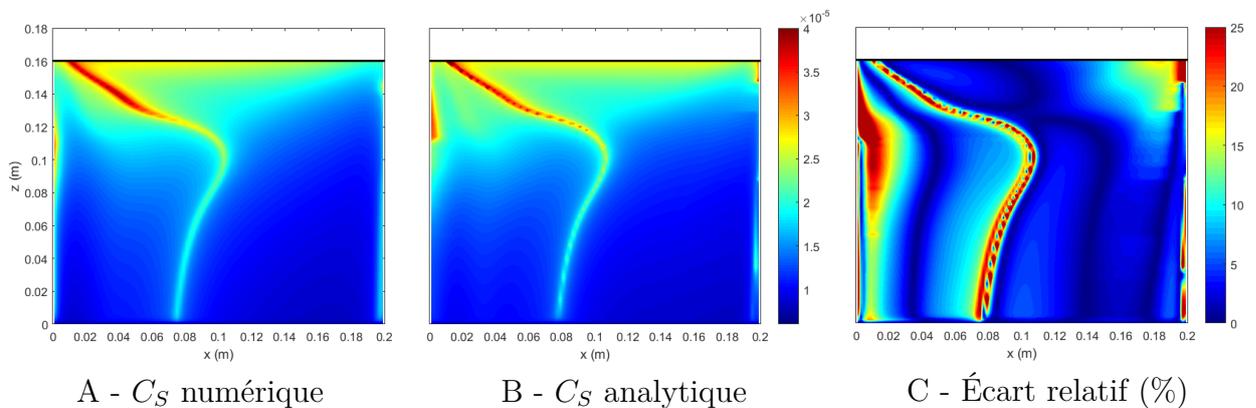


FIGURE 2.34 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^4$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).

La figure 2.35 présente les résultats obtenus pour le régime laminaire $Re_L = 10^3$. Pour ce régime l'écoulement présente des points d'arrêt et des décollements localisés très près des parois latérales (voir figure 2.17). Ces points caractéristiques ne sont pas représentatifs de recirculations secondaires mais uniquement de la déviation de l'écoulement par la paroi latérale. Ils n'ont donc pas été pris en compte lors du traitement des profils de Δ . On peut voir sur les figures 2.35.A et 2.35.B que les champs de concentration analytique et numérique sont en moins bon accord que pour les régimes turbulents étudiés précédemment. Ceci n'est pas étonnant compte-tenu des limites du modèle analytique évoquées dans la section 2.3.2. On remarque notamment que le calcul analytique ne permet pas de retrouver la zone de forte concentration

observée sur le champ numérique au niveau du décollement de la recirculation principale, qui correspond à un paramètre convecto-diffusif localement supérieur à 1. Cependant, certaines variations latérales se retrouvent qualitativement sur le champ analytique. On observe également une discontinuité horizontale des lignes d'iso-concentration en $z = 13.5$ cm. Cette discontinuité est due à une transition brutale d'un régime à deux recirculations vers un régime à une seule recirculation avec la disparition du décollement de la recirculation principale. La longueur caractéristique de recirculation est alors multipliée par deux, ce qui implique une variation significative de Δ . L'erreur relative moyenne est ici de 10% et l'erreur maximale locale est de 71%. Une amélioration est donc envisageable en couplant cette approche avec une vraie résolution de l'équation de la concentration dans le cœur du bain liquide (à la place de l'étape 3).

La figure 2.36 présente les résultats obtenus pour le régime laminaire $Re_L = 10^2$. Le profil de ségrégation numérique présenté sur la figure 2.35.A montre que les variations latérales de concentration sont faibles et que le régime global est proche d'un régime purement diffusif (on notera que les échelles de couleurs ont été modifiées pour mettre en évidence les variations). Dans cette configuration, les profils analytiques de Δ sont uniformes avec des valeurs sensiblement égales à 1. Il n'est donc pas nécessaire d'appliquer la procédure de filtrage des points d'arrêt. Le profil de ségrégation analytique (figure 2.35.B) ne présente pratiquement aucune variation latérale. Le modèle analytique ne permet pas de reproduire les faibles variations observées numériquement. Ici l'erreur moyenne est de 1.6% et l'erreur locale maximale est de 16%.

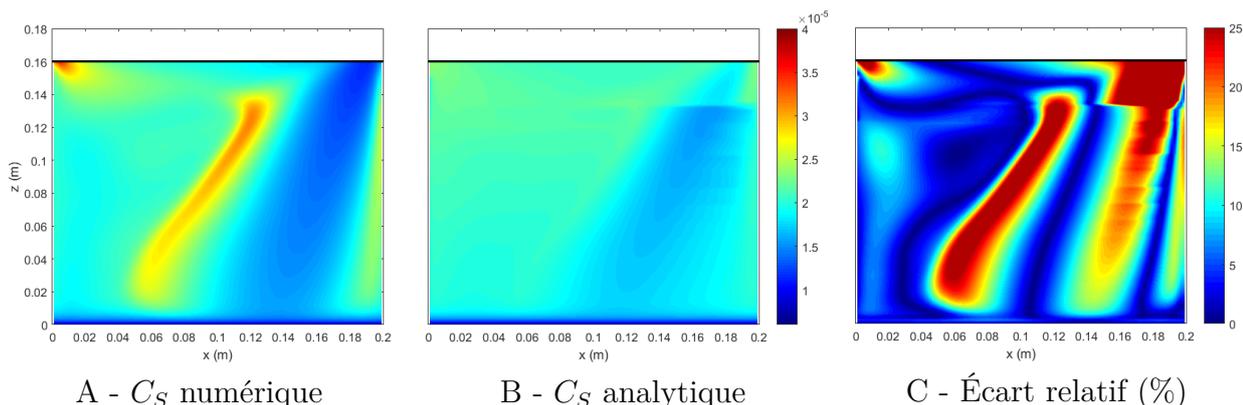


FIGURE 2.35 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^3$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).

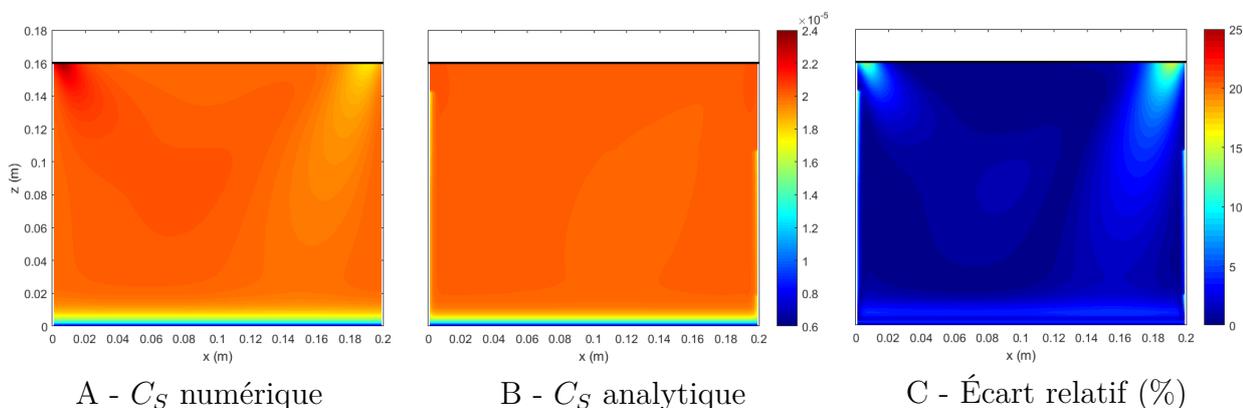


FIGURE 2.36 – Champs de concentration numérique (A) et analytique (B) dans le solide pour le régime $Re_L = 10^2$ et écart relatif du résultat analytique par rapport au résultat numérique (C).

La figure 2.37 compare les profils de ségrégation longitudinale obtenus numériquement et analytiquement. Ces profils illustrent notamment l'aptitude de la relation (2.41) à décrire le transitoire initial de ségrégation. On peut aussi remarquer que même pour les faibles nombres de *Reynolds*, pour lesquels la ségrégation latérale est moins bien calculée, la ségrégation longitudinale est fidèlement reproduite par ce modèle.

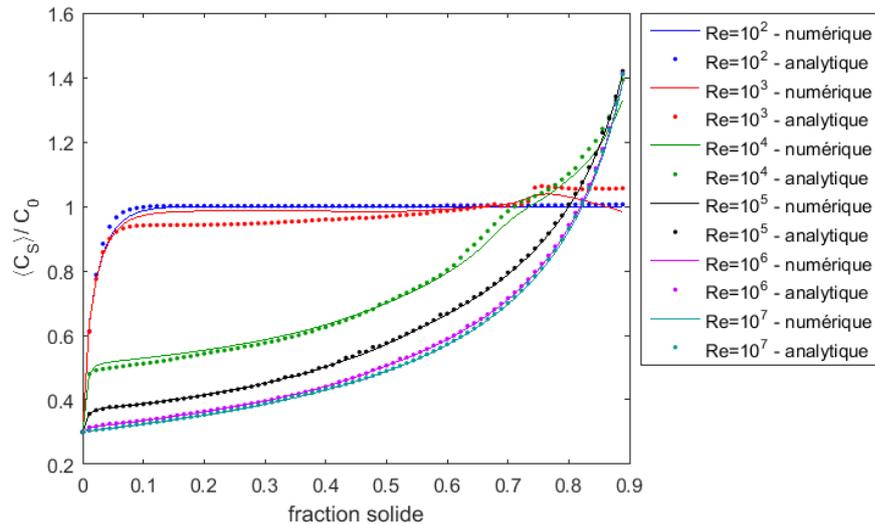


FIGURE 2.37 – Profils de ségrégation longitudinale obtenus numériquement et analytiquement pour différents régimes de convection.

La figure 2.38 représente l'évolution de l'erreur relative moyenne obtenue sur les champs de concentration 2D en fonction du nombre de *Reynolds*. Pour les régimes turbulents cette erreur décroît lorsque le nombre de *Reynolds* augmente. En revanche, pour les régimes laminaires l'erreur augmente avec le nombre de *Reynolds*, à mesure que l'on s'écarte d'un régime diffusif pur et que les ségrégations latérales deviennent importantes. Les différentes courbes mettent en évidence l'apport de chaque amélioration successive du modèle analytique par rapport au modèle initial de Garandet et al. [41]. La prise en compte de plusieurs longueurs caractéristiques améliore significativement les résultats pour les régimes convecto-diffusifs $Re_L = 10^3$ à 10^7 (courbe 2). Le filtrage des points d'arrêt a une influence faible sur l'erreur moyenne, excepté pour $Re_L = 10^4$ (courbe 3). La prise en compte de la turbulence dans le modèle analytique permet de réduire l'erreur obtenue pour $Re_L = 10^6$ et 10^7 (courbe 4). Les résultats de la courbe 5 sont obtenus en limitant la valeur de Δ au niveau des décollements. En première approche un critère empirique basé sur les résultats numériques a été appliqué. Le paramètre Δ local est alors limité à deux fois la valeur moyenne $\langle \Delta \rangle$ calculée le long de l'interface. Ce critère permet de réduire l'erreur locale associée aux décollements mais a peu d'influence sur l'erreur moyenne. En effet, on peut voir sur la figure 2.38 que la courbe 5 est pratiquement superposée à la courbe 4. Le gain sur l'erreur moyenne est alors inférieur à 1%. Une description formelle des ségrégations latérales [34, 40] pourrait être envisagée pour estimer l'épaisseur de la couche limite solutale aux décollements. Toutefois, les améliorations à attendre de cette description plus précise seraient relativement limitées.

Afin de valider le concept de fonction de paroi solutale, des simulations hydrodynamiques ont été réalisées sans raffinement de l'interface solide/liquide. La maille adjacente à l'interface a alors une hauteur de 2 mm, soit 400 fois plus que pour les simulations précédentes. Pour les régimes turbulents le calcul proche paroi utilise toujours un modèle bi-couches via l'option *Enhanced Wall Treatment*. Le modèle analytique de ségrégation est ensuite appliqué avec les profils de contrainte obtenus numériquement. La courbe 6 présente l'écart relatif moyen entre

ces résultats analytiques et les résultats numériques de ségrégation obtenus avec le maillage fin. On observe que les erreurs sont du même ordre que lorsque les calculs analytiques de ségrégation sont réalisés à partir des simulations d'écoulement avec raffinement à l'interface (courbes 1 à 5). On voit donc que la précision des résultats de ségrégation est plus conditionnée par la pertinence et la précision du modèle utilisé pour décrire les couches limites hydrodynamiques que par le modèle de ségrégation lui-même. Ceci confirme l'intérêt du modèle analytique de couche limite solutale pour simplifier les simulations numériques des procédés de solidification dirigée. À titre d'exemple, la figure 2.39 présente le champ de concentration obtenu pour le régime $Re_L = 10^4$. On remarque que le pic de concentration associé au décollement de la recirculation principale est décalé par rapport au résultat numérique. Il s'agit d'une conséquence du déraffinement du maillage à l'interface. Ce décalage ne remet pas en cause le modèle analytique de ségrégation mais bien la capacité des fonctions de paroi hydrodynamiques à reproduire plus ou moins fidèlement le décollement.

Ces dernières simulations réalisées sur un maillage non raffiné à l'interface solide/liquide montrent bien l'intérêt du modèle analytique développé : il permet de prédire la ségrégation de manière raisonnable, sans résoudre numériquement la couche limite solutale. Nous considérons donc que le principe de ces nouvelles fonctions de paroi est démontré et qu'elles mènent à une modélisation efficace de ce problème.

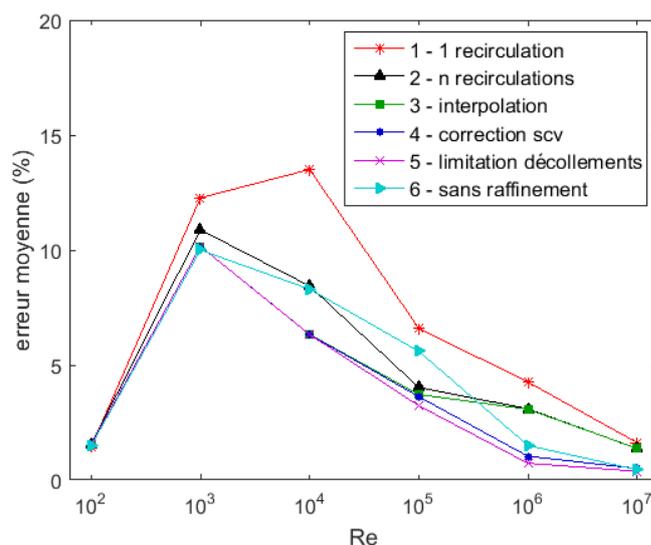


FIGURE 2.38 – Erreur relative moyenne sur les champs de concentration analytiques par rapport aux champs numériques, en fonction du nombre de *Reynolds*. Chaque courbe correspond à une amélioration successive du modèle. Courbe 1 : résultats obtenus à l'aide du modèle initial proposé par Garandet et al. [41]. Courbe 2 : résultats obtenus en considérant plusieurs longueurs caractéristiques L . Courbe 3 : résultats obtenus en ajoutant un filtrage des points d'arrêt. Courbe 4 : résultats obtenus en ajoutant la correction du modèle pour les écoulements turbulents. Courbe 5 : résultats obtenus en ajoutant une limite de Δ aux décollements. Courbe 6 : résultats obtenus à l'aide du modèle analytique le plus abouti (sans limitation aux décollements), après une simulation d'écoulement sans raffinement du maillage au voisinage de l'interface solide/liquide.

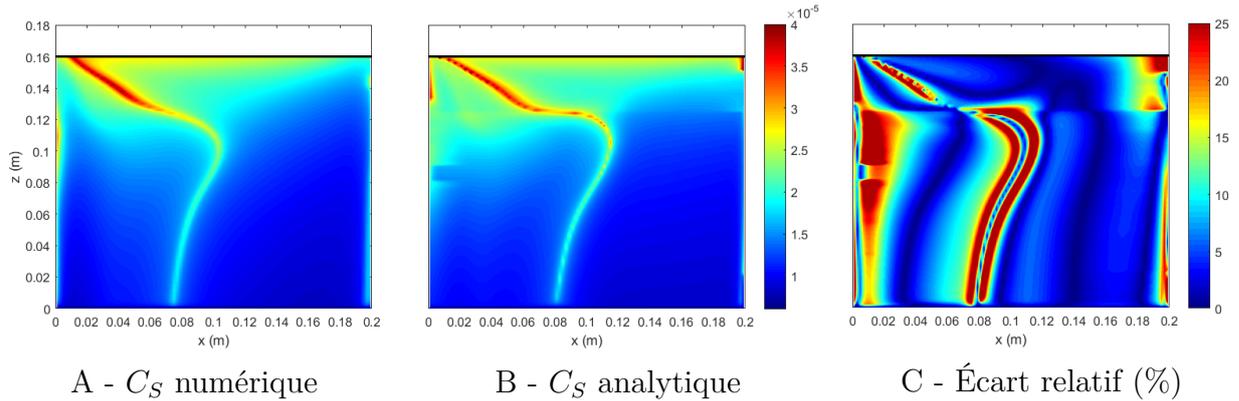


FIGURE 2.39 – (A) Cas de référence obtenu par simulation complète avec un maillage raffiné (identique à la figure 2.34.A). (B) Résultats obtenus à l’aide du modèle analytique à partir d’une simulation de l’écoulement sur un maillage non raffiné. (C) Écart relatif entre (A) et (B).

2.3.5 Ségrégation de différentes impuretés

Le dernier point que l’on souhaite étudier à propos du modèle analytique de ségrégation concerne la corrélation qui existe pour la ségrégation de différentes impuretés. L’objectif est de montrer que ce modèle peut être utilisé pour prédire les paramètres de ségrégation de différentes impuretés à partir de résultats numériques ou expérimentaux concernant une seule impureté. D’un point de vue pratique, l’utilisation de ce modèle pour le traitement de données issues de simulations numériques permet de limiter les calculs en ne résolvant l’équation de transport du soluté que pour une seule espèce. Ceci peut représenter un gain de temps significatif pour des simulations de solidification par des méthodes avancées, relativement coûteuses en temps de calcul (remaillage dynamique, champ de phase...). Cette méthodologie peut également s’appliquer à des résultats expérimentaux afin de réduire le nombre d’analyses nécessaires pour déterminer les profils de ségrégation. Ceci permettrait de simplifier les procédures de qualification des procédés de purification par ségrégation.

2.3.5.1 Principe de calcul

On suppose que le coefficient de partage effectif k_{eff1} d’une impureté 1 a été déterminé pour un procédé de solidification dirigée donné. Il est alors possible de déterminer le coefficient de partage effectif k_{eff2} d’une impureté 2 à l’aide du modèle analytique de couche limite solutale. La relation (1.22) permet de déterminer le paramètre convecto-diffusif Δ_1 à partir de k_{eff1} . Il faut ensuite calculer le paramètre B_1 (défini page 47) relatif à la ségrégation de l’impureté 1. Dans un premier temps on calcule B_1 à partir de l’équation (2.32). Cependant, cette équation n’est valable que si B_1 est inférieur à la valeur critique B_{c1} . Si cette condition n’est pas vérifiée alors B_1 peut être estimé par la relation (2.33). Le paramètre B_2 relatif à la ségrégation de l’impureté 2 est obtenu par la relation :

$$B_2 = B_1 \left(\frac{D_2}{D_1} \right)^2, \quad (2.46)$$

les termes τ , V_I , μ et L restants inchangés pour un processus de solidification dirigée donné. Finalement, le paramètre convecto-diffusif Δ_2 est obtenu par la relation (2.32) si B_2 est inférieur à la valeur critique B_{c2} ou par la relation (2.33) si B_2 est supérieur à B_{c2} .

2.3.5.2 Application aux simulations

Des simulations de ségrégation ont été réalisées avec le modèle de cavité entraînée 2D pour le phosphore, l'aluminium et le fer afin de mettre en pratique la méthode présentée dans le paragraphe précédent. L'écoulement utilisé est turbulent, avec une vitesse d'entraînement $V_E = 0.2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (soit $Re_L = 1.36 \times 10^5$). Ce régime d'écoulement est représentatif du brassage mécanique utilisé pour la purification du silicium (voir chapitre 3). Il permet notamment d'obtenir des profils de contrainte de frottement similaires à ceux obtenus par simulation du brassage en 3D pour une vitesse de rotation de 50 rpm. Nous conservons une vitesse de solidification constante $V_I = 10^{-5} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Par ailleurs, la concentration initiale en impuretés est fixée à une fraction massique de 65 ppm. Les coefficients de partage thermodynamiques k_0 et les diffusivités moléculaires D des impuretés étudiées sont donnés dans le tableau 2.3.

Tableau 2.3 – Propriétés des impuretés (phosphore, aluminium et fer) [37, 56, 69, 86].

	k_0	$D \text{ (m}^2\cdot\text{s}^{-1}\text{)}$
phosphore	3.32×10^{-1}	2.3×10^{-8}
aluminium	2×10^{-3}	6.8×10^{-8}
fer	8×10^{-6}	8.0×10^{-8}

La figure 2.40 présente les profils de concentration normalisée $\langle C_S \rangle / C_0$ en fonction de la fraction solide, pour les trois espèces étudiées. Il est possible d'interpoler ces profils de ségrégation par des lois de *Scheil* modifiées et d'en déduire des coefficients de partage effectifs (interpolation au sens des moindres carrés). Ces coefficients k_{eff}^{fit} sont donnés dans le tableau 2.4. On obtient alors par la relation (1.22) des paramètres convecto-diffusifs Δ_{fit} représentatifs du régime de ségrégation pour la totalité du lingot (valeur moyenne caractéristique du procédé). Les valeurs obtenues pour Δ_{fit} nous montrent que le régime de convection choisi permet une ségrégation efficace, avec un écart compris entre 5% et 11% par rapport à la loi de *Scheil* théorique (où $\Delta = 0$).

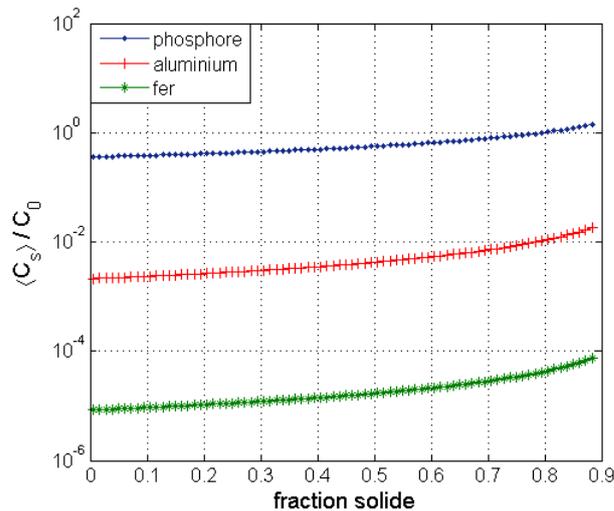


FIGURE 2.40 – Profils de concentration normalisée $\langle C_S \rangle / C_0$ pour le phosphore, l'aluminium et le fer.

Tableau 2.4 – Coefficients de partage effectifs et paramètres convecto-diffusif interpolés.

	k_{eff}^{fit}	Δ_{fit}
phosphore	3.5782×10^{-1}	1.0802×10^{-1}
aluminium	2.1221×10^{-3}	5.7658×10^{-2}
fer	8.4479×10^{-6}	5.3023×10^{-2}

En appliquant la démarche présentée dans le paragraphe précédent à ces résultats, il est possible de prédire les profils de ségrégation du fer et de l'aluminium en utilisant uniquement les résultats obtenus avec la simulation de ségrégation du phosphore. Le tableau 2.5 compare les coefficients de partage effectifs k_{eff}^{fit} obtenus par interpolation avec ceux issus du calcul analytique à partir du k_{eff}^{fit} du phosphore. On constate que la méthode de calcul analytique permet d'estimer le coefficient de partage effectif moyen de l'aluminium et du fer (notés k_{eff}^{th}) de manière remarquablement précise puisque l'écart relatif de l'ordre de 1% par rapport aux valeurs numériques interpolées.

Tableau 2.5 – Coefficients de partage effectifs déterminés numériquement et analytiquement.

	k_{eff}^{fit}	k_{eff}^{th}	écart relatif (%)
aluminium	2.1221×10^{-3}	2.1004×10^{-3}	1.0%
fer	8.4479×10^{-6}	8.3543×10^{-6}	1.1%

Les coefficients de partage effectifs présentés dans le tableau 2.5 nous renseignent sur le régime de ségrégation global, avec une information moyennée en espace (moyenne suivant la largeur de la cavité) et en temps (valeur unique sur toute la hauteur du lingot). La corrélation proposée peut également être appliquée à des données plus locales, tel que des profils de paramètre convecto-diffusif le long de l'interface. La figure 2.41 compare les profils numériques de Δ pour l'aluminium et le fer aux profils calculés analytiquement à partir des valeurs de Δ pour le phosphore. Ces valeurs sont prises le long de l'interface solide/liquide, à une fraction solide de 44%. Les résultats montrent que le calcul analytique à partir du profil de couche limite solutale de phosphore permet de prédire les profils de couches limites solutales d'aluminium et de fer avec une erreur relative inférieure à 20%.

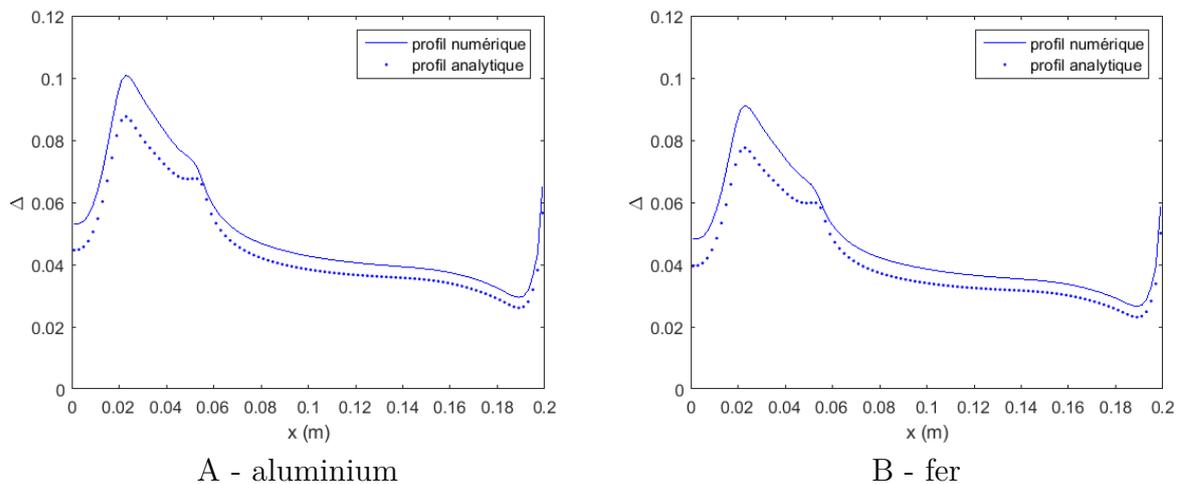


FIGURE 2.41 – Profils de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface pour l'aluminium et le fer ($f_S = 44\%$).

Nous avons vu dans ce paragraphe que le modèle analytique étudié permet de transposer des résultats de ségrégation d'une impureté donnée à d'autres impuretés. Cette démarche peut être appliquée à des valeurs moyennes afin de caractériser l'efficacité d'un procédé de purification, ou à des valeurs locales pour mettre en évidence des variations du régime de ségrégation ou des ségrégations latérales. Il faut toutefois remarquer que la précision de cette méthode dépend directement de la précision avec laquelle les coefficients de diffusion de chaque impureté peuvent être estimés (voir relation (2.46)). La mesure de ces coefficients est délicate et les incertitudes associées sont souvent significatives [37].

2.4 Conclusion

Une étude sur les capacités et les limitations d'un modèle analytique de couche limite solutale a été réalisée. L'objectif est de proposer des fonctions de paroi solutales afin de simplifier les simulations de solidification dirigée. Pour cela, nous sommes partis du modèle analytique proposé par Garandet et al. [41]. Un certain nombre de limitations ont été constatées et le modèle a été amélioré sur plusieurs points. Tout d'abord, les fluctuations turbulentes à l'échelle de la couche limite solutale ont été prises en compte dans l'approche analytique. Cette correction est nécessaire pour les régimes turbulents pleinement développés puisque l'épaisseur de la sous-couche visqueuse devient du même ordre que celle de la couche limite solutale. Ensuite, la description des ségrégations latérales a été optimisée en analysant la structure de l'écoulement et en définissant plusieurs longueurs caractéristiques pour les différentes recirculations. Enfin, la détection et le traitement des décollements et des points d'arrêt par des procédures spécifiques permet de corriger localement le modèle qui, pour rappel, fait l'hypothèse d'un écoulement de couche limite parallèle à l'interface solide/liquide.

Afin de valider notre approche analytique, un modèle prototype de ségrégation dans une cavité entraînée en régime transitoire a été développé. Ce modèle numérique permet d'étudier l'influence d'un régime de convection donné sur la ségrégation. Cette étude montre que le modèle analytique permet d'obtenir une bonne estimation des phénomènes de ségrégation axiale et latérale. Les fluctuations de ségrégation liées à des variations de la vitesse de solidification ou de la convection peuvent également être retranscrites par l'approche analytique. L'hypothèse de quasi-stationnarité restreint cependant l'application du modèle à des fluctuations basse fréquence. Ce point n'est pas particulièrement limitant pour l'application qui nous concerne puisque l'inertie thermique du procédé amortit les perturbations haute fréquence. Une procédure de calcul a été mise en œuvre pour reconstruire les champs de concentration dans la phase solide à partir des résultats d'une simulation hydrodynamique et du modèle analytique de couche limite solutale. Les champs de concentration 2D obtenus avec cette procédure présentent un bon accord qualitatif et quantitatif avec les résultats numériques de ségrégation, ce qui valide le concept de fonction de paroi solutale.

Le modèle analytique a également été utilisé pour établir une corrélation permettant d'estimer la ségrégation de différentes espèces chimiques à partir des paramètres de ségrégation d'une espèce donnée. D'un point de vue expérimental, cette corrélation peut permettre de réduire le nombre d'analyses chimiques nécessaires pour qualifier un procédé de purification par solidification dirigée. Elle peut également être appliquée à des résultats de simulations de la ségrégation par des méthodes avancées (remaillage dynamique par exemple) afin de réduire le nombre d'équations de transport à résoudre.

L'approche développée conserve cependant plusieurs limitations. Tout d'abord, l'hypothèse d'une phase liquide homogène en concentration à l'extérieur de la couche limite solutale n'est pas valable pour les écoulements laminaires et à proximité des décollements. Ces cas particuliers nécessiteraient de coupler les fonctions de paroi solutales à une résolution de l'équation de la concentration dans le bain. D'autre part, l'application à une configuration industrielle en 3D n'est pas immédiate. Le choix de fonctions de paroi hydrodynamiques adaptées aux écoulements étudiés constitue un enjeu important puisque ces fonctions déterminent la contrainte de frottement à l'interface solide/liquide. On peut également citer la difficulté de définir des longueurs caractéristiques de recirculations à partir d'un champ de contrainte 2D. On propose dans cette étude des outils et des méthodes efficaces qui, dans un contexte de simulation multi-échelles et multi-physiques, peuvent grandement améliorer les modèles à moindre coût numérique. Les perspectives évoquées doivent alors être approfondies afin de généraliser leur application.

Chapitre 3

Étude de la ségrégation sous brassage mécanique

Ce chapitre traite de l'étude expérimentale et numérique qui a été réalisée pour caractériser l'influence d'un système de brassage mécanique sur la ségrégation des impuretés. Comme nous l'avons évoqué précédemment, le système de brassage a pour fonction de forcer la convection dans le silicium liquide afin de réduire au maximum l'épaisseur de la couche limite solutale. Cela permet d'envisager une accélération du procédé de solidification, tout en favorisant la ségrégation des impuretés vers le haut du lingot. Dans la section 1.2.2 un agitateur mécanique développé spécialement pour la purification du silicium au LMPS a été présenté. La géométrie de cet agitateur a été choisie pour générer un écoulement axial et assurer l'homogénéisation de la phase liquide, tout en répondant aux contraintes d'usinage associées à l'utilisation du graphite. Cette étude a pour objectif de caractériser l'écoulement généré par cet agitateur et de quantifier son influence sur le phénomène de ségrégation. La démarche expérimentale et numérique utilisée est applicable à toute géométrie d'agitateur et peut être généralisée à d'autres techniques de brassage, telles que le brassage par ultrasons ou le brassage électromagnétique (à condition d'utiliser, pour ce dernier, un métal liquide et une technique de mesure adaptée pour la caractérisation expérimentale de l'écoulement). La section 3.1 présente une caractérisation expérimentale du champ de vitesse généré par l'agitateur. La section 3.2 présente l'étude numérique réalisée pour simuler la ségrégation des impuretés dans un régime de convection forcée par brassage mécanique.

3.1 Caractérisation expérimentale du champ de vitesse

Un des objectifs de cette thèse est de caractériser expérimentalement l'écoulement généré par l'agitateur utilisé pour le brassage du silicium. Pour cela, des mesures de champ de vitesse ont été réalisées par la technique PIV. Le principe et les avantages de cette technique sont détaillés dans la section 1.3. Étant donné que cette technique de mesure ne peut pas être utilisée *insitu* pour l'application qui nous concerne, les mesures sont faites sur un modèle expérimental utilisant de l'eau, en similitude hydrodynamique avec une configuration pré-industrielle de solidification dirigée (échelle G2). Ces mesures de champ de vitesse constituent également des données de validation pour le modèle numérique de brassage présenté dans la section 3.2. Cette étude expérimentale a été réalisée en collaboration avec le laboratoire LIEFT¹ (CEA/DEN à Saclay), notamment dans le cadre du stage de master de Massimo Borrelli [8], encadré par Danièle Abdo et Benjamin Cariteau. Nous présenterons tout d'abord les critères de similitudes appliqués sur le dispositif expérimental, permettant d'établir un lien quantitatif entre le dispositif expérimental en eau et la véritable situation de brassage dans le silicium (partie 3.1.1). Puis nous détaillerons la procédure expérimentale mise en place pour caractériser l'écoulement (partie 3.1.2). Enfin, nous présenterons une synthèse des résultats expérimentaux obtenus (partie 3.1.3).

3.1.1 Analyse dimensionnelle

3.1.1.1 Paramètres du problème

On s'intéresse ici à l'analyse dimensionnelle du problème de brassage mécanique du silicium dans un creuset de dimension G2. La dimension G2 correspond à la taille du four de purification du LMPS qui est équipé d'un système de brassage. Un creuset G2 a une section carrée de 380 mm de côté et la charge standard est de 60 kg, ce qui correspond à une hauteur de silicium liquide d'environ 16 cm. La figure 3.1 définit les variables du problème hydrodynamique.

1. Laboratoire d'Instrumentation et d'Expérimentation en Fluidique et Thermohydraulique, CEA/DEN.

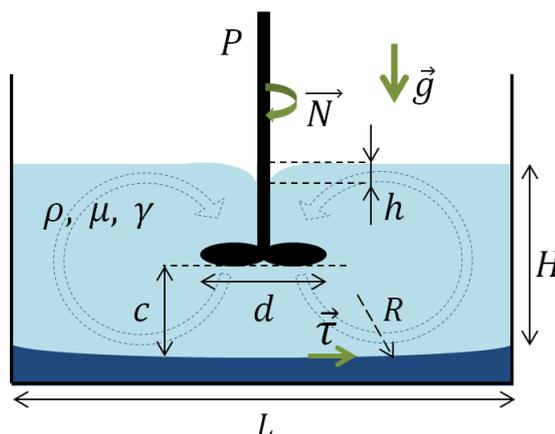


FIGURE 3.1 – Schéma du problème hydrodynamique du brassage lors de la solidification dirigée du silicium.

Propriétés du fluide :

- ρ : masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
- μ : viscosité dynamique ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)
- γ : tension superficielle ($\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$)

Variables hydrodynamiques :

- N : vitesse de rotation de l'agitateur ($\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$)
- g : pesanteur ($\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$)
- h : déformation de la surface libre (m)
- P : puissance dissipée par l'agitateur (W)
- τ : contrainte de frottement à l'interface solide/liquide (Pa)

Paramètres géométriques :

- L : largeur du creuset (m)
- H : hauteur de liquide (m)
- d : diamètre de l'agitateur (m)
- c : distance entre l'agitateur et l'interface solide/liquide (m)
- R : rayon de courbure du front de solidification (m)

3.1.1.2 Nombres adimensionnels

Afin de réaliser l'analyse dimensionnelle de ce problème il faut définir les échelles caractéristiques de longueur, de temps et de masse afin d'adimensionner les différentes variables. Ici on choisit le diamètre de l'agitateur d comme échelle de longueur, l'inverse de la fréquence de rotation $1/N$ comme échelle de temps et le produit ρd^3 comme échelle de masse. Ces grandeurs sont utilisées pour adimensionner les variables et faire apparaître les nombres sans dimension caractéristiques du problème. Le tableau 3.1 donne les nombres sans dimension qui caractérisent le problème hydrodynamique.

Tableau 3.1 – Nombres adimensionnels caractéristiques du système de brassage.

variable	unité usuelle	unité fondamentale	groupe adimensionnel	nombre adimensionnel
μ	Pa·s	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$	$\mu/(\rho d^2 N)$	$Re = (Nd^2)/\nu$
γ	$\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}$	$\gamma/(\rho d^3 N^2)$	$We = (\rho N^2 d^3)/\gamma$
g	$\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$	$g/(dN^2)$	$Fr = (N^2 d)/g$
P	W	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-3}$	$P/(\rho d^5 N^3)$	$Np = P/(\rho N^3 d^5)$
τ	Pa	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-2}$	$\tau/(\rho d^2 N^2)$	$C_f = \tau/[\rho(Nd)^2/2]$

L'analyse dimensionnelle met en avant les nombres sans dimension qui interviennent classiquement dans les problèmes de brassage : le nombre de *Reynolds*, le nombre de *Froude*, le nombre de *Weber* et le nombre de puissance (voir partie 1.2). La prise en compte de la contrainte de frottement fait apparaître le coefficient de frottement C_f . On a choisi de faire apparaître cette variable de manière explicite car il s'agit de la grandeur utilisée pour quantifier la convection dans le modèle analytique de ségrégation détaillé dans la section 1.1.2. Pour une vitesse de croissance et une impureté données, c'est cette variable qui fait le lien entre le problème hydrodynamique et le problème de ségrégation.

3.1.1.3 Critères de similitudes

Pour cette étude on souhaite réaliser des mesures de champ de vitesse sur un dispositif en eau. Les propriétés physiques de l'eau étant différentes de celles du silicium liquide, il faut s'assurer que les écoulements mesurés soient représentatifs de ceux qui ont lieu dans le silicium. Pour cela il faut que le dispositif expérimental soit en similitude avec le système réel. L'analyse dimensionnelle a permis de définir les nombres sans dimension qui caractérisent le système. Les similitudes géométriques sont assurées par le respect des proportions (mise à l'échelle du système expérimental). On suppose que les forces de tension superficielle influencent peu l'écoulement donc on ne cherchera pas conserver le nombre de *Weber*. Dans la suite on désignera ψ_{si} les variables qui caractérisent le système de brassage du silicium et ψ_{eau} les variables qui interviennent dans le dispositif expérimental en eau. La conservation du nombre de *Reynolds* entre ces deux configurations donne la relation suivante :

$$Re = \frac{N_{si} d_{si}^2}{\nu_{si}} = \frac{N_{eau} d_{eau}^2}{\nu_{eau}}. \quad (3.1)$$

De la même manière, la conservation du nombre de *Froude* donne la relation :

$$Fr = \frac{N_{si}^2 d_{si}}{g} = \frac{N_{eau}^2 d_{eau}}{g}. \quad (3.2)$$

On remarque que les équations (3.1) et (3.2) donnent chacune une relation entre le rapport des vitesses N_{eau}/N_{si} et le facteur d'échelle d_{eau}/d_{si} . On comprend alors que si l'on souhaite conserver ces deux nombres adimensionnels, l'échelle de notre système et la vitesse de rotation de l'agitateur seront imposées puisque la pesanteur et les viscosités des fluides sont des constantes. En revanche, si on choisit de s'affranchir de l'une de ces deux similitudes, il est possible d'adapter la vitesse de rotation N_{eau} en fonction de l'échelle qui aura été choisie pour le dispositif modèle en eau.

Il reste alors à considérer le nombre de puissance Np et le coefficient de frottement C_f . On a vu dans la partie 1.2 que le nombre de puissance d'un agitateur est déterminé par les nombres de *Reynolds* et de *Froude*. Le respect des similitudes de *Reynolds* et de *Froude* implique

donc la conservation du nombre de puissance entre le système de brassage du silicium et notre dispositif expérimental en eau. Concernant le coefficient de frottement C_f , il est également possible de définir les conditions de similitude de ce paramètre. Si on considère le cas classique du frottement sur une plaque plane, la solution de *Blasius* permet d'exprimer le coefficient de frottement local uniquement en fonction du nombre de *Reynolds* local dans le cas d'une couche limite laminaire [4] :

$$C_{f_x} = 0.664 Re_x^{-1/2}. \quad (3.3)$$

Des corrélations similaires ont également été proposées pour les couches limites turbulentes [4, 7]. On peut alors raisonnablement considérer que le respect de la similitude de *Reynolds* entraîne la conservation du coefficient de frottement.

Les conditions de similitudes à respecter afin d'assurer la conservation des nombres de *Reynolds* et *Froude* ainsi que du nombre de puissance et du coefficient de frottement sont donc données par les relations (3.1) et (3.2). Ces conditions définissent, pour un fluide donné, les dimensions de notre système expérimental et la vitesse de rotation de l'agitateur. Le tableau 3.2 donne les propriétés de l'eau à 20 °C et du silicium liquide à sa température de fusion (1414 °C).

Tableau 3.2 – Propriétés physiques de l'eau à 20 °C et du silicium liquide à 1414 °C.

	eau (à 20 °C)	silicium liquide
ρ (kg·m ⁻³)	1000	2550
μ (Pa·s)	10 ⁻³	7.5 × 10 ⁻⁴
ν (m ² ·s ⁻¹)	10 ⁻⁶	2.94 × 10 ⁻⁷
γ (N·m ⁻¹)	7.28 × 10 ⁻²	7.31 × 10 ⁻¹

Connaissant ces paramètres et en utilisant les relations (3.1) et (3.2), il est possible de calculer le facteur d'échelle d_{eau}/d_{si} :

$$\frac{d_{eau}}{d_{si}} = \left(\frac{\nu_{eau}}{\nu_{si}} \right)^{2/3} = 2.26, \quad (3.4)$$

ainsi que le rapport des vitesses de rotation N_{eau}/N_{si} :

$$\frac{N_{eau}}{N_{si}} = \left(\frac{\nu_{si}}{\nu_{eau}} \right)^{1/3} = 0.66, \quad (3.5)$$

qu'il faudrait utiliser afin de respecter à la fois les similitudes de *Reynolds* et de *Froude*. L'équation (3.4) nous indique que pour respecter simultanément ces deux similitudes, il faut utiliser un dispositif expérimental environ deux fois plus grand que le système réel. Cette contrainte est problématique pour des raisons d'encombrement et de mise en place de la mesure PIV. Pour ces deux raisons, il a été choisi de s'affranchir de la similitude de *Froude*. Ce paramètre est vraisemblablement moins influent que le nombre de *Reynolds* dans la mesure où les vitesses de rotation restent limitées et que la forme carrée de la cuve limite la mise en rotation de l'écoulement et la formation d'un "vortex" autour de l'arbre de rotation. On peut ainsi travailler avec un système à l'échelle 1 en adaptant la vitesse de rotation du brasseur. En utilisant la relation (3.1) et imposant $d_{eau} = d_{si}$ on obtient :

$$N_{eau} = N_{si} \left(\frac{\nu_{eau}}{\nu_{si}} \right) = 3.4 * N_{si}. \quad (3.6)$$

Ainsi, la vitesse de rotation dans le système en eau doit être 3.4 fois plus élevée que celle appliquée pour le brassage du silicium. Avec cette configuration le nombre de *Reynolds* et le

coefficient de frottement sont conservés. En revanche, le nombre de *Froude* dans l'eau Fr_{eau} est différent de celui obtenu dans le silicium liquide Fr_{si} . En utilisant l'équation (3.6) on montre que :

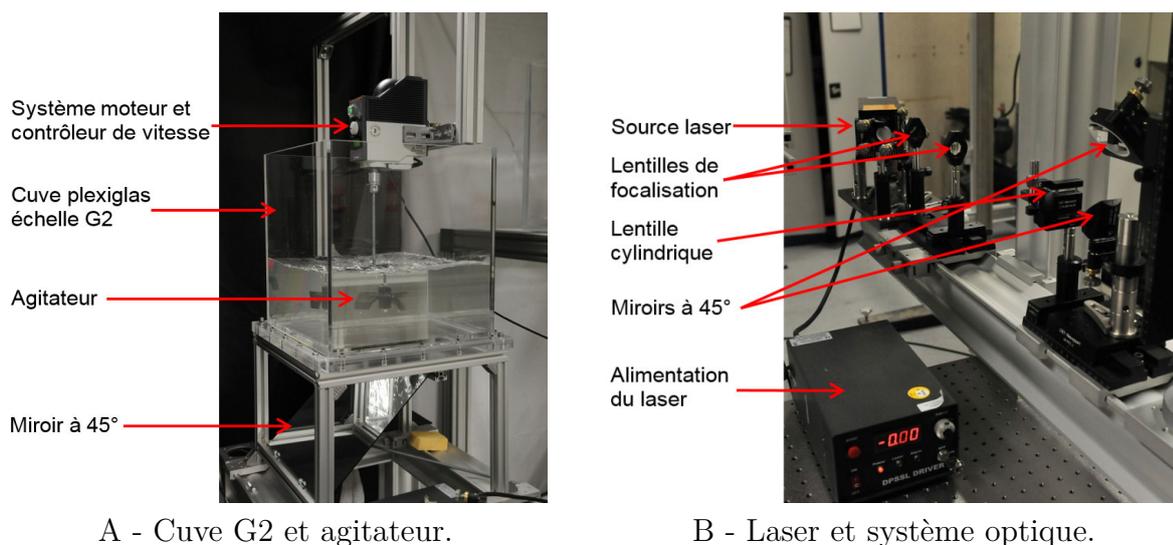
$$Fr_{eau} = Fr_{si} \left(\frac{\nu_{eau}}{\nu_{si}} \right)^2 = 11.6 * Fr_{si}. \quad (3.7)$$

Le nombre de *Froude* du modèle en eau est supérieur d'un ordre de grandeur à celui du système réel. La déformation de la surface libre est donc plus importante sur le système expérimental que sur le système réel. En revanche, si il n'y a pas formation d'un "vortex" autour de l'arbre de rotation, le nombre de puissance de l'agitateur n'est fonction que du nombre de *Reynolds* [79]. Le nombre de puissance devrait donc être du même ordre de grandeur sur le dispositif expérimental que sur le système réel.

3.1.2 Procédure expérimentale

3.1.2.1 Description du système expérimental

Comme expliqué dans la section 3.1.1, nous avons choisi de travailler sur un dispositif modèle de brassage à l'échelle 1. Le dispositif expérimental est constitué d'une cuve en plexiglas aux dimensions d'un creuset G2 (largeur 38 cm) et d'un agitateur mécanique en plastique, de géométrie identique à celle définie dans la section 1.2.2 (figure 3.2.A). Le système d'éclairage est constitué d'un laser continu (longueur d'onde 532 nm, puissance nominale 8 W) et d'un dispositif optique (figure 3.2.B). Ce dispositif comprend deux lentilles permettant de régler le diamètre du faisceau, ainsi qu'une lentille cylindrique permettant de transformer le faisceau en une nappe. Cette nappe laser peut être facilement translatée afin d'éclairer différentes zones de l'écoulement. Son épaisseur est d'environ 1 mm. L'acquisition se fait à l'aide d'une caméra rapide de résolution 1024×1024 pixels et de fréquence d'acquisition maximale 2000 fps (caméra *Photron Fastcam SA3*). Les traceurs utilisés pour la mesure PIV sont des particules de verre de diamètre 10 μm recouvertes d'argent (particules *Dantec S-HGS-10*).



A - Cuve G2 et agitateur.

B - Laser et système optique.

FIGURE 3.2 – Photos du dispositif expérimental de brassage et du système d'éclairage laser.

3.1.2.2 Définition du plan d'essai

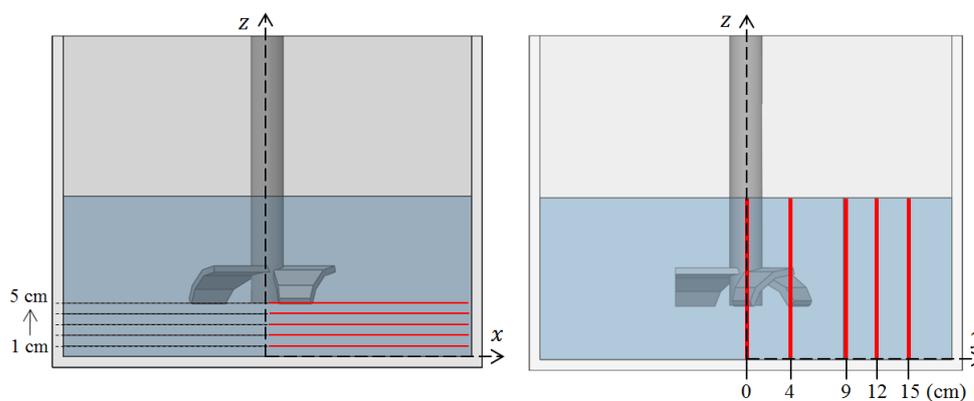
Les configurations de brassage étudiées expérimentalement ont été choisies pour correspondre aux configurations les plus représentatives du procédé utilisé au LMPS. Les trois paramètres principaux qui permettent de décrire la configuration de brassage sont : la vitesse de rotation N , la hauteur de liquide H et la hauteur de l'agitateur par rapport au front de solidification c (figure 3.1). Lors de la solidification, la progression de l'interface solide/liquide entraîne une réduction progressive de la hauteur de liquide. La hauteur maximale de silicium liquide dans un creuset G2 est de 16 cm pour une charge de 60 kg et de 24 cm pour une charge de 90 kg. Afin de suivre le déplacement du front, l'agitateur est translaté vers le haut à une vitesse constante correspondant à la vitesse moyenne de solidification. Ainsi, la distance entre l'agitateur et le front est maintenue à peu près constante et égale à 5 cm. Enfin, la vitesse de rotation appliquée pour le brassage du silicium est comprise entre 10 et 50 rpm. Les vitesses sont limitées afin de garantir une faible déformation de la surface libre. Cette contrainte est nécessaire pour éviter l'incorporation dans la phase liquide d'une couche polluée présente à la surface du bain, appelée couche de laitier. Il faut également s'assurer qu'il ne puisse pas y avoir de projection de silicium en fusion dans l'enceinte du four.

Le plan d'essai défini par le tableau 3.3 est issu de ces paramètres de procédé. Pour chaque configuration la distance entre l'agitateur et le fond de la cuve est fixée à $c = 5$ cm. Pour des raisons pratiques et afin de limiter le nombre de paramètres de l'étude, le fond de la cuve est parfaitement plan, ce qui revient à négliger la courbure de l'interface solide/liquide. Lors des procédés de solidification dirigée la courbure dépend de la conception du four et de la recette thermique utilisée. Il n'est pas possible de définir une forme de front unique représentative des procédés existants. De plus, la flèche reste en général inférieure ou de l'ordre de 10%. Les vitesses de rotation dans l'eau sont de 35, 70 et 170 rpm. Compte tenu de la similitude de *Reynolds* (relation (3.6)), les vitesses équivalentes dans le silicium sont de 10, 20 et 50 rpm. Pour les configurations 1, 2 et 3 (tableau 3.3) la hauteur de liquide est fixée à $H = 15$ cm. Ces trois premières configurations ont pour objectif d'étudier l'influence de la vitesse de rotation sur le champ de vitesse. Afin de caractériser l'ensemble de l'écoulement les mesures ont été réalisées dans différents plans horizontaux et verticaux définis sur la figure 3.3. Pour les plans horizontaux un miroir placé à 45° sous la cuve est utilisé pour réaliser les acquisitions (figure 3.2.A). Ainsi l'axe de la caméra est identique dans les deux configurations. Ces mesures apportent des informations sur les trois composantes du champ de vitesse. Compte tenu de la symétrie du système, la zone de mesure est limitée à un quart de la cuve.

Pour les configurations 4, 5 et 6 la hauteur de liquide est fixée à $H = 20$ cm et pour les configurations 7, 8 et 9 elle est fixée à $H = 10$ cm. Ces configurations permettent d'étudier l'influence du rapport d'aspect H/L pour une vitesse de rotation donnée. La limite de 10 cm a été choisie en tenant compte de la distance de 5 cm entre l'agitateur et le fond et de la hauteur des pales qui est de 3.5 cm. La distance entre la surface libre et le haut de l'agitateur n'est alors que de 1.5 cm. Au delà de cette limite, lors du procédé de purification, le brassage est arrêté et l'agitateur est retiré. On notera que la vitesse de rotation a été limitée à 100 rpm pour la configuration 9. Au delà de cette vitesse la surface libre devient trop perturbée et forme des vagues importantes. Il est alors difficile de réaliser une mesure PIV pertinente. Pour les configurations 4 à 9 les mesures ont été faites uniquement dans le plan $v1$ ($y = 0$ cm) car cette mesure nous semble suffisante pour caractériser la structure globale du champ de vitesse dans la cuve.

Tableau 3.3 – Configurations de brassage étudiées expérimentalement par PIV.

n°	N (rpm)	H (cm)	c (cm)	plans de mesure
1	35	15	5	tous
2	70	15	5	tous
3	170	15	5	tous
4	35	20	5	v1
5	70	20	5	v1
6	170	20	5	v1
7	35	10	5	v1
8	70	10	5	v1
9	100	10	5	v1


 FIGURE 3.3 – Définition des plans horizontaux (h1 : $z = 1$ cm à h5 : $z = 5$ cm) et verticaux (v1 : $y = 0$ cm à v5 : $y = 15$ cm) pour les mesures PIV.

3.1.2.3 Procédure de traitement PIV

Comme on l'a vu dans la section 1.3, la qualité des images de particules est conditionnée par les paramètres d'acquisition. Ici le plan de mesure est éclairé par un laser continu. La fréquence d'acquisition des images est donc égale à la fréquence de la caméra. Cette fréquence doit être suffisamment élevée pour que la majorité des particules reste dans le plan de mesure entre deux images consécutives mais suffisamment basse pour obtenir un déplacement significatif des particules. L'enregistrement des images en continu à une fréquence constante nous apporte une plus grande flexibilité vis à vis de ce paramètre puisque le traitement PIV peut se faire sur deux images directement consécutives (acquisitions n et $n + 1$) ou sur deux images séparées d'un nombre donné d'acquisitions (acquisitions n et $n + m$). L'intervalle de temps entre les images traitées est alors donné par le rapport m/f_{cam} , f_{cam} étant la fréquence de la caméra. Pour les vitesses de rotation de 35 et 70 rpm (configurations 1,2,4,5,7 et 8) la fréquence caméra est fixée à 250 fps (*frame per second*) et pour les vitesses plus élevées (configurations 3,6 et 9) elle est fixée à 500 fps. Une fois la fréquence d'acquisition choisie, il faut ajuster le temps d'exposition de manière à obtenir une image nette et suffisamment lumineuse des particules. Ici les temps d'exposition sont compris entre 0.2 et 0.5 ms suivant les configurations.

Le traitement PIV est réalisé à l'aide du logiciel DPIVsoft développé par l'IRPHE¹ sous MATLAB [66]. DPIVsoft est un algorithme de traitement PIV qui permet de calculer un champ de vitesse instantané en 2D à partir d'un couple d'images de particules. Son fonctionnement

1. Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre.

est présenté en détail par Meunier and Leweke [65]. Cet algorithme est basé sur un calcul de corrélation croisée par transformée de Fourier (FFT). Il est optimisé pour les écoulements à forts gradients de vitesse avec un calcul en deux étapes. Lors de la première, étape le champ de vitesse est calculé avec des zones d'interrogation fixes et les gradients de vitesse sont estimés par différences finies. Lors de la seconde étape les zones d'interrogation sont translatées et déformées en fonction des résultats de la première étape. Cette procédure permet de réduire fortement le nombre de particules qui sortent de la zone d'interrogation ainsi que l'erreur liée à la déformation du motif de corrélation. Le déplacement sub-pixel est obtenu par interpolation gaussienne du pic de corrélation. Enfin, certains vecteurs aberrants sont détectés à l'aide d'un critère sur la médiane des vecteurs voisins, puis ils sont remplacés par cette valeur médiane.

Pour nos calculs, la taille des zones d'interrogation est fixée à 32 pixels avec un taux de recouvrement compris entre 50 et 60% afin d'assurer une résolution spatiale suffisante. L'intervalle de temps entre les deux images est ajusté pour chaque mesure en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur et de la position du plan de mesure. Il varie entre 2 et 12 ms suivant la configuration. L'ajustement de ce paramètre permet de garantir la validité du traitement PIV avec des faibles pourcentages de vecteurs aberrants et des déplacements de particules significatifs. Il est principalement limité par le mouvement hors plan des particules. Ce mouvement hors plan a pu être estimé à l'aide des simulations numériques présentées dans la section 3.2. Un temps caractéristique de résidence des particules dans le plan laser est calculé pour chaque configuration en supposant une épaisseur de plan de 1 mm et en considérant la vitesse maximale hors plan obtenue numériquement. L'intervalle de temps entre les deux images est alors choisi le plus grand possible pour maximiser le déplacement des particules dans le plan, mais inférieur au temps caractéristique du mouvement hors plan pour limiter le nombre de vecteurs aberrants. L'annexe A donne pour chaque mesure l'intervalle de temps utilisé, le déplacement moyen des particules dans le plan et le pourcentage moyen de vecteurs aberrants sur les champs instantanés. Pour l'ensemble des mesures, le pourcentage moyen de vecteurs aberrants est inférieur ou égal à 10% et le déplacement moyen varie entre 4.6 et 0.67 pixels.

Pour les plans de mesure $v1$, $v2$ et $h5$, les pales de l'agitateur intersectent la zone de mesure. Un masque est alors défini sur les images de particules afin de ne pas réaliser de calcul PIV dans la zone de l'agitateur. La figure 3.4 représente des champs de déplacement instantanés obtenus dans les plans $v1$ et $h3$ pour la configuration 3. Les points rouges représentent les coordonnées des vecteurs aberrants détectés après le calcul PIV. Pour ces plans on peut voir que la majorité des vecteurs aberrants est située dans la zone de décharge de l'agitateur. En effet, dans cette zone l'écoulement est fortement 3D, les particules ont donc facilement tendance à sortir du plan laser.

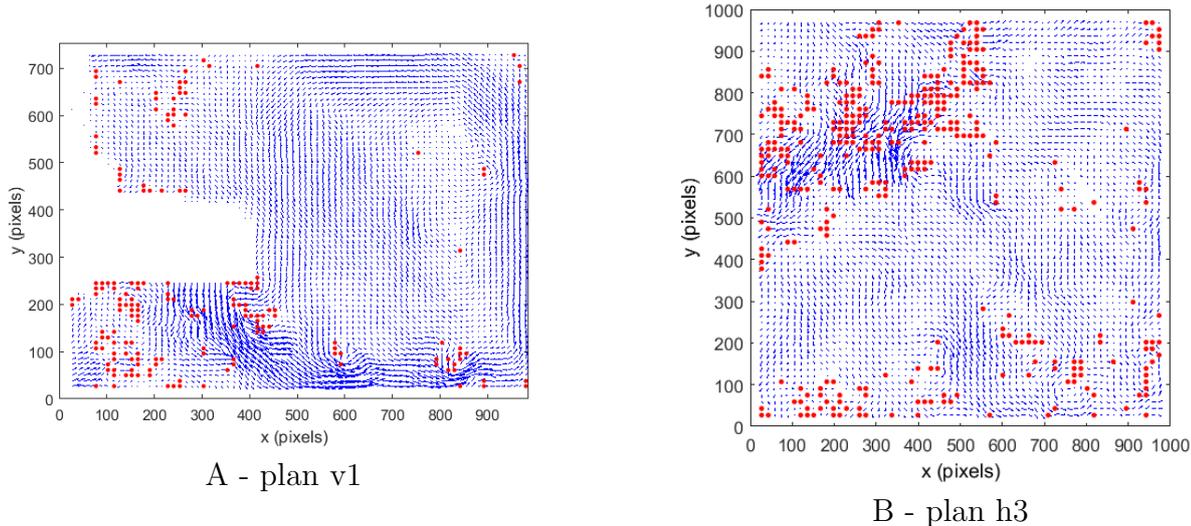


FIGURE 3.4 – Champs instantanés de déplacements (vecteurs bleus) et coordonnées des vecteurs aberrants (points rouges) dans les plans v1 (A) et h3 (B) pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $N = 170$ rpm). Sur la figure de gauche, la zone du brasseur est masquée par un cache blanc ; sur la figure de droite, l'axe de rotation est situé au niveau du coin supérieur gauche.

Le champ moyen est ensuite calculé en faisant la moyenne des champs instantanés. Les écoulements étudiés étant pleinement turbulents, un nombre de champs instantanés minimum est nécessaire pour assurer la convergence du champ moyen. Un critère de convergence basé sur la variation des déplacements moyens en fonction du nombre de champs instantanés a donc été utilisé. Pour cela, cinq points de la grille de calcul ont été choisis arbitrairement (voir figure 3.5.A) et le déplacement moyen en ces points a été calculé en fonction du nombre de champs instantanés utilisés. La figure 3.5.B représente l'évolution de l'écart relatif des déplacements moyens par rapport à la valeur moyenne finale, pour le plan v1 de la configuration 3. On peut voir que cet écart relatif devient inférieur à 5% dès lors que la moyenne est faite sur au moins 4000 champs instantanés. Pour chaque configuration nous avons pu calculer entre 5400 et 7200 champs instantanés. Ce nombre d'acquisition est déterminé par la capacité de la mémoire de la caméra et par la taille de la zone de mesure. La fréquence d'acquisition étant de 250 fps pour les configurations à 35 et 70 rpm, et de 500 fps pour les configurations à 170 rpm, les durées d'acquisition sont comprises entre 10 s (pour 170 rpm) et 30 s (pour 35 et 70 rpm). En considérant que l'écoulement généré par l'agitateur est périodique, ces durées d'acquisition représentent au minimum 52 périodes, une période étant définie par une rotation de 120° de l'agitateur puisqu'il est constitué de 3 pales. La convergence du champ moyen est donc bien vérifiée pour les différentes configurations étudiées.

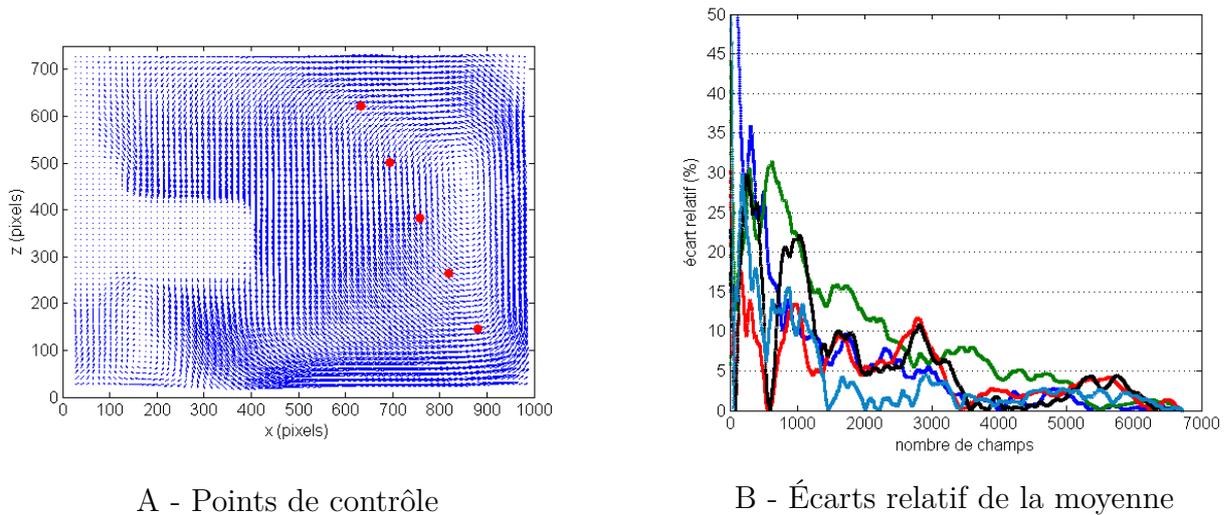


FIGURE 3.5 – Points de contrôle de la convergence du champ moyen (A) et évolution de l'écart relatif des déplacements moyens par rapport à la moyenne finale en fonction du nombre de champs instantanés utilisés (B). Mesure dans le plan v_1 pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $N = 170$ rpm).

Enfin, une procédure de calibration a été réalisée afin de convertir les déplacements calculés en *pixels*, en *mètre*. Pour chaque plan de mesure, une image de calibration a été enregistrée en plaçant une mire de dimensions connues à la même position que le plan laser. La mire est une plaque de plastique blanc avec une marque carrée noire de 10 cm de côté. Les bords du carré sont ainsi facilement identifiables par un traitement d'image simple. Le facteur de calibration est alors défini par le rapport de la longueur réelle du carré (en *mètre*) par sa longueur sur l'image (en *pixels*).

3.1.3 Résultats expérimentaux

3.1.3.1 Caractérisation des champs moyens

Les mesures PIV réalisées sur les configurations de brassage 1 à 3 (tableau 3.3) nous permettent de caractériser l'ensemble du champ moyen de vitesse généré par l'agitateur dans la cuve. Les résultats obtenus pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $N = 170$ rpm) sont détaillés dans ce paragraphe. La figure 3.6 illustre le champ de vitesse mesuré dans le plan vertical v_1 ($y = 0$ cm). La zone occupée par l'agitateur présente des vitesses nulles et les vitesses sont normalisées par la vitesse en bout de pale $V_{tip} = (Nd)/2$ (N étant exprimée en $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$). Cette observation du champ de vitesse montre bien le jet axial produit par l'agitateur. Le jet est vertical et dirigé vers le fond de la cuve lorsqu'il quitte la pale, puis il est dévié par la paroi du fond et on observe alors un écoulement parallèle au fond pour x compris entre 8 cm et 18 cm. Ensuite l'écoulement est dévié par la paroi latérale et remonte verticalement. Il y a alors formation d'une recirculation principale qui occupe toute la cuve. L'écoulement est donc conforme au régime de brassage recherché lors de la conception de l'agitateur. On observe cependant une zone de faible vitesse constituée de recirculations secondaires sous l'axe de rotation de l'agitateur (x compris entre 0 et 4 cm).

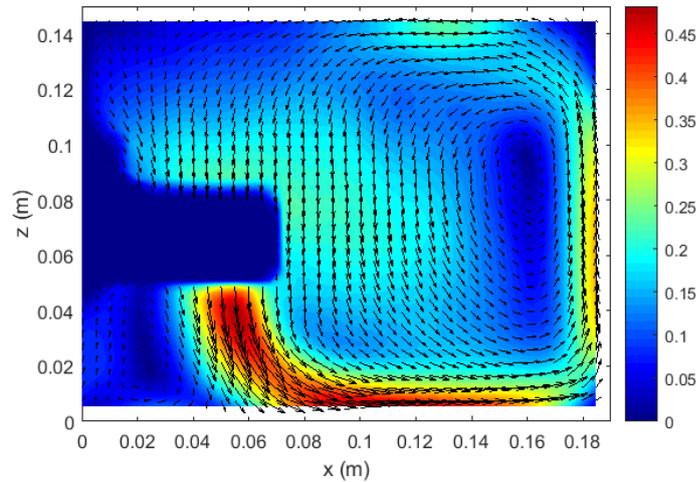


FIGURE 3.6 – Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan v_1 ($y = 0$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm. La zone de vitesse nulle correspond à la position de l’agitateur et l’échelle de couleur correspond à l’amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip} .

La figure 3.7 présente le champ de vitesse mesuré dans le plan horizontal h_1 ($z = 1$ cm). Sous l’agitateur la composante tangentielle de vitesse est prédominante et les lignes de courant sont circulaires. En dehors de cette zone, l’écoulement est uniformément dirigé vers les parois latérales. Cet écoulement correspond à la zone d’écoulement parallèle observée sur la figure 3.6. On observe également une recirculation secondaire à proximité du coin de la cuve.

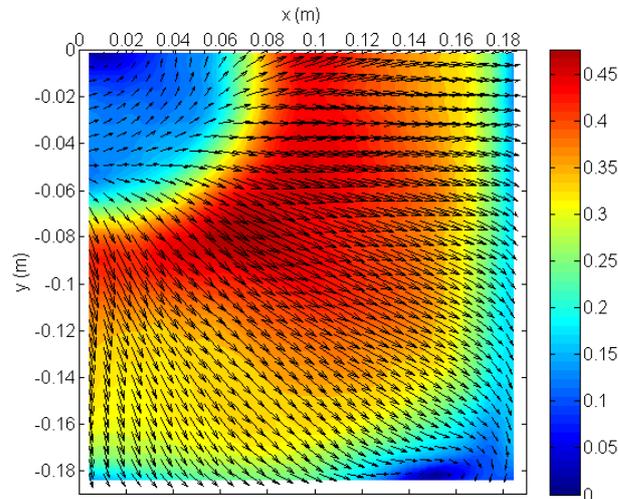


FIGURE 3.7 – Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan h_1 ($z = 1$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm. L’échelle de couleur correspond à l’amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip} .

La figure 3.8 présente le champ de vitesse mesuré dans le plan horizontal h_5 , situé immédiatement sous l’agitateur ($z = 5$ cm). Ici aussi la zone de vitesse nulle correspond à la position de l’agitateur (quart de cercle balayé par les pales). À proximité de l’agitateur l’écoulement est en rotation, mais il perd rapidement son caractère tangentiel lorsque l’on s’écarte de l’axe de rotation. L’écoulement doit alors s’adapter à la géométrie de la cuve ce qui provoque la formation de recirculations multiples. La recirculation secondaire du coin observée sur la figure 3.7 est également visible dans ce plan.

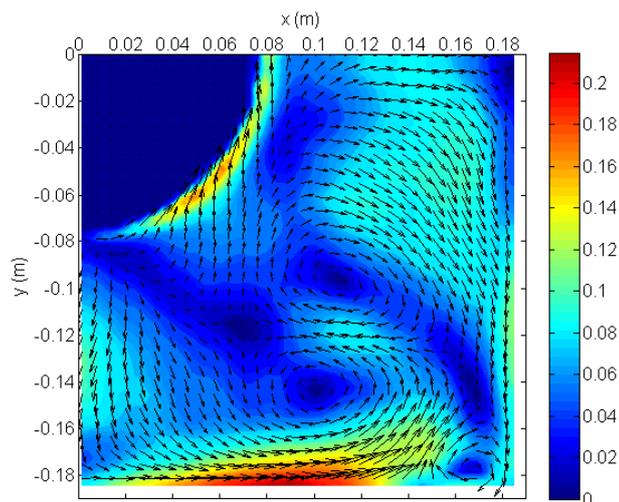


FIGURE 3.8 – Champ moyen de vitesse normalisé dans le plan h_5 ($z = 5$ cm), obtenu par mesure PIV, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et une vitesse de rotation de $N = 170$ rpm. La zone de vitesse nulle correspond à la position de l'agitateur et l'échelle de couleur correspond à l'amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip} .

3.1.3.2 Étude paramétrique

Cette étude expérimentale a pour objectif de caractériser l'écoulement de brassage pour différentes vitesses de rotation et différents rapports d'aspect H/L . Les différents essais réalisés ont montré que la vitesse de rotation a peu d'influence sur la structure du champ de vitesse. Les figures 3.9 et 3.10 montrent les profils de vitesse obtenus pour les différentes vitesses de rotation et une hauteur de liquide $H = 15$ cm. Les profils sont pris en $x = 0.1$ m dans le plan v_1 et les vitesses sont normalisées par la vitesse en bout de pale V_{tip} . Les profils de la composante horizontale de vitesse u (figure 3.9) sont similaires et ne montrent pas d'influence de la vitesse de rotation sur la structure de l'écoulement. À l'inverse, les profils de la composante verticale de vitesse w (figure 3.10) varient avec la vitesse de rotation. La composante verticale de vitesse normalisée augmente avec la vitesse de rotation de l'agitateur.

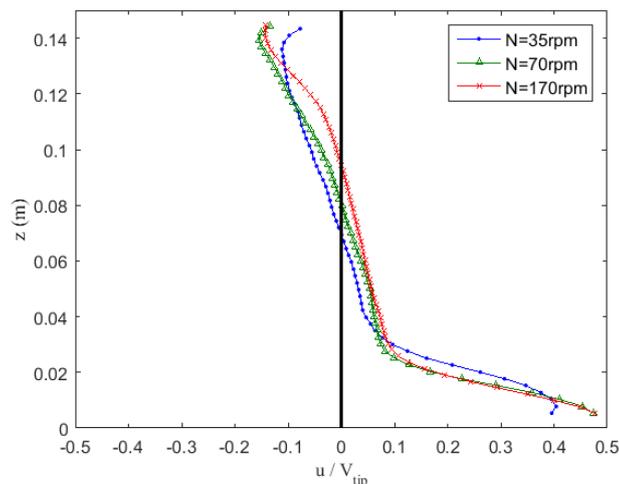


FIGURE 3.9 – Profils normalisés de la composante horizontale de vitesse u , pris en $x = 0.1$ m dans le plan v_1 ($y = 0$ cm), pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et différentes vitesses de rotation.

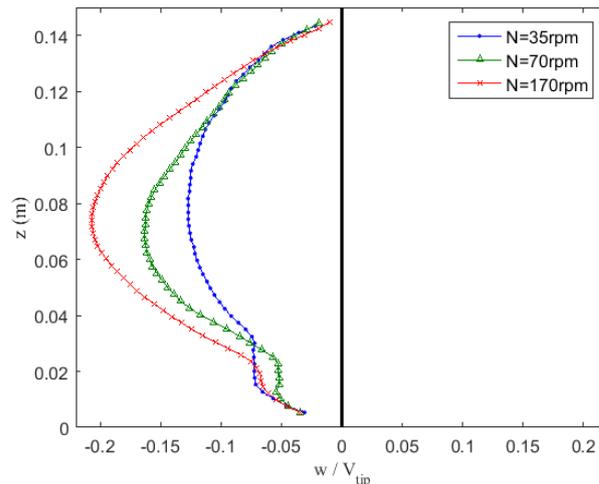
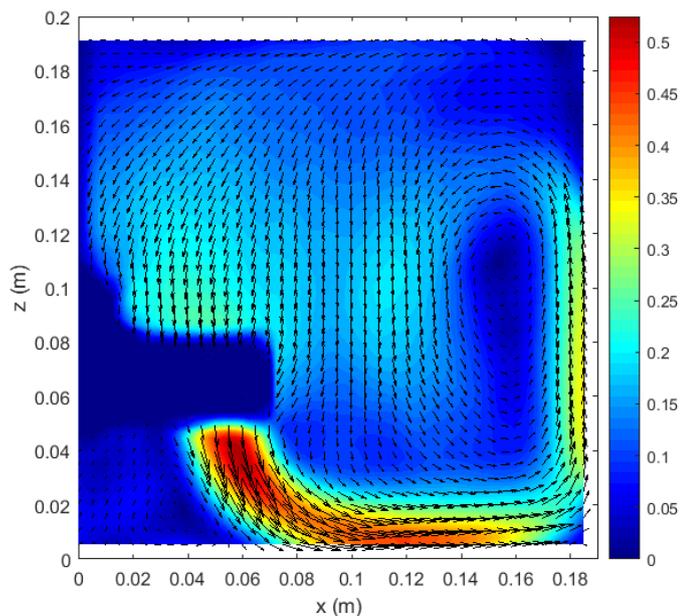
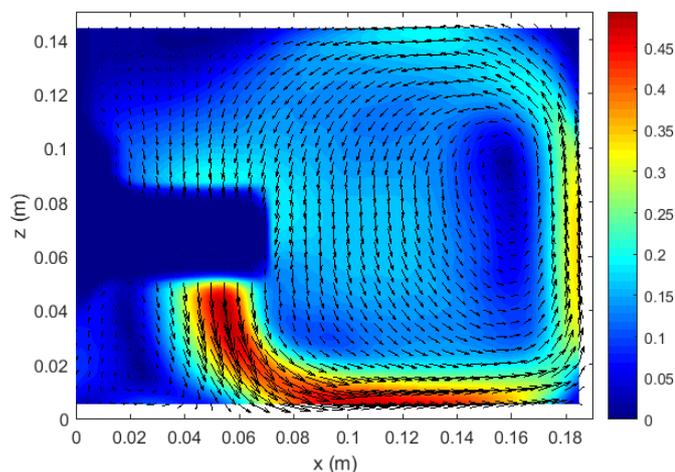


FIGURE 3.10 – Profils normalisés de la composante verticale de vitesse w , pris en $x = 0.1$ m dans le plan v1 ($y = 0$ cm), pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et différentes vitesses de rotation.

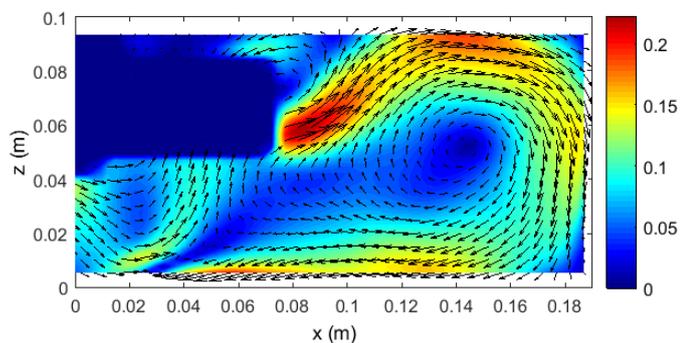
La figure 3.11 présente les champs de vitesse mesurés dans le plan v1 ($y = 0$ cm) pour une vitesse de rotation de 70 rpm et différentes hauteurs de liquide. Pour $H = 20$ cm et 15 cm (figures 3.11.A et 3.11.B), les champs de vitesse ont la même structure avec un jet axial produit par l'agitateur et une recirculation principale qui occupe l'ensemble de la cuve. En revanche, pour une hauteur de 10 cm (figure 3.11.C), la topologie du champ de vitesse change radicalement. L'agitateur produit un écoulement principalement radial et le jet vient impacter les parois latérales de la cuve. Il se forme alors une recirculation avec un sens de rotation inversé par rapport aux configurations précédentes. On observe également une aspiration du fluide sur les faces supérieure et inférieure du volume balayé par les pales de l'agitateur. Ainsi, si la hauteur de liquide H est suffisante, l'agitateur génère un débit principalement axial même à faible vitesse de rotation. En revanche, si la hauteur d'eau au dessus de l'agitateur est trop faible pour permettre un pompage efficace, l'agitateur passe d'un régime d'écoulement axial à un régime d'écoulement radial. Ce changement de régime hydrodynamique peut s'avérer problématique pour les procédés de solidification dirigée puisqu'il pourra entraîner une modification du régime de ségrégation en cours de cristallisation, quand la hauteur diminue.



A - configuration 5 - $H = 20$ cm



B configuration 2 - $H = 15$ cm



C - configuration 8 - $H = 10$ cm

FIGURE 3.11 – Champs moyens de vitesse normalisés dans le plan v_1 ($y = 0$ cm), obtenus par mesure PIV, avec une vitesse de rotation de $N = 70$ rpm et différentes hauteurs d'eau H . La zone de vitesse nulle correspond à la position de l'agitateur et l'échelle de couleur correspond à l'amplitude des vecteurs vitesse normalisés par V_{tip} .

3.1.3.3 Estimation des incertitudes de mesure

L'estimation précise des incertitudes associées aux mesures PIV est délicate en raison du nombre important de paramètres susceptibles d'influencer la mesure. Différentes sources d'incertitudes peuvent être identifiées telles que le suivi de l'écoulement par les particules ou la calibration des champs de déplacements. En se plaçant dans de bonnes conditions pour l'acquisition des images de particules (voir section 1.3), on peut considérer que la principale source d'incertitude provient du calcul des déplacements par l'algorithme de corrélation. Cette incertitude dépend notamment de la précision avec laquelle l'algorithme peut détecter et interpoler les pics de corrélations associés à chaque zone d'interrogation. Les erreurs introduites par l'algorithme DPIVsoft ont été analysées par Meunier and Leweke [65] et par Borrelli [8] lors de son stage de master au laboratoire LIEFT du CEA Saclay. Ces études montrent que ces erreurs dépendent principalement de l'amplitude du déplacement et de l'amplitude des gradients. Afin de quantifier ces erreurs, l'algorithme est appliqué à des images de particules générées numériquement avec un champ de déplacement connu. Le déplacement calculé par l'algorithme peut ainsi être comparé au déplacement imposé lors de la création des images. Pour quantifier l'erreur de mesure on définit l'erreur RMS par la relation :

$$\varepsilon_{rms} = \sqrt{\langle \|\vec{U}_{reel} - \vec{U}_{mesure}\|^2 \rangle}, \quad (3.8)$$

où \vec{U}_{reel} et \vec{U}_{mesure} représentent respectivement le déplacement imposé et le déplacement obtenu par calcul PIV. Le symbole $\langle \rangle$ désigne un opérateur de moyenne spatiale.

L'influence de l'amplitude du déplacement sur l'erreur RMS est étudiée en imposant un déplacement uniforme dans la direction x . Les particules ont un diamètre de 2 pixels et sont déplacées dans le plan. Un bruit blanc aléatoire compris entre 0 et 10% de l'intensité maximale des particules est ajouté à chaque pixel afin de rendre les images de synthèse plus représentatives d'une configuration expérimentale. La figure 3.12 présente l'évolution de l'erreur RMS en fonction de l'amplitude du déplacement imposé aux particules. L'erreur obtenue est périodique de période 1 pixel et maximale pour un déplacement de 0.5 pixel. Il s'agit d'un résultat classique des algorithmes standards de PIV [33, 76]. Meunier et al. [66] considèrent que l'erreur liée au déplacement est inférieure à 0.04 pixel pour des zones d'interrogation de 32 pixels. Cependant, des erreurs atteignant 0.08 pixel sont observées par Borrelli [8] avec des zones d'interrogation de même dimension. **On peut raisonnablement considérer que l'incertitude introduite par l'algorithme en fonction du déplacement est majorée par $\Delta U_d = 0.1$ pixel.**

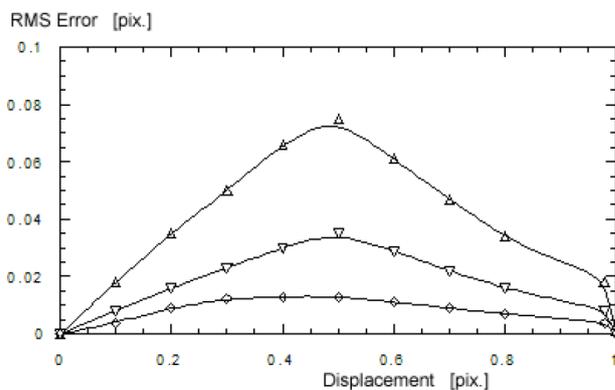


FIGURE 3.12 – Erreur RMS en fonction du déplacement uniforme imposé, pour des zones d'interrogation de 16 (Δ), 32 (∇) et 64 pixels (\diamond). Figure extraite de Meunier et al. [66].

Les gradients influencent également la précision du calcul PIV. Ils entraînent une déformation des motifs de corrélation ce qui réduit la hauteur du pic de corrélation par rapport au bruit

de fond. Pour quantifier cette erreur Meunier et al. [66] utilisent des images de particules avec un cisaillement unidirectionnel imposé. La figure 3.13 présente l'évolution de l'erreur RMS en fonction de la norme du gradient imposé. Ces résultats montrent que l'erreur augmente rapidement avec la norme du gradient. Ils mettent également en avant l'intérêt de la déformation des zones d'interrogation pour réduire l'erreur induite par l'algorithme de calcul PIV. Des tests similaires ont été réalisés par Borrelli [8] avec une condition de rotation à la place d'un cisaillement unidirectionnel. Les tendances observées sont identiques mais les erreurs obtenues sont légèrement plus élevées avec la condition de rotation.

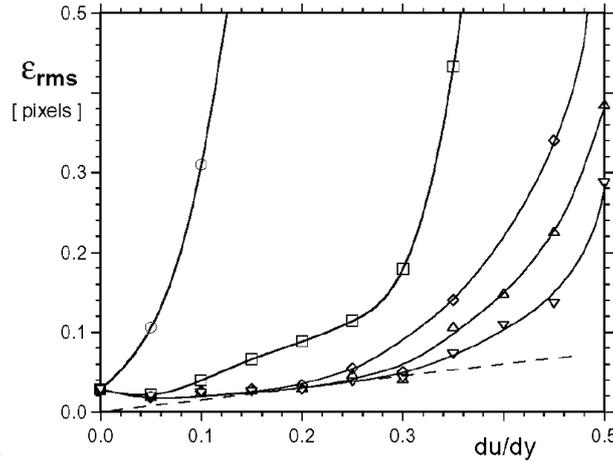


FIGURE 3.13 – Erreur RMS en fonction du gradient imposé, pour des zones d'interrogation de 32 pixels. Résultats obtenus sans déformation des zones d'interrogation (○) et avec déformation après 1 (□), 2 (◇), 3 (△) ou 4 (▽) itérations. Figure extraite de Meunier et al. [66].

Les gradients associés aux mesures présentées dans cette étude ont été calculés à partir des champs instantanés de déplacements. La norme du gradient a été calculée en chaque point de mesure par la relation :

$$\|\nabla\vec{U}\| = \sqrt{\left(\frac{\partial U_x}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial U_x}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial U_y}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial U_y}{\partial y}\right)^2}. \quad (3.9)$$

Le tableau A.5 (cf. annexe A) donne pour chaque configuration de mesure la valeur moyenne et maximale des gradients obtenus sur les champs instantanés. Pour l'ensemble des mesures réalisées le gradient moyen est inférieur à $0.1 \text{ pixel}\cdot\text{pixel}^{-1}$. Localement le gradient maximal peut atteindre $0.6 \text{ pixel}\cdot\text{pixel}^{-1}$ mais les zones de forts gradients sont très localisées et associées à des structures turbulentes qui sont filtrées lors du calcul du champ moyen. La figure 3.14 présente un exemple de champ instantané de la norme du gradient et met en évidence des petites zones de forts gradients situées dans le jet de l'agitateur. Compte tenu de ces résultats, **on peut estimer que l'incertitude sur le calcul PIV liée aux gradients de vitesse est majorée à $\Delta U_g = 0.06 \text{ pixel}$.**

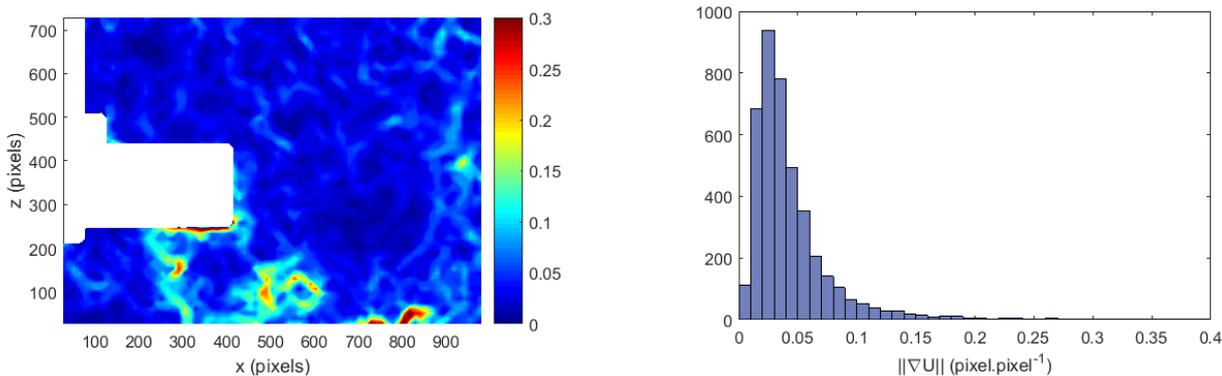


FIGURE 3.14 – Champ instantané et histogramme de la norme du gradient $\|\nabla\vec{U}\|$ dans le plan v1, pour $N = 170$ rpm et $H = 15$ cm.

Une incertitude absolue totale résultant des erreurs induites par les déplacements et les gradients peut alors être définie par la relation :

$$\Delta U_{tot} = \sqrt{\Delta U_d^2 + \Delta U_g^2} \approx 0.12 \text{ pixel.} \quad (3.10)$$

Le tableau A.5 (cf. annexe A) présente pour chaque configuration de mesure l'incertitude relative moyenne :

$$\varepsilon_{tot} = \frac{\Delta U_{tot}}{\|\vec{U}\|_{moyen}}, \quad (3.11)$$

où $\|\vec{U}\|_{moyen}$ représente le déplacement moyen obtenu sur les champs instantanés. Cette incertitude relative est inférieure à $\pm 10\%$ sauf pour trois mesures où le mouvement hors plan est trop important pour obtenir un déplacement moyen supérieur à 1 pixel. Pour ces trois configurations, l'incertitude relative est de 11.66, 17.41 et 14.22%. Pour les plans horizontaux h1 ($z = 1$ cm) et h2 ($z = 2$ cm), l'écoulement est fortement 2D et les déplacements moyens sont supérieurs à 2 pixels. L'incertitude relative est alors inférieure à $\pm 5.3\%$. Il faut souligner que l'approche utilisée vise à donner une estimation globale de l'incertitude en se basant sur des valeurs moyennes de déplacements et de gradients. L'erreur relative locale sur le déplacement mesuré varie autour de cette valeur globale. Elle est plus élevée pour des zones de forts gradients ou de faibles déplacements.

3.1.3.4 Caractérisation des tourbillons détachés

Des animations des images de particules permettent d'observer l'évolution temporelle de l'écoulement. Ces observations révèlent la présence de tourbillons détachés qui se forment à chaque passage d'une pale dans le plan de mesure. Ils sont ensuite advectés par le jet de l'agitateur et suivent la trajectoire définie par le champ moyen. Afin de mieux observer ces tourbillons nous avons calculé la composante de vorticité normale au plan associée aux champs de vitesse instantanés. L'apparition de ces tourbillons étant synchronisée avec le passage des pales, une moyenne conditionnelle a été appliquée aux champs instantanés de vitesse et de vorticité. Cette procédure permet d'obtenir des champs moyens associés à une position donnée des pales. Ces champs moyens constituent les différents modes de l'écoulement liés à la rotation de l'agitateur. Le nombre de modes observable est défini par la fréquence d'acquisition de la caméra divisé par la fréquence de passage des pales (soit trois fois la fréquence de rotation). La figure 3.15 présente un champ moyen de la composante vorticité ω_y obtenu pour une hauteur d'eau $H = 15$ cm et une vitesse de rotation $N = 170$ rpm. La vorticité est normalisée par la

fréquence de rotation de l'agitateur exprimée en $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$. Une zone de forte vorticit  (en valeur absolue) situ e sous l'extr mit  de la pale indique la formation d'un tourbillon d tach . La trajectoire des tourbillons est mise en  vidence par un niveau de vorticit   lev  dans le jet et le long de la paroi du fond (trace laiss e par les tourbillons pr c dents). Ceci illustre l'advection des tourbillons par le champ moyen, observ e sur les animations d'images de particules.

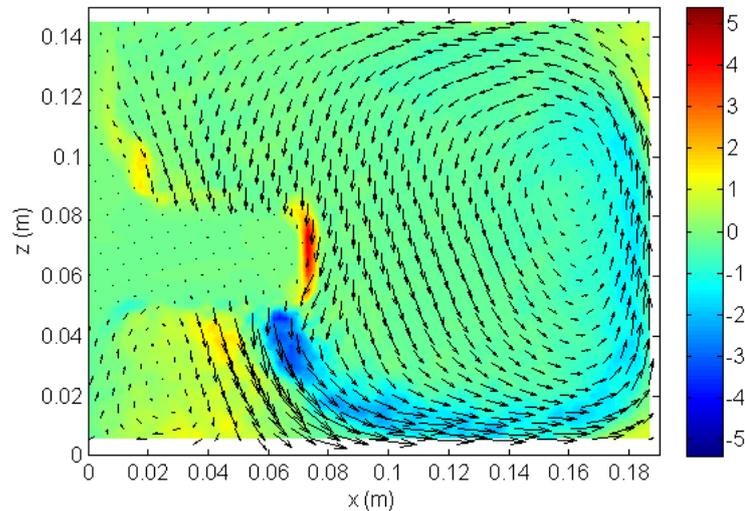


FIGURE 3.15 – Champs normalis s de vitesse (vecteurs) et de la composante de vorticit  ω_y dans le plan v1, pour une hauteur d'eau $H = 15$ cm et une vitesse de rotation $N = 170$ rpm. Moyenne conditionnelle des champs instantan s r alis e pour une position donn e des pales.

3.2 Simulation de la ségrégation sous brassage

Cette section présente le modèle numérique qui a été développé pour simuler l'écoulement généré par l'agitateur mécanique et son influence sur la ségrégation des impuretés. Les simulations ont été réalisées avec le logiciel ANSYS FLUENT. Les résultats numériques de champ de vitesse sont comparés aux mesures PIV présentées dans la section 3.1 et une application du modèle analytique de couche limite solutale est étudiée pour cette nouvelle configuration.

3.2.1 Présentation de la méthode numérique

3.2.1.1 Simulation du brassage par maillage glissant

L'objectif du modèle est de caractériser une configuration de brassage et d'en déduire son influence sur la ségrégation solutale. Comme on l'a vu dans la section 1.2.3, il existe différentes méthodes numériques pour simuler l'écoulement généré par un agitateur en rotation. Les méthodes type "boîte noire" ou terme source équivalent ont été écartées car elles nécessitent une caractérisation expérimentale précise du champ de vitesse en 3D à proximité de l'agitateur pour chaque configuration de brassage. Les méthodes de référentiels multiples et de maillage glissant ont donc été privilégiées car elles se basent sur la géométrie exacte des pales et ne nécessitent pas de données expérimentales relatives à l'agitateur pour implémenter le modèle. Il a été montré que la méthode des référentiels multiples constitue une approximation de régime quasi-permanent qui permet d'obtenir une solution stationnaire du champ de vitesse [2]. Cependant, la validité de cette approche dépend de la configuration de brassage (notamment de la géométrie de l'agitateur et de la cuve). En effet, au niveau de l'interface entre les zones associées aux deux référentiels, l'écoulement doit être uniforme et présenter peu de variations suivant la direction tangentielle. Cette condition ne peut être satisfaite que si la distance entre l'agitateur et les parois de la cuve est suffisamment grande pour que la géométrie de la cuve influence peu l'écoulement à proximité des pales. La caractérisation expérimentale du champ de vitesse présentée dans la section 3.1.3 a mis en évidence des variations temporelles importantes de l'écoulement, liées notamment à la présence de tourbillons détachés (paragraphe 3.1.3.4). De plus, la géométrie carrée de la cuve influence fortement le champ de vitesse en limitant les mouvements tangentiels et en favorisant les mouvements verticaux. Ces différents points montrent que les hypothèses de la méthode MFR ne sont pas valides pour les configurations de brassage que l'on souhaite étudier ici.

Afin d'améliorer la qualité des résultats numériques, des simulations transitoires ont été réalisées à l'aide des options de maillage glissant disponibles dans FLUENT. Ces simulations permettent d'analyser les variations temporelles du champ de vitesse et de s'affranchir des hypothèses liées à la méthode des référentiels multiples. Lors des calculs la hauteur de liquide est constante. On considère donc un état quasi-stationnaire du point de vue de la solidification dirigée. La convection naturelle est négligée devant la convection forcée induite par l'agitateur. Le problème est donc défini par l'équation de continuité (2.2) et les équations de *Navier-Stokes* (2.3) pour un fluide incompressible, présentées dans le chapitre 2. Une condition de non-glissement est imposée sur les parois latérales du creuset, les faces de l'agitateur et le front de solidification. Le front est imposé plan afin de respecter la configuration du dispositif expérimental en eau. La surface libre du bain de silicium est modélisée par une paroi plane associée à une condition de glissement libre. Comme pour les simulations 2D, la turbulence est modélisée par le modèle à deux équations *realizable $k - \varepsilon$* proposé par FLUENT, avec l'option *Enhanced Wall Treatment*

pour le traitement de la turbulence au niveau des parois. Ces modèles sont présentés dans la section 2.1.2.

3.2.1.2 Simulation de la ségrégation en régime quasi-permanent

Afin de quantifier l'influence du brassage sur la ségrégation un calcul de transport d'espèce a été couplé au calcul hydrodynamique. Comme expliqué dans le paragraphe précédent, le calcul de brassage est réalisé avec une hauteur de liquide constante. On adopte donc une hypothèse de régime quasi-stationnaire du point de vue de la solidification dirigée. Du point de vue du transfert de masse, la signification physique d'une hypothèse de quasi-stationnarité n'est pas évidente car le phénomène de ségrégation est intrinsèquement instationnaire [25]. En effet, c'est le déplacement de l'interface solide/liquide au cours du temps qui provoque l'enrichissement de la phase liquide et la formation de la couche limite solutale. Néanmoins, l'influence du champ de convection sur la ségrégation peut être étudiée en régime quasi-permanent en imposant des conditions aux limites de flux de masse et de soluté adaptées au niveau de l'interface solide/liquide et une condition de champ lointain au niveau de la surface libre du bain liquide. Cette méthode a d'ailleurs été appliquée à plusieurs reprises pour des procédés de croissance cristalline en configuration *Bridgman* vertical [16, 25, 94]. Plus récemment, une méthode similaire a été proposée pour étudier la ségrégation des impuretés dans le silicium à l'aide du code commercial FLUENT [23, 41, 80]. L'approche est la même que pour les études précédentes mais les flux de masse et de soluté ne sont plus décrits par les conditions aux limites. On utilise des termes sources implémentés sur les mailles adjacentes au front de solidification et à la surface libre du bain liquide. Ces termes sources sont alors ajoutés aux seconds membres des équations de continuité (2.2) et de transport du soluté (2.4). Ce changement est sans incidence sur la modélisation mais il est nécessaire dans la mesure où FLUENT ne permet pas de définir une condition de flux de masse ou de concentration à travers une paroi (condition limite de type *wall*). La figure 3.16 illustre la configuration de notre étude avec les termes sources de masse et de soluté au niveau de l'interface solide/liquide (S_m^1 et S_i^1) et au niveau de la surface libre (S_m^2 et S_i^2).

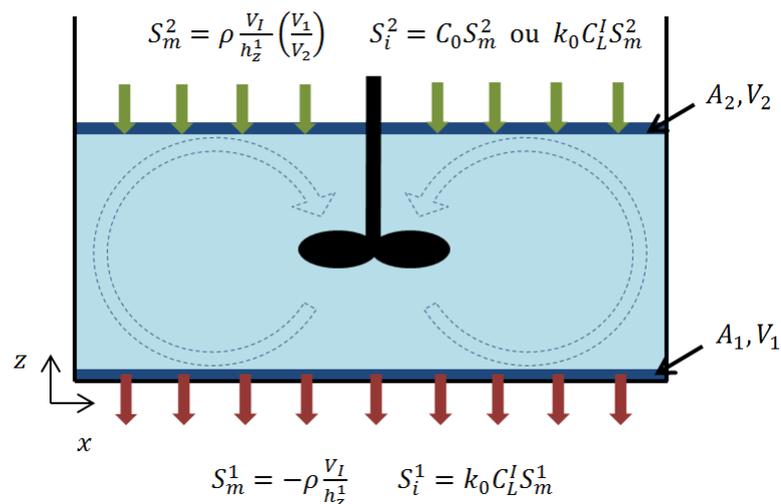


FIGURE 3.16 – Schéma du modèle de ségrégation en régime quasi-permanent et définition des termes sources de masse et de concentration à l'interface solide/liquide et à la surface libre.

Le terme source S_m^1 permet de définir le puits de masse lié à la solidification du silicium. Si on considère une maille élémentaire adjacente au front de solidification de dimensions h_x^1 , h_y^1 et

h_z^1 , le flux élémentaire de masse à travers la facette $dS = h_x^1 h_y^1$ du front de solidification dépend de la vitesse de l'interface V_I et s'exprime :

$$\phi_m^1 = -\rho V_I (h_x^1 h_y^1) = S_m^1 (h_x^1 h_y^1 h_z^1). \quad (3.12)$$

On peut alors définir le terme source volumique S_m^1 à implémenter dans le modèle par la relation :

$$S_m^1 = -\rho \frac{V_I}{h_z^1}. \quad (3.13)$$

De ce terme source résulte un flux de masse total Φ_m^1 que l'on peut calculer par intégration du flux élémentaire ϕ_m^1 sur la surface du front de solidification, notée A_1 :

$$\Phi_m^1 = \iint_{A_1} -\rho V_I dS, \quad (3.14)$$

$$\Phi_m^1 = \iint_{A_1} S_m^1 h_z^1 dS, \quad (3.15)$$

$$\Phi_m^1 = S_m^1 V_1, \quad (3.16)$$

où $V_1 = A_1 h_z^1$ désigne le volume de l'ensemble des mailles adjacentes à l'interface solide/liquide. Comme on travaille en régime quasi-permanent, la conservation de la masse doit être vérifiée. Un flux de masse Φ_m^2 doit donc être imposé au niveau de la surface libre afin de compenser Φ_m^1 . Un terme source volumique S_m^2 est alors implémenté au niveau des mailles adjacentes à la surface libre ($V_2 = A_2 h_z^2$ désigne le volume occupé par ces mailles).

$$\Phi_m^2 + \Phi_m^1 = 0 \quad (3.17)$$

$$\Leftrightarrow S_m^2 V_2 + S_m^1 V_1 = 0 \quad (3.18)$$

$$\Leftrightarrow S_m^2 = \rho \frac{V_I}{h_z^1} \left(\frac{V_1}{V_2} \right). \quad (3.19)$$

Le terme V_1/V_2 permet d'équilibrer les flux en tenant compte de la section de l'arbre de l'agitateur (qui implique $A_1 \neq A_2$) et des différentes hauteurs de mailles h_z^1 et h_z^2 .

Il faut à présent définir la quantité d'impuretés qui est rejetée dans le liquide. Cela revient à définir la fraction massique d'impureté associée au puits de masse S_m^1 . On définit alors le terme source S_i^1 , qui intervient au second membre de l'équation de transport d'espèces (2.4), et qui vaut :

$$S_i^1 = k_0 C_L^I S_m^1 = -k_0 C_L^I \rho \frac{V_I}{h_z^1}, \quad (3.20)$$

où k_0 désigne le coefficient de ségrégation de l'impureté considérée et C_L^I la fraction massique d'impureté au niveau de l'interface solide/liquide. De la même manière, il faut définir la fraction massique d'impureté associée au terme source de masse S_m^2 . Habituellement, cette concentration est fixée à la concentration nominale C_0 . Cela revient à imaginer un domaine semi-infini avec une concentration uniforme loin de l'interface. Le terme source S_i^2 s'écrit alors :

$$S_i^2 = C_0 S_m^2 = C_0 \rho \frac{V_I}{h_z^1} \left(\frac{V_1}{V_2} \right). \quad (3.21)$$

Néanmoins, cette définition est problématique dans le cas où le coefficient k_0 est faible. En effet, pour que le système soit en régime quasi-permanent il faut que la masse d'impureté soit

constante. Cela suppose que les flux d'impuretés se compensent, au même titre que les flux de masse. En utilisant la relation (3.17) on montre que :

$$\Phi_i^2 + \Phi_i^1 = 0 \quad (3.22)$$

$$\Leftrightarrow C_0 \Phi_m^2 + k_0 C_L^I \Phi_m^1 = 0 \quad (3.23)$$

$$\Leftrightarrow C_L^I = \frac{C_0}{k_0}. \quad (3.24)$$

On voit alors que la concentration à l'interface solide/liquide devient très grande devant la concentration nominale C_0 lorsque k_0 est faible. Cet écart peut atteindre plusieurs ordres de grandeur dans le cas des impuretés métalliques. En effet, les coefficients de partage de l'aluminium est de 2×10^{-3} et celui du fer est de 8×10^{-6} . D'un point de vue physique, des concentrations aussi importantes nous écartent du problème étudié. D'un point de vue numérique la convergence du calcul vers une telle solution demande un grand nombre d'itérations. C'est pour ces deux raisons qu'une autre définition du terme source S_i^2 a été proposée. L'objectif est de travailler avec une masse d'impureté constante. Pour cela la masse d'impureté réintroduite dans le système par S_i^2 doit être égale à celle extraite par S_i^1 :

$$S_i^2 = k_0 \langle C_L^I \rangle S_m^2 = k_0 \langle C_L^I \rangle \rho \frac{V_I}{h_z^1} \left(\frac{V_1}{V_2} \right), \quad (3.25)$$

où $\langle C_L^I \rangle$ désigne la concentration moyenne à l'interface solide/liquide, calculée à chaque itération. Différentes simulations tests ont montré que ce changement de terme source n'influence pas le calcul de l'épaisseur de la couche limite solutale au niveau du front de solidification, qui est la grandeur qui nous intéresse pour caractériser la ségrégation. En revanche, le calcul de ségrégation converge beaucoup plus rapidement dans cette configuration puisque les concentrations aux interfaces restent du même ordre que C_0 . La solution recherchée est donc plus proche de la valeur imposée à l'initialisation du calcul.

Enfin, des termes sources sont également définis pour les autres variables du problème afin de tenir compte des flux induits par le puits de masse. Ces termes sources sont définis comme le produit de ces variables avec le terme source de masse au niveau de l'interface solide/liquide ou de la surface libre [80, 23].

3.2.1.3 Procédure de calcul

Lors des simulations transitoires de brassage, un régime périodique lié à la rotation de l'agitateur s'établit après un transitoire initial. Ce transitoire initial lié à la mise en rotation de l'agitateur présente peu d'intérêt pour l'application qui nous concerne puisque le brassage commence dès la fin de la phase de fusion. Un régime périodique est donc déjà établi lorsque le cycle de solidification débute. Une simulation stationnaire par référentiels multiples est réalisée préalablement aux simulations transitoires. Le résultat de ce calcul stationnaire est utilisé comme solution initiale pour la simulation transitoire. Cette procédure permet d'accélérer la convergence du calcul vers le régime périodique.

Malgré cette procédure d'initialisation, il est nécessaire de simuler la rotation de l'agitateur sur un temps suffisant pour atteindre un régime d'écoulement purement périodique. Ce temps de convergence dépend de la configuration étudiée, et notamment de la vitesse de rotation de l'agitateur. Pour les calculs présentés ici, au moins 80 rotations complètes de l'agitateur ont été simulées afin d'obtenir un régime périodique. Deux critères de convergence ont été définis pour valider l'établissement de ce régime. Ces critères sont basés sur le débit produit par l'agitateur

et la contrainte de frottement moyenne au niveau du front de solidification. Une fois le régime périodique atteint, une moyenne temporelle de l'écoulement est calculée sur une rotation complète de l'agitateur. Le champ moyen ainsi obtenu peut ensuite être comparé aux résultats des mesures PIV présentés dans la section 3.1.3. **Dans la suite du chapitre, la notation " $\bar{\cdot}$ " désigne les variables moyennées sur une rotation de l'agitateur.**

Le calcul de ségrégation en régime quasi-permanent est réalisé dès la phase de calcul par référentiels multiples. Cette procédure permet de s'affranchir du transitoire de formation de la couche limite solutale lors du calcul par maillage glissant. Le calcul MFR comprend alors une première phase de convergence du calcul hydrodynamique (sur 10 000 itérations) puis une seconde phase de convergence du calcul de transport d'espèces (sur 500 itérations). Le calcul transitoire avec maillage glissant est alors initialisé avec le champ de vitesse et le champ de concentration associés à la solution du calcul MFR. Des critères de convergence ont également été définis pour le calcul de transport d'espèces. Ces critères sont basés sur la concentration moyenne dans la phase liquide et la valeur moyenne du paramètre convecto-diffusif au niveau du front de solidification.

3.2.1.4 Discrétisation spatiale et temporelle

La figure 3.17 présente le maillage utilisé pour les simulations avec une hauteur de liquide de 15 cm. Le maillage utilisé comporte essentiellement des éléments hexaédriques mais la zone des pales (zone 3) nécessite des éléments tétraédriques pour s'adapter à la géométrie complexe de l'agitateur. La taille de maille globale est de 5 mm et un raffinement est appliqué au niveau du front de solidification avec une première maille de hauteur 5 μm et un taux de croissance de 1.2. Ce raffinement est nécessaire pour le calcul numérique de la couche limite solutale. Le nombre total d'éléments varie entre 440.000 et 570.000 suivant la configuration étudiée. Une interface cylindrique avec un maillage conforme est définie entre la zone fixe (zone 1) et les zones en rotation (zones 2, 3 et 4).

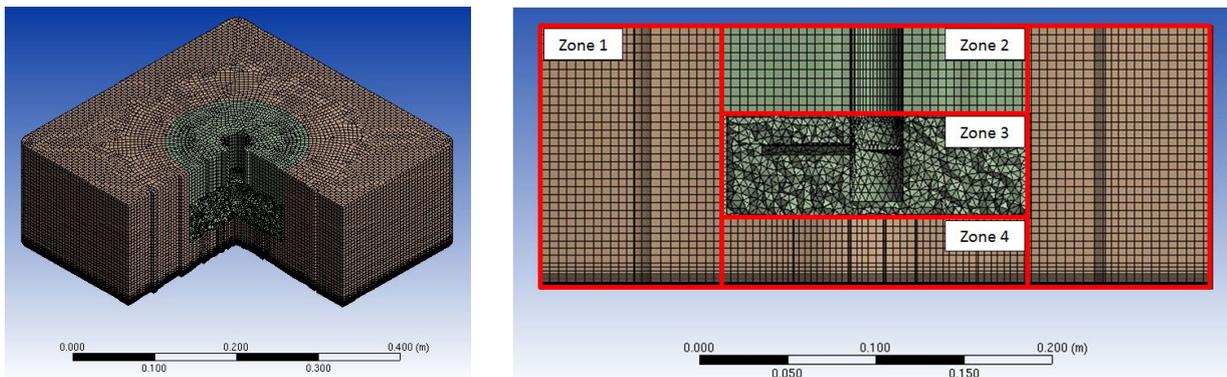


FIGURE 3.17 – Maillage utilisé pour les simulations de brassage en 3D (cas $H = 15$ cm), vue isométrique et vue en coupe verticale.

Un schéma au second ordre est utilisé pour la discrétisation temporelle des calculs transitoires. Différents tests ont été réalisés pour estimer l'influence de la discrétisation temporelle sur la convergence des calculs. Ces tests montrent qu'une rotation élémentaire de 12° assure un bon compromis entre la précision et la stabilité de la solution obtenue et le temps de calcul. L'amplitude des pas de temps est donc définie en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur afin d'obtenir une rotation de 12° à chaque pas temps. De plus, 50 itérations internes sont effectuées à chaque pas de temps afin d'assurer une convergence suffisante des résidus.

3.2.2 Validation de la méthode numérique

3.2.2.1 Convergence du calcul transitoire

Comme expliqué dans la section 3.2.1, l'objectif de la simulation transitoire du brassage est d'obtenir une solution de l'écoulement correspondant à un régime périodique lié à la rotation de l'agitateur. Afin d'identifier ce régime périodique et de valider la convergence du calcul deux critères ont été définis. Ces critères consistent à analyser l'évolution de la contrainte de frottement moyenne au niveau du front de solidification et du débit volumique à travers le demi-plan vertical Oxz ($x > 0$). Les figures 3.18.A et 3.18.B présentent les courbes de convergence de contrainte et de débit obtenues pour trois simulations avec une hauteur de liquide de 15 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm. Afin de pouvoir comparer les différentes configurations, les courbes sont normalisées par la valeur moyenne obtenue pour les 1200 derniers pas de temps. On peut voir que la contrainte moyenne converge vers une valeur constante avec des variations pseudo-périodiques inférieures à 0.5% qui dépendent de la vitesse de rotation. Les débits présentent des fluctuations temporelles rapides directement liées à la rotation de l'agitateur et dont l'amplitude dépend de la vitesse de rotation. La valeur moyenne des débits converge également vers une valeur constante.

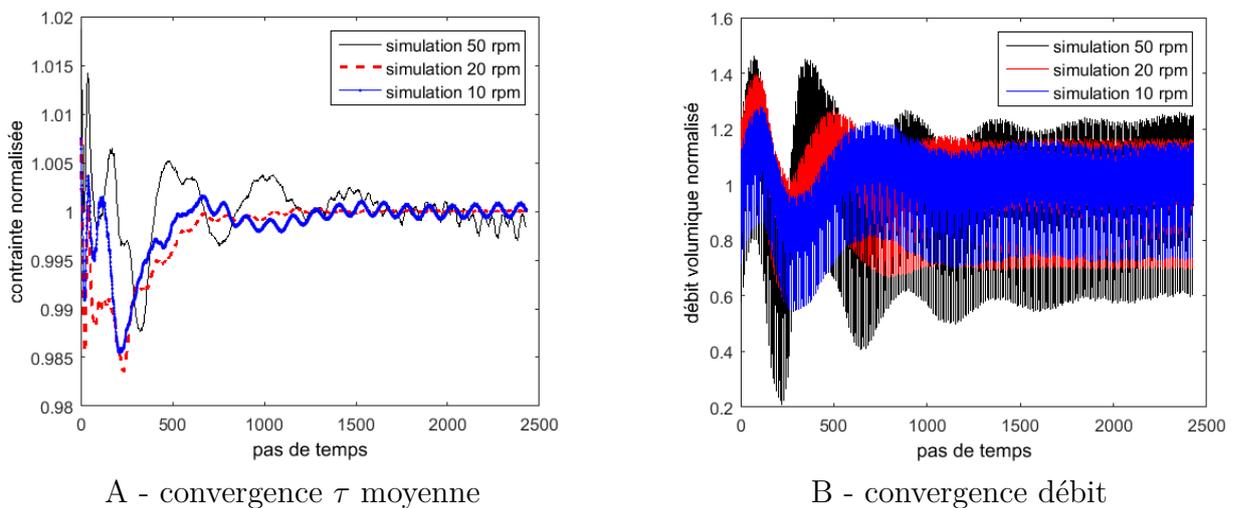


FIGURE 3.18 – Courbes de convergence de la contrainte de frottement moyenne sur la paroi du fond (A) et du débit volumique à travers le demi plan vertical Oxz ($x > 0$) (B) au cours du calcul transitoire. Simulations numériques avec une hauteur de liquide de 15 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm.

On s'intéresse maintenant à la convergence du calcul de ségrégation sous brassage. Comme expliqué précédemment, le calcul de brassage commence par un calcul stationnaire à référentiels multiples. Dans un premier temps, on fait uniquement converger le calcul hydrodynamique, puis un calcul de transport d'espèce, toujours en régime stationnaire, permet d'obtenir la couche limite solutale associée à cette solution d'écoulement. Par la suite, l'écoulement et la ségrégation sont calculés simultanément en régime transitoire. Cette approche a été mise en œuvre pour s'affranchir du transitoire initial de formation de la couche limite solutale. La figure 3.19.A présente les courbes de convergence de la concentration moyenne dans la phase liquide pour trois simulations avec une hauteur de liquide de 15 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm, ainsi que pour la configuration $H = 10$ cm et $N = 10$ rpm. Pour les différentes configurations la concentration moyenne est constante durant le calcul transitoire. Cela n'est pas surprenant puisque les termes source imposés au front de solidification et à la surface libre s'équilibrent

(voir section 3.2.1.2). Cependant, la concentration moyenne évolue au cours du calcul MFR. Ce calcul d'initialisation s'effectue en régime stationnaire avec des flux imposés à l'interface et à la surface libre par les termes sources. Seuls les gradients de concentration au niveau des frontières sont définis explicitement. La concentration moyenne de la phase liquide est donc un degré de liberté du système et sa convergence dépend du régime de convection. Pour l'ensemble des simulations réalisées l'écart relatif entre la concentration moyenne à la fin du calcul transitoire et la concentration initiale C_0 est toujours inférieur à 4%. La figure 3.19.B présente les courbes de convergence du paramètre convecto-diffusif moyen au niveau du front de solidification (calculé sur la base de la relation (1.20)). On peut voir que la convergence de cette grandeur est bien vérifiée lors du calcul MFR, et cela pour l'ensemble des configurations étudiées. La convergence des gradients de concentration dans la phase liquide est donc bien assurée malgré les variations de concentration moyenne au cours du calcul en régime stationnaire.

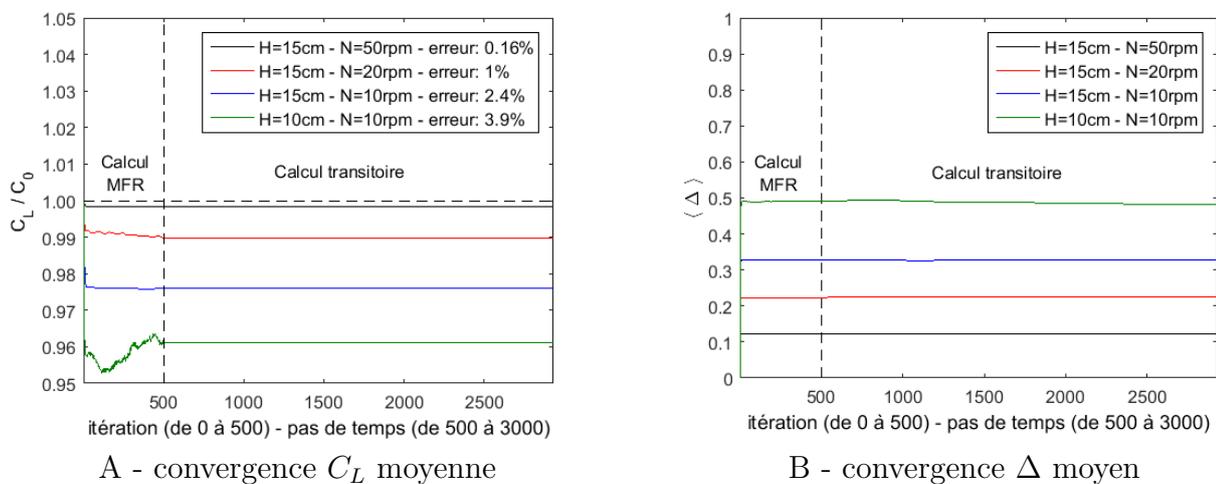


FIGURE 3.19 – Courbes de convergence de la concentration moyenne (A) et du paramètre Δ moyen (B) au cours du calcul stationnaire (MFR) puis du calcul transitoire (maillage glissant). Simulations numériques avec une hauteur de liquide de 15 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm ; et une hauteur de liquide de 10 cm et une vitesse de 10 rpm.

3.2.2.2 Modèle de turbulence et traitement des parois

Afin de vérifier que le maillage est suffisant pour le calcul des couches limites, les valeurs de distance normalisée z^+ ont été relevées sur les différentes parois pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 50$ rpm. La distance normalisée à la paroi z^+ est définie par la relation (1.35). Il s'agit de la distance entre la paroi et le centre de la maille adjacente, exprimée en unités de paroi. Le tableau 3.4 regroupe les valeurs minimales, maximales et moyennes obtenues pour chaque paroi. Pour le front de solidification ces valeurs sont très faibles en raison du raffinement appliqué pour le calcul de la couche limite solutale. Le centre de la première maille est donc situé dans la zone linéaire du profil de vitesse (sous-couche visqueuse). Sur les parois de l'agitateur et les parois latérales du creuset les valeurs moyennes sont de l'ordre de 50 et les valeurs maximales sont inférieures à 150, ce qui correspond au domaine de validité des lois de parois empiriques disponibles dans FLUENT. Le maillage est donc suffisamment fin pour permettre un calcul correct des couches limites hydrodynamiques à l'aide de l'option *Enhanced Wall Treatment*.

Tableau 3.4 – Valeurs de z^+ obtenues sur les différentes parois du modèle (cas $H = 15$ cm et $N = 50$ rpm).

Paroi	z_{min}^+	z_{max}^+	z_{moyen}^+
front de solidification	1.0×10^{-2}	1.4×10^{-1}	8.0×10^{-2}
agitateur	3.0	1.4×10^2	5.2×10^1
parois latérales	1.6×10^{-1}	8.9×10^1	5.8×10^1

Par ailleurs, un calcul a également été réalisé avec le modèle de turbulence $k - \omega$ *SST* proposé par FLUENT. Les résultats obtenus ont été comparés avec ceux obtenus par le modèle *realizable* $k - \varepsilon$. Les deux modèles donnent des résultats proches sur la structure et l'amplitude du champ de vitesse. Cependant, la convergence du calcul transitoire est beaucoup plus délicate avec le modèle $k - \omega$ *SST* et la solution obtenue présente de fortes fluctuations temporelles. C'est pour cette raison que le modèle *realizable* $k - \varepsilon$ a été choisi ici.

3.2.2.3 Similitude de *Reynolds*

Nous avons vu dans la section 3.1 que les mesures de champ de vitesse ont été réalisées sur un dispositif expérimental en eau, placé en similitude de *Reynolds* avec le système de brassage de silicium. Afin de valider cette procédure deux simulations numériques tests ont été réalisées. Pour ces deux calculs hydrodynamiques la hauteur de liquide dans la cuve est de 15 cm. Pour le premier calcul, les propriétés physiques du fluide sont celles du silicium liquide (voir tableau 3.2) et la vitesse de rotation l'agitateur est imposée à 50 rpm. Pour le second calcul, les propriétés du fluide sont remplacées par celles de l'eau et la vitesse de rotation est fixée à 170 rpm, ce qui correspond à la configuration expérimentale 3 (voir tableau 3.3). D'après les conditions de similitude définies dans la section 3.1.1 les écoulements simulés sont en similitude de *Reynolds*. Les figures 3.20.A et 3.20.B présentent les profils verticaux de vitesse moyenne pour les composantes u et w pris en $x = 0.1$ m dans le plan vertical v1 (plan passant par l'axe de rotation de l'agitateur). Ces profils montrent que les champs de vitesse normalisés obtenus sont pratiquement identiques pour les deux calculs tests. La similitude de *Reynolds* permet donc bien d'obtenir la même solution d'écoulement pour les deux configurations de brassage.

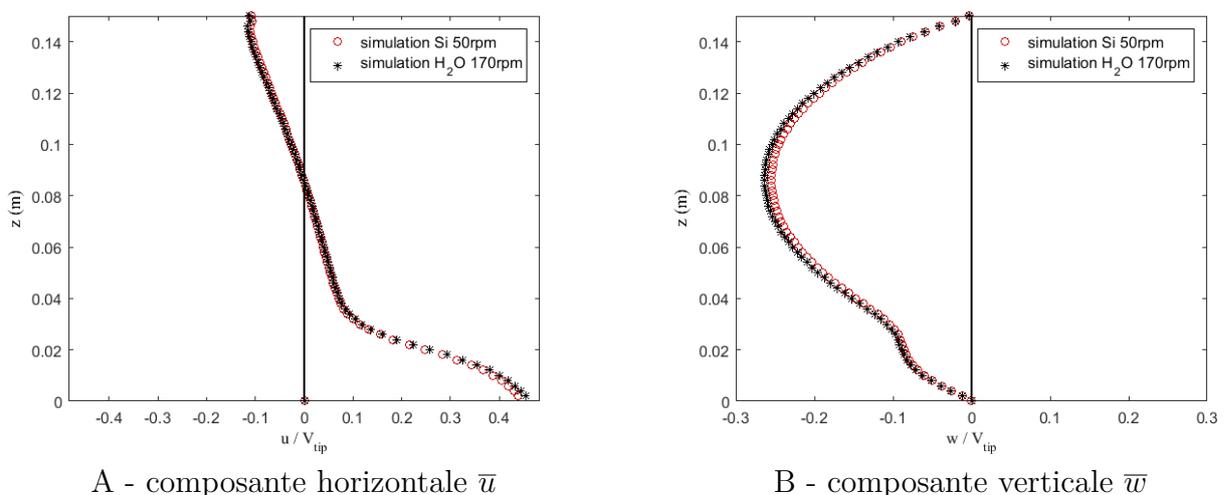
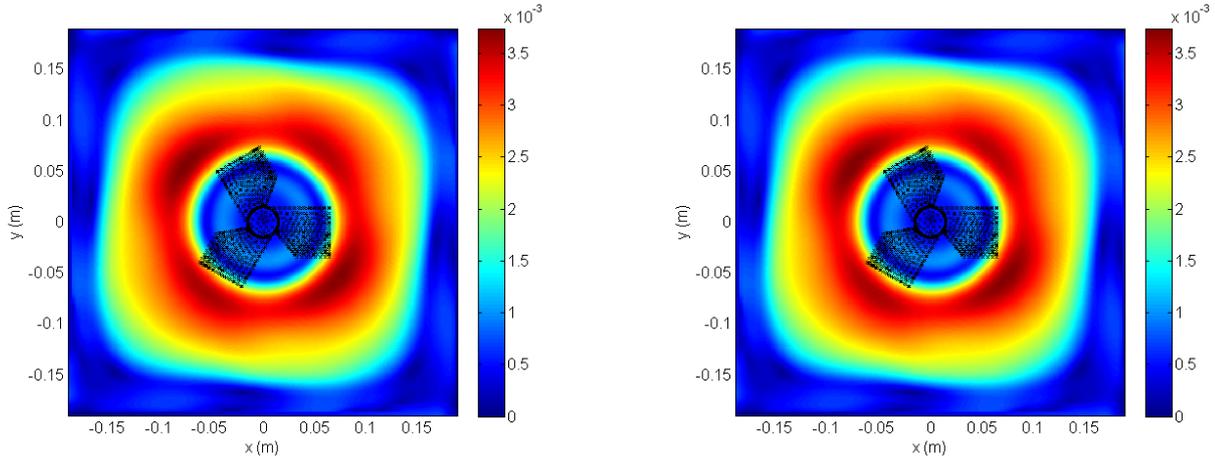


FIGURE 3.20 – Profils normalisés des composantes de vitesse \bar{u} (A) et \bar{w} (B) pris en $x = 0.1$ m dans le plan v1, pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm. Comparaison des simulations de brassage du silicium à 50 rpm et de l'eau à 170 rpm. Les profils correspondent à la moyenne temporelle obtenue à l'issue du calcul transitoire.

Dans la section 3.1.1, il est expliqué que la similitude de *Reynolds* implique la conservation du coefficient de frottement C_f . Les figures 3.21.A et 3.21.B présentent les champs de coefficient de frottement obtenus pour les deux simulations tests. L'écart relatif moyen obtenu entre ces deux champs est de 3%, ce qui confirme la conservation du C_f par la similitude de *Reynolds*. Ici, le coefficient de frottement est défini à partir de la vitesse en bout de pale V_{tip} par la relation :

$$C_f = \frac{\tau}{\frac{1}{2}\rho V_{tip}^2}. \quad (3.26)$$



A - brassage Si 50 rpm

B - brassage eau 170 rpm

FIGURE 3.21 – Champs de coefficient de frottement sur la paroi du fond obtenus pour le brassage du silicium à 50 rpm (A) et pour le brassage de l'eau à 170 rpm (B). Les résultats correspondent à la moyenne temporelle obtenue à l'issue du calcul transitoire.

Enfin, les simulations ont été réalisées en négligeant la déformation de la surface libre du bain de silicium, ce qui semble justifié puisque les vitesses de rotation étudiées sont relativement faibles. Afin de valider cette hypothèse il est possible d'estimer la déformation de la surface à partir des variations de pression obtenues sur la paroi supérieure du modèle. On définit l'amplitude de déformation de la surface libre h par la relation :

$$h = \frac{\Delta p}{\rho_{si}g}, \quad (3.27)$$

où Δp représente la variation maximale de pression à la paroi. Pour les configurations d'écoulement axial la déformation estimée augmente avec la vitesse rotation mais reste inférieure à 1 mm pour une vitesse de 50 rpm. Pour les configurations à écoulement radial ($H = 10$ cm), la déformation est sensiblement plus élevée et atteint 4 mm pour une vitesse de 50 rpm. Néanmoins, ces déformations restent suffisamment faibles pour justifier l'hypothèse d'une surface plane ainsi que le non respect de la similitude de *Froude*.

3.2.3 Résultats de l'étude paramétrique

3.2.3.1 Plan d'essai numérique

Afin d'étudier l'influence du brassage sur la ségrégation, un plan d'essai numérique a été réalisé. Ce plan d'essai est directement inspiré de celui défini pour la caractérisation expérimentale du champ de vitesse (section 3.1.2.2). Le tableau 3.5 présente les différentes configurations de brassage simulées. Comme pour l'étude expérimentale, les deux paramètres étudiés sont la hauteur de liquide et la vitesse de rotation de l'agitateur. Les hauteurs de liquide varient entre 10 cm et 20 cm et les vitesses de rotations entre 10 rpm et 50 rpm. Pour chaque configuration, la distance entre le front de solidification (i.e. la paroi du fond) et l'agitateur est de 5 cm. Comme expliqué dans la section 3.1.2.2, la configuration 9 n'a pas de correspondance avec une mesure PIV. La configuration 10 complète la comparaison avec l'expérience puisqu'elle correspond à la configuration expérimentale 9 où la vitesse de rotation est limitée à 100 rpm.

Tableau 3.5 – Configurations de brassage étudiées numériquement.

n°	N (rpm)	H (cm)	c (cm)	référence PIV
1	10	15	5	oui
2	20	15	5	oui
3	50	15	5	oui
4	10	20	5	oui
5	20	20	5	oui
6	50	20	5	oui
7	10	10	5	oui
8	20	10	5	oui
9	50	10	5	non
10	30	10	5	oui

Afin de calculer les couches limite solutales associées aux écoulements de brassage, il est nécessaire de définir la configuration de ségrégation étudiée. Ici les paramètres utilisés sont similaires à ceux définis pour l'étude de la cavité entraînée (chapitre 2) :

- Vitesse de solidification : $V_I = 10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.
- Diffusivité moléculaire : $D = 10^{-8} \text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$.
- Coefficient de ségrégation : $k_0 = 0.3$.
- Concentration initiale : $C_0 = 2 \times 10^{-5}$ (fraction massique).

Les propriétés du fluide sont celles du silicium liquide, définies dans le tableau 3.2.

3.2.3.2 Étude hydrodynamique

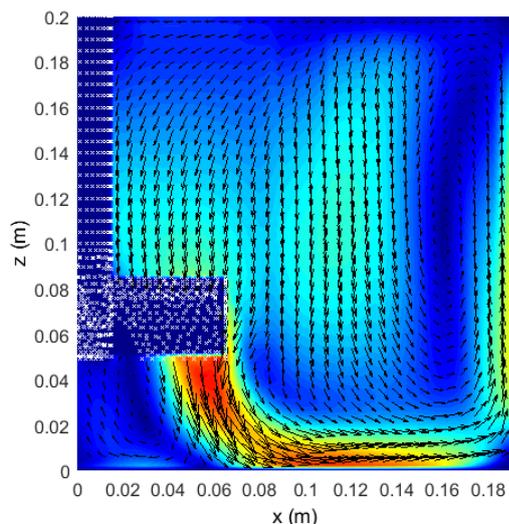
Ce paragraphe présente les champs de vitesse obtenus numériquement pour les différentes configurations de brassage étudiées. Ces résultats sont comparés avec les mesures PIV présentées dans la section 3.1.3 afin de valider l'approche numérique utilisée et de mettre en évidence les limites de ce modèle. La figure 3.22 présente les champs de vitesse moyens obtenus numériquement dans le plan vertical v_1 ($y = 0$ cm) pour une vitesse de rotation de 20 rpm et des hauteurs de liquide de 20, 15 et 10 cm. Ces résultats sont comparés aux mesures réalisées à une vitesse de 70 rpm, ce qui correspond à un nombre de *Reynolds* de 1.2×10^5 (nombre de *Reynolds* basé sur le diamètre de l'agitateur). D'un point de vue qualitatif, on remarque que le modèle numérique permet de reproduire la structure globale de l'écoulement observé expérimentalement. L'influence de la hauteur de liquide sur le régime de brassage est bien retranscrite par le modèle qui prévoit un débit axial pour des hauteurs de 20 et 15 cm et un débit radial pour une

hauteur de 10 cm. Néanmoins, les topologies de champs de vitesse numériques et expérimentaux ne sont pas rigoureusement identiques. Les positions des centres de rotation et les formes des recirculations diffèrent sensiblement. D'un point de vue quantitatif, le modèle permet de retrouver l'ordre de grandeur des vitesses mesurées pour les configurations axiales ($H = 15$ cm et 20 cm). Lorsque le débit est radial ($H = 10$ cm) le modèle sous-estime les vitesses dans le plan $v1$.

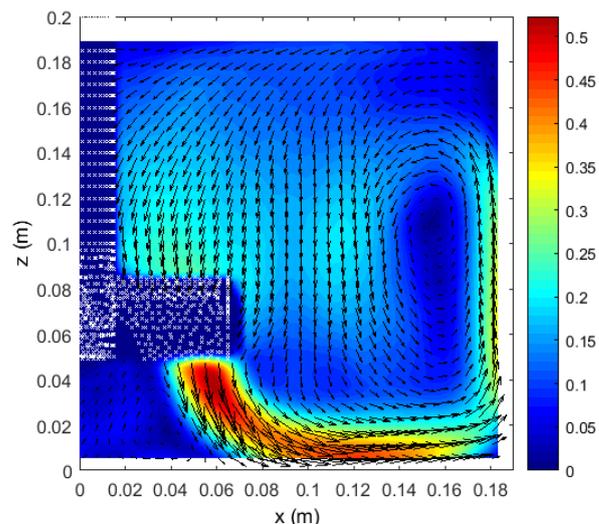
Afin de quantifier l'écart entre les simulations et les mesures, le tableau 3.6 présente l'écart relatif des valeurs maximales d'amplitudes des vitesses numériques par rapport aux amplitudes maximales mesurées. La valeur maximale d'amplitude de vitesse est un indicateur de la quantité de mouvement apportée au fluide par l'agitateur. Il s'agit donc d'un critère de comparaison global, qui permet de s'affranchir des différences de topologie observées précédemment. Pour les différentes configurations étudiées l'écart obtenu est compris entre -12.1% et 15.3% , ce qui semble raisonnable compte tenu de l'incertitude de mesure estimée dans la section 3.1.3.3. Le modèle numérique permet donc une estimation qualitative et quantitative cohérente du champ de vitesse généré par l'agitateur. Les écarts observés entre les simulations et les mesures peuvent être attribués en premier lieu à la modélisation de la turbulence. Des études réalisées sur le sujet [2, 52] montrent en effet que les modèles de type *RANS* ne permettent pas de prédire les profils de vitesse expérimentaux avec une grande précision. Des modèles plus évolués (de type *LES*) permettent d'améliorer sensiblement les résultats mais nécessitent des moyens de calcul plus conséquents [62]. La modélisation de la surface libre par une paroi plane peut également limiter la précision des résultats. Cependant, les déformations de surface libre observées expérimentalement sont négligeables pour les hauteurs de liquide de 20 et 15 cm. Pour une hauteur de 10 cm la déformation reste faible si la vitesse est inférieure à 100 rpm. On considère donc que ce paramètre a peu d'influence sur les résultats. Une comparaison des résultats numériques et expérimentaux obtenus dans les différents plans horizontaux et verticaux est détaillée dans l'annexe B pour les configurations 1, 2 et 3.

Tableau 3.6 – Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse moyenne obtenue numériquement sur une rotation complète par rapport à la valeur mesurée, dans le plan vertical $v1$ ($y = 0$ cm).

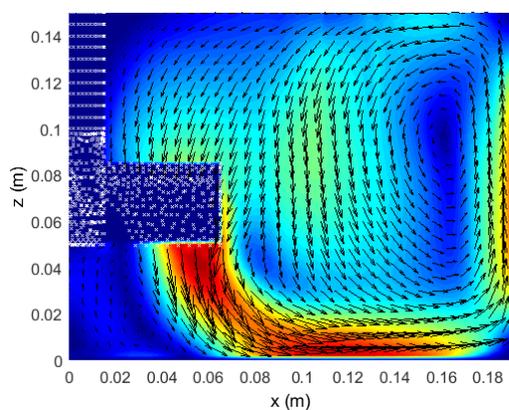
n°	N (rpm)	H (cm)	erreur relative
1	10	15	0.0609%
2	20	15	-0.805%
3	50	15	0.0633%
4	10	20	15.3%
5	20	20	-9.18%
6	50	20	-12.1%
7	10	10	-3.3%
8	20	10	6.53%
9	50	10	x
10	30	10	-10.8%



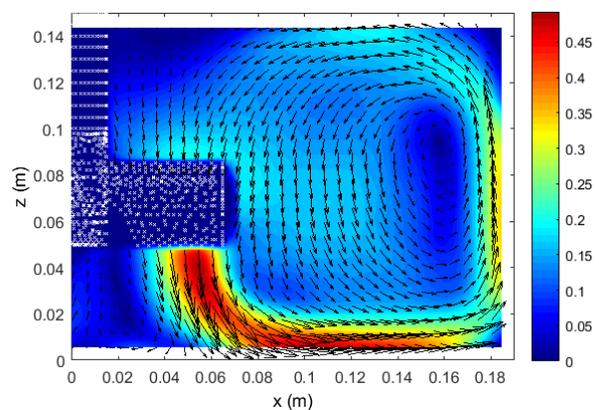
A1 - Simulation $H = 20$ cm ; $N = 20$ rpm



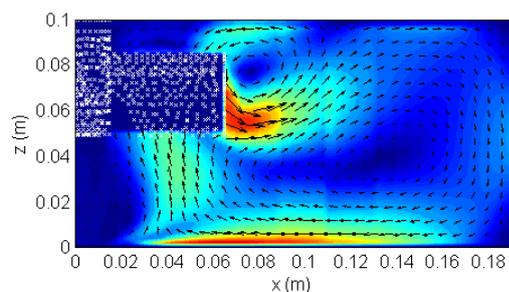
A2 - Mesure $H = 20$ cm ; $N = 70$ rpm



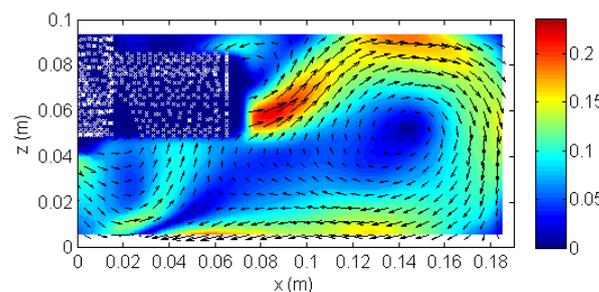
B1 - Simulation $H = 15$ cm ; $N = 20$ rpm



B2 - Mesure $H = 15$ cm ; $N = 70$ rpm



C1 - Simulation $H = 10$ cm ; $N = 20$ rpm



C2 - Mesure $H = 10$ cm ; $N = 70$ rpm

FIGURE 3.22 – Comparaison des champs de vitesse normalisés (moyennés sur plusieurs périodes) obtenus numériquement et expérimentalement pour différentes hauteurs de liquide et un nombre de *Reynolds* de 1.2×10^5 . Les données sont représentées dans le plan vertical v_1 ($y = 0$ cm). Les vecteurs représentent les deux composantes coplanaires de la vitesse (\bar{u} et \bar{w}) et les contours de couleur représentent l'amplitude de ces vecteurs normalisés. Le contour blanc dans les figures de droite correspond aux zones où nous ne disposons pas de mesure expérimentale.

Jusqu'à présent nous nous sommes intéressés aux champs de vitesse moyens obtenus lors des calculs transitoires. Ces champs sont issus de la moyenne temporelle des champs instantanés calculés à chaque pas de temps pendant une rotation complète de l'agitateur. Cependant, la caractérisation expérimentale des champs de vitesse a permis d'identifier des variations temporelles liées à la formation et à l'advection de tourbillons détachés pour les configurations avec des hauteurs de liquide de 15 et 20 cm (voir paragraphe 3.1.3.4). Ces tourbillons détachés ont également été observés numériquement comme le montre la figure 3.23. La figure 3.23.A représente un champ instantané de vitesse issu de la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm), et la figure 3.23.B représente la composante de vorticité ω_y associée à ce champ de vitesse. Ces deux figures permettent d'identifier un tourbillon détaché qui se forme au passage de la pale et qui est ensuite advecté dans le jet produit par l'agitateur. La simulation transitoire du brassage par maillage glissant permet donc de reproduire certains phénomènes instationnaires de l'écoulement étudié.

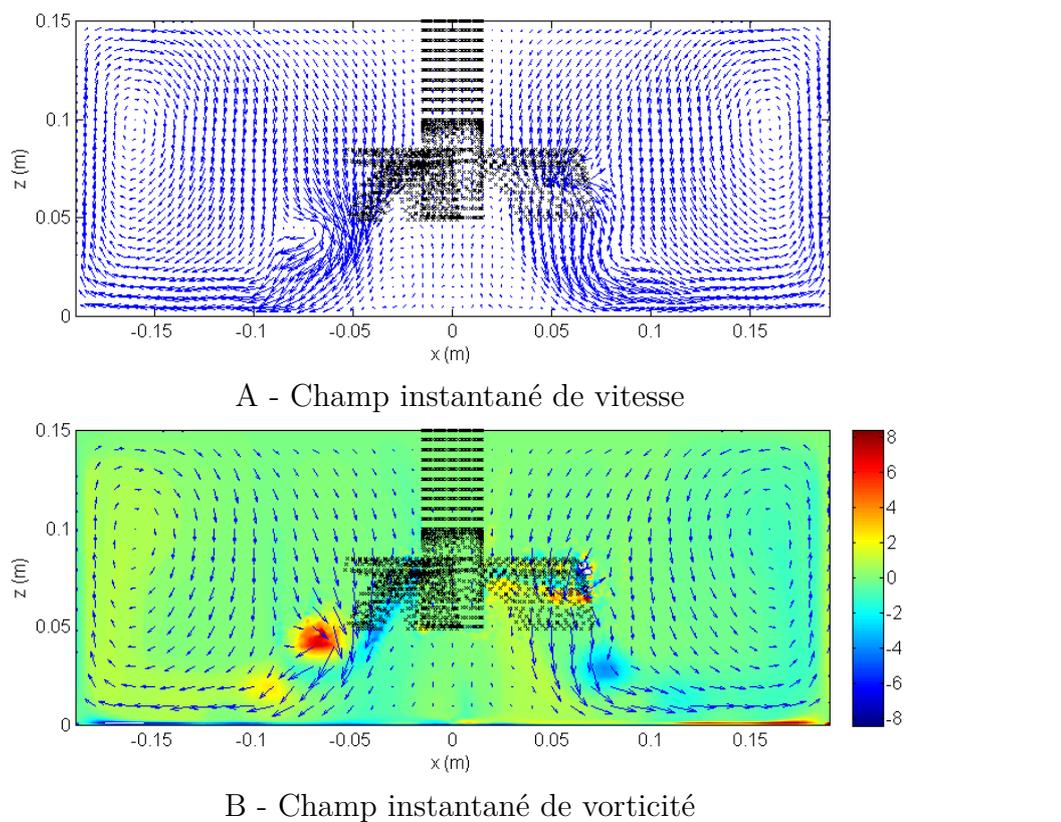


FIGURE 3.23 – Champs instantanés normalisés de vitesse (A) et de la composante de vorticité ω_y (B) obtenus numériquement pour la configuration 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). La vorticité est normalisée par la fréquence de rotation de l'agitateur exprimée en $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$.

3.2.3.3 Influence du brassage sur la ségrégation

Ce paragraphe présente les résultats des calculs de ségrégation obtenus pour les configurations de brassage du tableau 3.5. Dans la section 3.2.1.2 il est précisé que le calcul de ségrégation se base sur une hypothèse de régime quasi-stationnaire puisque la hauteur de liquide est constante au cours du calcul. La validité de cette approche quasi-stationnaire a été étudiée dans le chapitre 2. Il a été montré que cette approche est tout à fait valable lorsque les variations de la vitesse de solidification et du régime de convection sont lentes devant le temps caractéristique de diffusion à l'échelle de la couche limite solutale. Dans ces conditions la couche limite solutale peut s'adapter à ces variations sans déphasage temporel significatif.

Le brassage mécanique introduit des variations rapides de la convection dans la phase liquide. Ces variations ont pu être observées expérimentalement, notamment par la présence de tourbillons détachés. Les simulations transitoires de brassage permettent d'étudier ces fluctuations et leur influence sur la ségrégation. La figure 3.24 présente deux champs instantanés de contrainte de frottement à la paroi du fond obtenus pour la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). Ces champs instantanés sont séparés de 5 pas de temps, soit une rotation de 60° de l'agitateur. Ils mettent en évidence la variation temporelle de la contrainte de frottement locale avec la rotation de l'agitateur. Il faut alors déterminer si ces fluctuations sont susceptibles d'induire des variations du régime de ségrégation telles que celles qui ont été observées dans l'étude de la cavité entraînée (et éventuellement des micro-ségrégations).

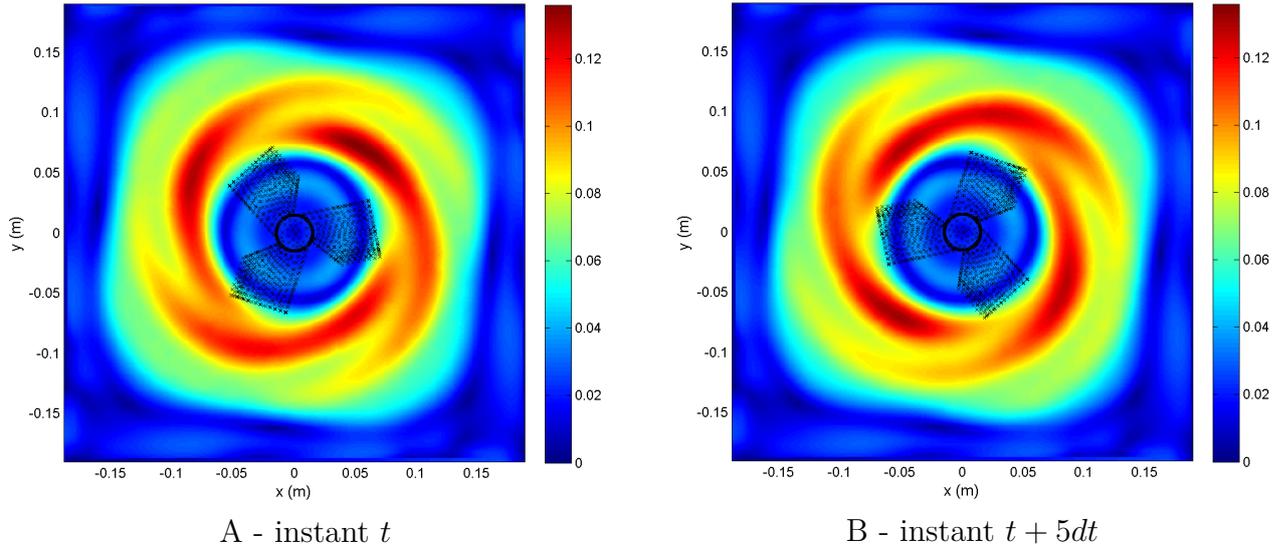


FIGURE 3.24 – Champs instantanés de contrainte de frottement à la paroi du fond (en Pa), pris à un instant t et 5 pas de temps après (soit après une rotation de 60° de l'agitateur). Configuration numérique 2 : $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.

Pour vérifier ce point, des profils instantanés de contrainte et de paramètre convecto-diffusif, constatés dans les simulations, ont été tracés suivant la diagonale du fond du creuset (partant du centre jusqu'au coin $x = 0.19$ m et $y = 0.19$ m). La figure 3.25 donne un exemple de ces profils pour la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). Les profils instantanés ont été relevés sur une rotation complète de l'agitateur (30 pas de temps) et un profil moyen a été calculé. Sur la figure 3.25 seulement 10 profils instantanés sont représentés afin d'améliorer la lisibilité de la figure. La figure 3.25.A met en évidence une variation temporelle significative de la contrainte. À l'inverse, la figure 3.25.B ne permet pas d'identifier de variation temporelle du profil de couche limite solutale.

Pour quantifier ces fluctuations temporelles nous avons calculé en chaque point de la diagonale l'écart relatif maximal entre la valeur instantanée de la contrainte $\tau(r, t)$ et la valeur moyennée au cours des 30 pas de temps $\overline{\tau(r)}$. Cet écart relatif, noté τ_{var} est défini par la relation suivante :

$$\tau_{var}(r) = \max \left(\left| \tau(r, t) - \overline{\tau(r)} \right| \right) / \overline{\tau(r)}. \quad (3.28)$$

τ_{var} représente alors un taux de variation local de la contrainte. La moyenne spatiale, suivant la diagonale, de ce taux de variation est donnée dans le tableau 3.7 pour chaque configuration de brassage. Ces taux de variation moyens sont compris entre 7.15% et 12.9% pour les configurations où l'écoulement est axial ($H = 15$ cm et 20 cm), ce qui montre bien que les fluctuations temporelles de contrainte sont significatives. Pour les configurations où l'écoulement est radial ($H = 10$ cm), les fluctuations sont plus limitées avec des taux de variation moyens compris entre

1.87% et 2.83%. La même analyse a été appliquée aux profils de paramètre convecto-diffusif. Les taux de variation moyens de Δ sont également donnés dans le tableau 3.7. Ils sont compris entre 0.08% et 1.24% et sont systématiquement inférieurs d'un ordre de grandeur aux taux de variation de la contrainte. Il semble donc que les fluctuations hydrodynamiques liées à la rotation de l'agitateur soient trop rapides pour que la couche limite solutale ait le temps de s'y adapter. Pour confirmer cette hypothèse il est possible de calculer la pulsation adimensionnelle Fq caractéristique du système à partir de la fréquence de rotation de l'agitateur et de la valeur moyenne de l'épaisseur de la couche limite solutale mesurée dans les simulations :

$$Fq = \frac{(3N)\langle\bar{\delta}\rangle^2}{D}, \quad (3.29)$$

où $\langle\bar{\delta}\rangle$ représente l'épaisseur moyenne de la couche limite solutale. Ce paramètre sans dimension est analogue à celui utilisé pour caractériser les fluctuations de la vitesse de solidification dans l'étude de la cavité entraînée (chapitre 2). Il compare la fréquence caractéristique de la perturbation au temps caractéristique de la diffusion à l'échelle de la couche limite solutale $t_c = \langle\bar{\delta}\rangle^2/D$. La fréquence de la perturbation est $3 \times N$ (en $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$) puisque l'agitateur étudié possède trois pales. Les valeurs moyennes du paramètre convecto-diffusif sur la paroi du fond ont été relevées pour chaque configuration dans le tableau 3.7 et permettent de déterminer directement les valeurs de $\langle\bar{\delta}\rangle$. Les pulsations caractéristiques Fq de chaque configuration ont été calculées par la relation (3.29) à partir de ces épaisseurs moyennes de couches limite solutales. On peut voir que les valeurs de Fq sont comprises entre 24 et 73. Les études théoriques et numériques sur le sujet [35, 45, 46] montrent que la transition entre les régimes haute et basse fréquence se passe pour Fq de l'ordre de 1. Ceci confirme que les fluctuations liées au brassage relèvent d'un régime haute fréquence avec un retard de la réponse de la ségrégation suffisamment important pour observer un "lissage" de la couche limite solutale dans le temps (filtrage des perturbations haute fréquence).

Remarque :

Concernant l'application du modèle analytique de couche limite solutale (paragraphe 3.2.3.4), il est donc préférable de considérer les profils de contrainte à l'interface moyennés sur plusieurs périodes. L'utilisation des profils instantanés de τ conduirait à des fluctuations temporelles non physiques de Δ_{th} .

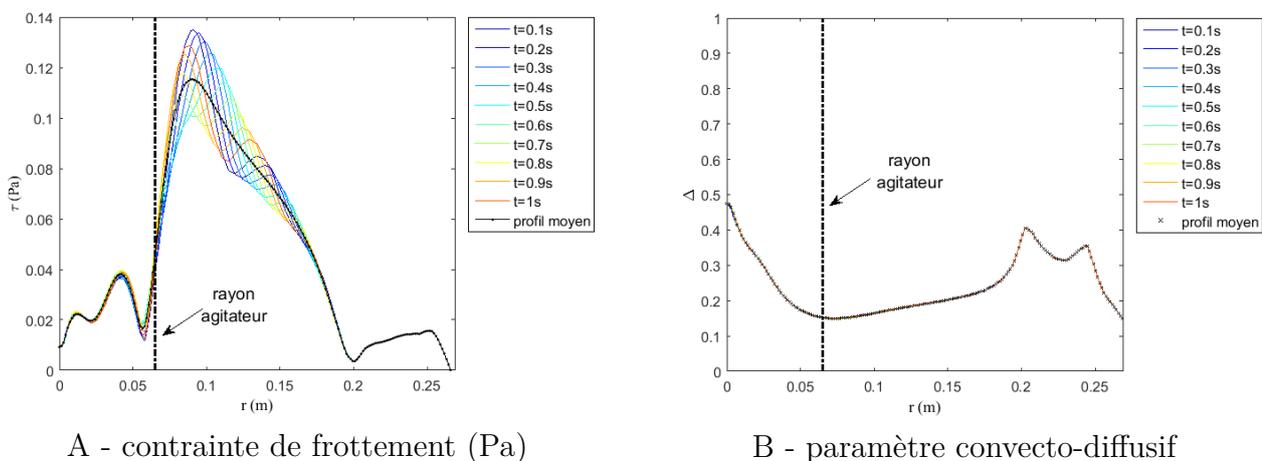


FIGURE 3.25 – Profils instantanés et moyens de contrainte de frottement (A) et de paramètre convecto-diffusif (B) constatés dans les simulations, suivant la diagonale de la paroi du fond, pour la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). L'abscisse r représente la distance par rapport à l'axe de rotation de l'agitateur le long de la diagonale du creuset.

Tableau 3.7 – Amplitudes moyennes des variations temporelles de τ et Δ au cours d’une rotation ; valeurs moyennes du paramètre convecto-diffusif sur le front de solidification et pulsation adimensionnelle caractéristique du système.

n°	N (rpm)	H (cm)	$\langle\tau_{var}\rangle$	$\langle\Delta_{var}\rangle$	$\langle\Delta\rangle$	Fq
1	10	15	7.15%	0.22%	0.339	36
2	20	15	9.42%	0.31%	0.233	34
3	50	15	12.9%	1.16%	0.123	24
4	10	20	8.16%	0.62%	0.338	36
5	20	20	11.0%	1.04%	0.237	35
6	50	20	11.5%	1.24%	0.127	25
7	10	10	1.87%	0.08%	0.481	73
8	20	10	2.22%	0.16%	0.333	69
9	50	10	2.83%	0.26%	0.205	66
10	30	10	2.41%	0.15%	0.271	69

Maintenant que l’hypothèse de quasi-stationnarité utilisée pour le calcul de la couche limite solutale est validée, il est possible d’étudier l’influence des paramètres de brassage sur la ségrégation. Les valeurs moyennes de paramètre convecto-diffusif relevées dans le tableau 3.7 montrent clairement l’influence de la vitesse de rotation avec une diminution de $\langle\Delta\rangle$ lorsque la vitesse augmente. La figure 3.26 présente les champs moyens de Δ obtenus pour une hauteur de liquide de 15 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm. Ces résultats correspondent à la moyenne temporelle obtenue sur une rotation complète de l’agitateur. Les figures montrent que l’augmentation de la vitesse de rotation permet de réduire l’épaisseur de la couche limite solutale de manière uniforme sur l’ensemble du front de solidification, même dans les coins du creuset. En effet, les valeurs maximales de Δ obtenues pour les configurations 1, 2 et 3 sont respectivement 0.72, 0.49 et 0.31. En terme de distribution spatiale, quelle que soit la vitesse de rotation, l’épaisseur de la couche limite solutale est plus importante dans les coins, à proximité des parois latérales et sous l’axe de rotation du brasseur. Cette répartition est cohérente avec les structures d’écoulements observées précédemment. Une optimisation de la géométrie des pales peut alors être envisagée afin de minimiser ces zones où la ségrégation est moins efficace.

Les valeurs moyennes du tableau 3.7 mettent également en avant une influence indirecte de la hauteur de liquide sur la ségrégation. En effet, pour une vitesse de rotation donnée, l’épaisseur de la couche limite solutale est plus importante pour les configurations à faible hauteur de liquide ($H = 10$ cm), où l’écoulement est radial, que pour les configurations où l’écoulement est axial ($H = 15$ cm et 20 cm). Ce type d’information est tout à fait pertinent pour le développement du procédé de purification puisqu’il peut permettre d’identifier un changement de régime de ségrégation au cours de la solidification dirigée. Là encore, une optimisation de l’agitateur peut être envisagée dans le but d’obtenir un écoulement axial pour des hauteurs de liquide plus faibles. La figure 3.27 présente les champs moyens de Δ obtenus pour une hauteur de liquide de 10 cm et des vitesses de rotation de 10, 20 et 50 rpm. On observe que la transition vers un régime de brassage radial modifie la répartition des zones de forte concentration à l’interface solide/liquide.

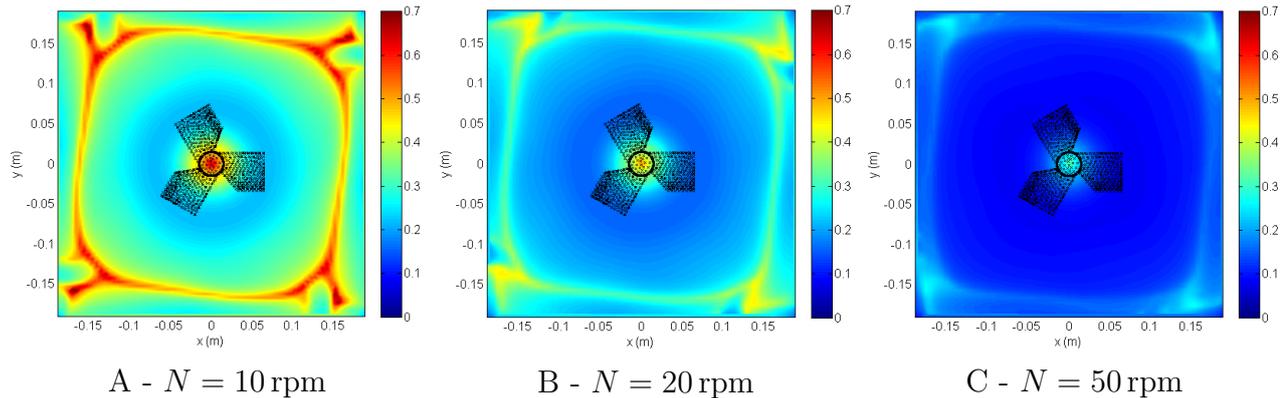


FIGURE 3.26 – Champs moyens du paramètre convecto-diffusif obtenus pour une hauteur de liquide $H = 15$ cm et différentes vitesses de rotation.

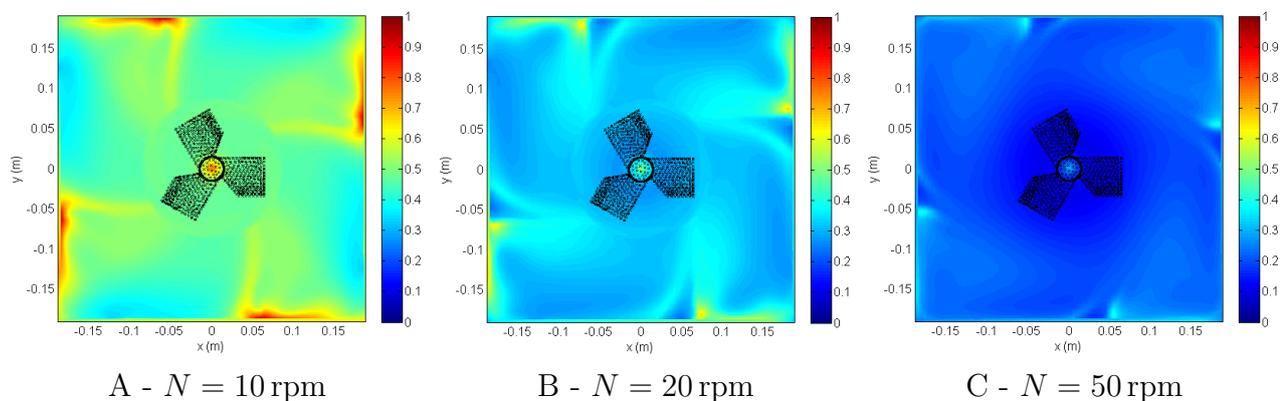


FIGURE 3.27 – Champs moyens du paramètre convecto-diffusif obtenus pour une hauteur de liquide $H = 10$ cm et différentes vitesses de rotation.

3.2.3.4 Application du modèle analytique

Afin d'estimer le régime de ségrégation associé à une configuration de brassage, il est possible d'utiliser le modèle analytique de couche limite solutale présenté dans la section 2.3. Ce modèle permet de déterminer le régime global de ségrégation à partir de la contrainte de frottement moyenne à l'interface solide/liquide. Les valeurs moyennes de contrainte sont relevées pour chaque configuration de brassage afin de calculer le paramètre sans dimension B associé. La demi-largeur du creuset, $L/2 = 0.19$ m, est utilisée comme longueur caractéristique des variations de vitesse (terme de longueur intervenant dans le paramètre B). Les valeurs numériques $\langle \Delta_{num} \rangle$ sont tracées en fonction de B sur la figure 3.28. Les séries de points correspondent aux différentes hauteurs de liquide étudiées. Une simulation supplémentaire a été réalisée avec une hauteur $H = 15$ cm et une vitesse de rotation $N = 100$ rpm afin de confirmer la tendance observée pour les régimes fortement convectifs. Ces valeurs sont comparées aux résultats analytiques Δ_{th} obtenus grâce à la relation (1.47) présentée dans la section 1.1.3 ainsi qu'aux résultats obtenus avec l'équation (2.28) qui prend en compte le transport par la turbulence. Les résultats issus des simulations transitoires 2D de cavité entraînée (voir chapitre 2) pour une diffusivité de $10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et une vitesse de solidification de $10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ sont également reportés. On remarque que les résultats de ségrégation avec brassage mécanique suivent la même tendance que les simulations 2D. Pour cette configuration de ségrégation, la relation (2.34) prévoit une valeur critique $B_c = 10$. Le modèle analytique présenté dans la section 2.3.1 permet alors de prédire efficacement le régime de ségrégation.

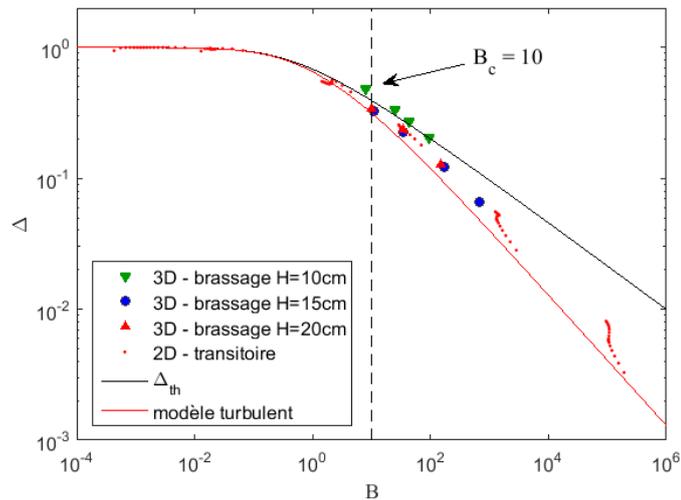


FIGURE 3.28 – Paramètre convecto-diffusif moyen $\langle \bar{\Delta} \rangle$ en fonction du paramètre $\langle \bar{B} \rangle$. Comparaison des résultats numériques des simulations de ségrégation sous brassage, des simulations transitoires 2D de cavité entraînée et des relations analytiques (1.47), notée Δ_{th} , et (2.28), notée modèle turbulent.

Comme pour l'étude de la cavité entraînée, le modèle analytique peut être utilisé pour estimer les ségrégations latérales. Pour cela, on utilise les valeurs locales de contrainte à l'interface. Idéalement, l'échelle de longueur qui intervient dans le paramètre B est définie par les longueurs caractéristiques des différentes recirculations de l'écoulement. Une procédure de détection des points caractéristiques est utilisée dans la section 2.3.4 pour le cas 2D. L'estimation de ces longueurs est plus délicate pour un écoulement 3D. En première approche, nous considérons deux longueurs caractéristiques définies par l'impact du jet de l'agitateur sur l'interface solide/liquide. Les recirculations situées dans les coins sont donc négligées. La figure 3.30.B représente le champ des vecteurs de contrainte sur le front de solidification. Les contours noirs représentent les changements de signe de la composante radiale de contrainte. Le cercle situé au centre correspond à l'impact du jet sur l'interface. Le rayon de ce cercle définit alors la longueur caractéristique de la recirculation située sous l'agitateur. En dehors du cercle, la recirculation principale occupe la majeure partie du creuset. La longueur caractéristique de cette recirculation est définie comme la demi-largeur du creuset (soit 19 cm) moins le rayon du cercle central.

Ensuite, le paramètre B est comparé à la valeur critique B_c en chaque point de l'interface. Le paramètre convecto-diffusif Δ est alors obtenu par la relation (1.47) si $B < B_c$ ou par la relation (2.33) si $B > B_c$. La figure 3.29 présente les champs moyens de Δ obtenus numériquement et analytiquement pour la configuration de brassage 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm), avec la même échelle de couleur. Le modèle analytique permet de retranscrire qualitativement les variations locales de Δ avec des valeurs faibles dans la zone du jet de l'agitateur et des valeurs plus importantes dans les coins, à proximité des parois latérales et sous l'axe de rotation. La figure 3.30.A présente l'erreur relative locale entre Δ_{th} et Δ_{num} . La valeur moyenne de cette erreur relative est de 19%. On remarque que les zones d'erreurs maximales sont localisées aux points d'impact du jet sur le front et à différents points caractéristiques près des bords. Ces erreurs sont équivalentes à celles observées au niveau des points caractéristiques pour la configuration 2D (voir section 2.3.2). Afin d'améliorer la qualité des résultats analytiques on peut envisager d'appliquer une procédure similaire à celle proposée dans la section 2.3.4 en caractérisant chaque recirculation et en filtrant les points d'arrêt.

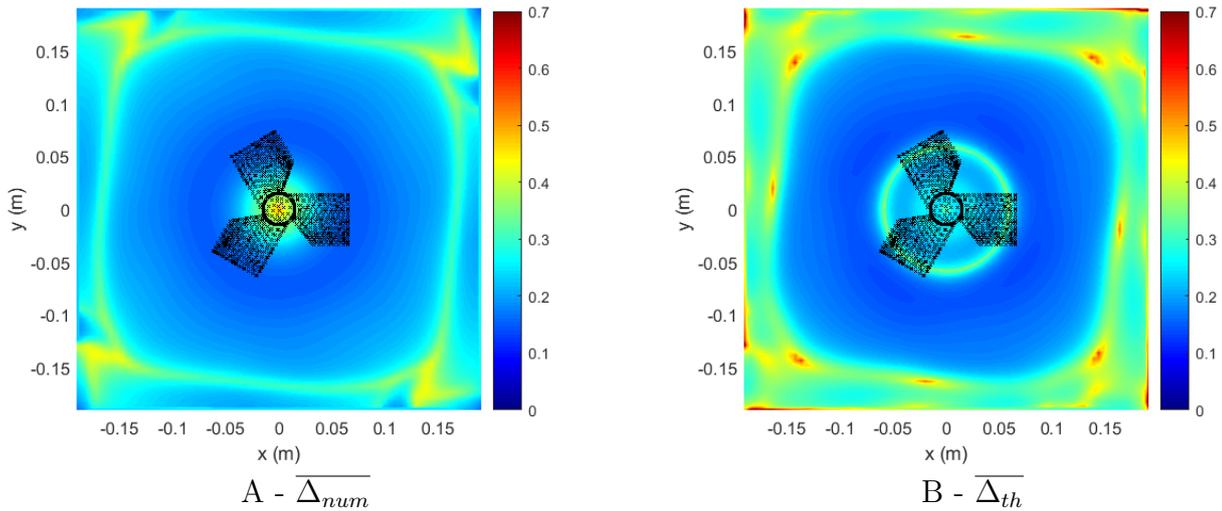


FIGURE 3.29 – Champs moyens des paramètres convecto-diffusifs numérique (A) et analytique (B) pour la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm).

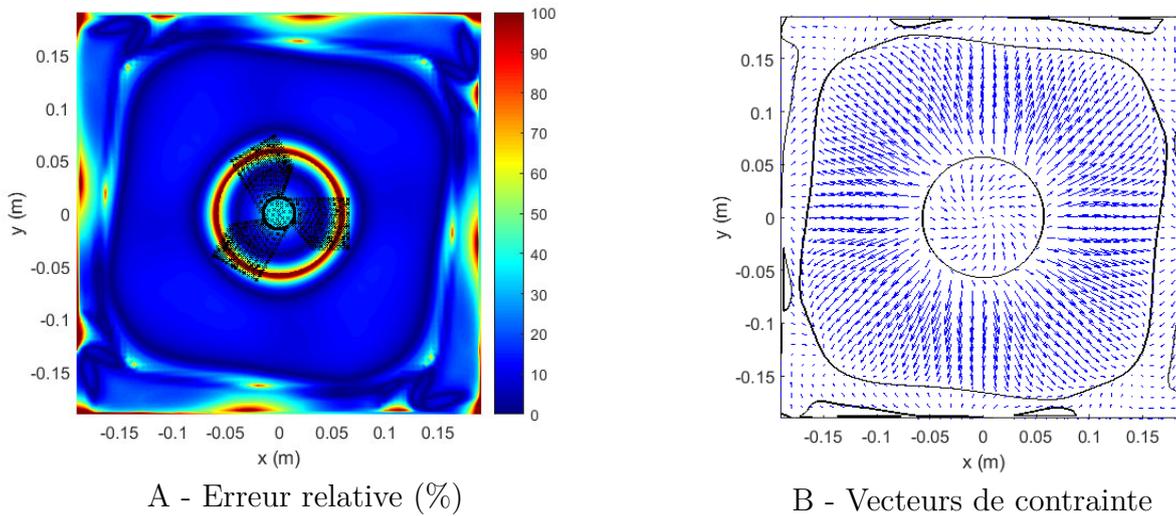


FIGURE 3.30 – Champ moyen de l'erreur relative entre $\overline{\Delta_{th}}$ et $\overline{\Delta_{num}}$ (A) et champ des vecteurs contrainte à l'interface (B) pour la configuration numérique 2 ($H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). Sur la figure (B), les contours noirs représentent les changements de signe de la composante radiale de contrainte.

3.3 Conclusion

Une caractérisation expérimentale de l'écoulement généré par un agitateur mécanique utilisé pour la purification du silicium a été réalisée à l'aide de mesures PIV. Les mesures ont été faites sur un dispositif expérimental avec de l'eau, placé en similitude de *Reynolds* avec le système réel. Cette caractérisation a permis d'identifier différents régimes de brassage en fonction de la hauteur de liquide dans la cuve et de la vitesse de rotation de l'agitateur. Des tourbillons détachés ont pu être observés pour les configurations à écoulement axial (hauteur de liquide de 15 cm et 20 cm).

Parallèlement, un modèle numérique de ségrégation sous brassage mécanique a été développé. Ce modèle utilise un maillage glissant afin de résoudre l'écoulement en régime transitoire. Les champs de vitesse obtenus ont pu être comparés aux mesures PIV. Les simulations permettent alors de reproduire la structure de l'écoulement pour les différentes configurations de brassage. D'un point de vue quantitatif, les amplitudes de vitesse obtenues numériquement sont cohérentes avec les valeurs mesurées. De plus, les tourbillons détachés mis en évidence expérimentalement sont également observés dans les simulations transitoires.

Par ailleurs, le calcul hydrodynamique est couplé à un calcul de ségrégation en régime quasi-stationnaire. Ce modèle permet donc de quantifier l'influence de l'écoulement de brassage sur la couche limite solutale. Différents régimes de ségrégation ont ainsi été identifiés pour les différentes configurations de brassage étudiées. Ces résultats numériques de ségrégation ont également été comparés au modèle analytique de couche limite solutale. Le modèle analytique permet alors une bonne estimation du régime global de ségrégation à partir de la contrainte de frottement moyenne à l'interface solide/liquide. Il permet également d'évaluer qualitativement les ségrégations latérales, mais la présence de points d'arrêt et de décollements limite la validité des résultats.

La méthode présentée semble pertinente pour optimiser les procédés de purification par ségrégation. Le modèle permet notamment de définir les conditions de brassage les plus favorables pour la ségrégation des impuretés vers le haut du lingot. L'application de la méthode de calcul analytique des profils de concentration présentée dans la section 2.3.4 à une configuration 3D avec brassage mécanique constitue une perspective intéressante. Le passage à une configuration 3D pose néanmoins plusieurs questions sur la définition des longueurs caractéristiques de recirculations et le traitement des points d'impacts et de décollements à l'interface. L'évolution temporelle de l'écoulement avec la réduction de la hauteur de liquide nécessite également une approche spécifique. Par ailleurs, le modèle développé dans cette étude ne donne pas d'information sur l'influence du brassage sur la thermique du procédé de solidification dirigée et sur la courbure de l'interface solide/liquide. Un modèle de solidification dirigée intégrant la convection forcée liée au brassage constituerait un outil complémentaire intéressant pour l'étude du procédé. Cependant, les échelles de temps caractéristiques de la solidification dirigée et du brassage mécanique sont très différentes. Ce problème nécessite donc une approche spécifique pour décrire l'écoulement de brassage sans utiliser la méthode de maillage glissant qui conduirait à un coût numérique trop important (en temps et moyens de calcul). La définition de termes sources de quantité de mouvement équivalents aux forces générées par l'agitateur, sur la base des champs de vitesses observés expérimentalement et par simulation avec maillage glissant, semble pertinente. Cette approche serait également compatible avec la description d'écoulements générés par acoustic streaming ou par un champ magnétique.

Chapitre 4

Simulation de la solidification dirigée sous brassage mécanique

Ce chapitre fait la synthèse des deux chapitres précédents puisqu'il s'intéresse à la simulation de la solidification dirigée en présence d'un brassage mécanique et à l'estimation des ségrégations par le modèle analytique de couche limite solutale. Des simulations de solidification ont été réalisées sur un centre de calcul de la FLMSN¹. La section 4.1 présente tout d'abord la configuration étudiée et les résultats obtenus pour la simulation 3D du procédé dans un régime de convection naturelle. La section 4.2 détaille ensuite l'approche utilisée pour simuler le procédé dans un régime de convection forcée. Afin de répondre à la problématique des différentes échelles de temps mises en jeu par la solidification et le brassage mécanique, un modèle de force volumique a été développé pour reproduire l'écoulement de brassage dans le silicium liquide. Enfin, dans la section 4.3, la procédure de calcul analytique des ségrégations présentée dans le chapitre 2 (section 2.3.4) est appliquée aux simulations de solidification dirigée. Les profils de concentration obtenus en convection naturelle et en convection forcée sont alors comparés aux lois analytiques de *Scheil* et du régime diffusif pur. Le but de ce chapitre n'est pas de traiter un calcul précis, mais plutôt de présenter un outil permettant de faire un calcul complet (3D instationnaire, intégrant la thermique, le brassage et la ségrégation), à un coût raisonnable en terme de moyens numériques. On souhaite ainsi tester la faisabilité et la mise en œuvre, et définir les perspectives et les limites de ce type d'approche.

4.1 Simulation du procédé en convection naturelle

4.1.1 Configuration étudiée

4.1.1.1 Description du four

Cette étude se base sur une configuration de solidification dirigée dans un four utilisé au LMPS pour la cristallisation de lingots G2 (de 60 à 90 kg de silicium) [1]. La figure 4.1 présente la géométrie du système. Le four, développé par la société TIV, utilise un système de chauffage résistif. Il comprend deux zones de chauffe, la première située au dessus du creuset et la seconde sous le creuset (à l'intérieur du bloc support). Afin de générer un gradient de température vertical adapté à la solidification dirigée du silicium, l'extraction de chaleur dans la partie basse est assurée par des volets mobiles. Lorsque ces volets sont ouverts, le bloc support en graphite rayonne directement sur la cuve extérieure (non représentée sur la figure 4.1), ce qui accroît le flux de chaleur à travers la paroi inférieure du creuset. La solidification se fait dans un creuset en silice. Afin de limiter la contamination du silicium, une atmosphère neutre d'argon est utilisée dans l'enceinte du four. La pression absolue est alors de 600 mbar. Le tableau 4.1 donne les propriétés thermiques du silicium et des matériaux utilisés pour les différents composants, à la température de fusion du silicium (1687 K [77]).

1. Fédération Lyonnaise de Modélisation et Sciences Numériques

Tableau 4.1 – Masse volumique, conductivité thermique, capacité thermique massique et émissivité à 1687 K, du silicium [43, 55, 67, 77, 84, 96] et des matériaux présents dans le four (propriétés issues de données constructeur).

	ρ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	λ ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	c_p ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	ε_{emis} (-)
silicium liquide	2550	56.5	1032	0.2
silicium solide	2310	19	1032	0.6
graphite dense	1830	45	381	0.85
graphite feutre	160	0.34	910	0.7
silice	2000	1.70	1369	0.9
argon	1.623	6.21×10^{-2}	520	-

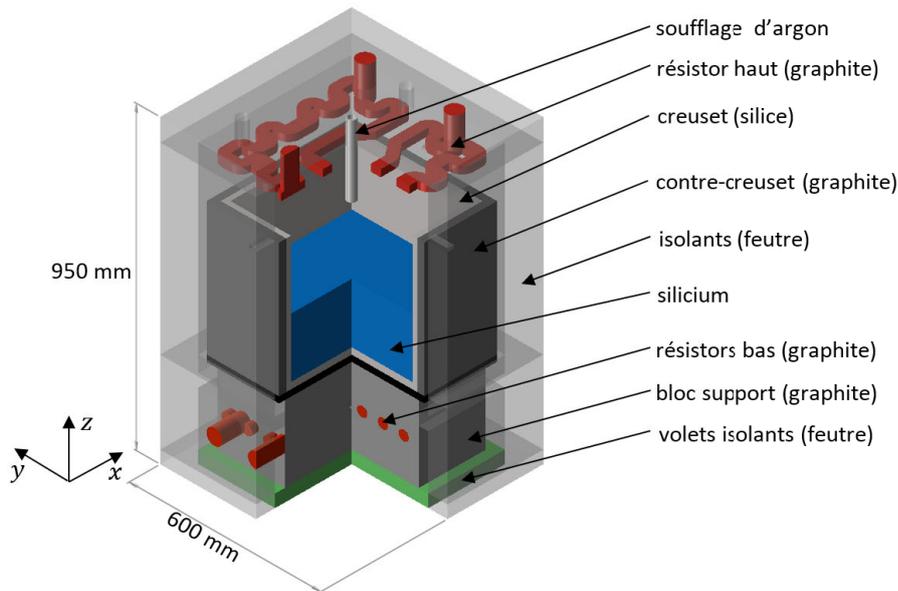


FIGURE 4.1 – Configuration du four de cristallisation étudié, description des principaux composants.

4.1.1.2 Cycle thermique

La figure 4.2 représente un cycle thermique classiquement utilisé pour la réalisation de lingots G2. Les températures dans la partie haute et dans la partie basse du four sont pilotées par deux thermocouples situés à proximité des résistors haut et bas. La puissance électrique injectée dans les résistors (de l'ordre de 10 à 50 kW) est alors asservie afin que les températures mesurées suivent les consignes programmées. Le cycle thermique comprend trois étapes principales :

- L'étape 1 correspond à la fusion. Les résistors haut et bas suivent une rampe de température afin d'atteindre respectivement 1780 K et 1680 K. Un palier de plusieurs heures est ensuite réalisé pour permettre la fusion de l'ensemble de la charge de silicium. Durant cette étape, les volets isolants sont fermés afin de limiter les pertes de chaleur vers l'extérieur.
- L'étape 2 correspond à la solidification dirigée. Le résistor bas suit une rampe de température afin de générer un gradient de température vertical dans le silicium. La durée de cette rampe peut varier en fonction de la vitesse de solidification recherchée. Parallèlement, le résistor haut suit une rampe de température beaucoup plus faible de manière à atteindre une température supérieure au point de fusion à la fin de la solidification. Afin d'assurer une extraction de chaleur suffisante pour le respect de la consigne de température dans la partie basse, les volets sont ouverts lorsque le résistor bas atteint une température voisine de 1520 K.

- L'étape 3 correspond au refroidissement contrôlé du lingot après solidification. L'objectif de cette étape est d'homogénéiser la température dans le lingot afin de relaxer les contraintes thermomécaniques. Cette étape permet notamment d'éviter une fissuration du lingot causée par des gradients thermiques importants dans le silicium solide lors du refroidissement. Les consignes des résistors haut et bas sont alors respectivement abaissée et augmentée afin d'atteindre une température identique de 1570 K. Un palier de 1 h est réalisé, puis un refroidissement contrôlé est assuré jusqu'à 870 K. Les résistors sont ensuite arrêtés. Durant toute cette étape les volets isolants sont fermés.

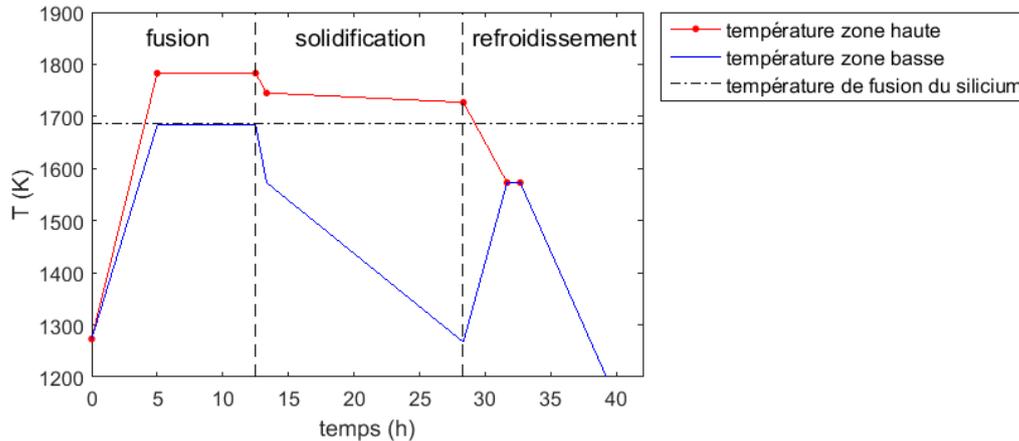


FIGURE 4.2 – Exemple de cycle thermique d'un procédé de solidification dirigée pour un lingot G2.

4.1.2 Modèles numériques

4.1.2.1 Transferts de chaleur

Le modèle numérique du four de solidification utilisé dans cette étude, est développé au LMPS par Mickael Albaric et David Pelletier [1]. L'objectif de ce modèle est de pouvoir simuler le procédé de solidification dirigée avec des conditions thermiques les plus proches possibles de la configuration réelle. Pour cela, les transferts thermiques entre les différents composants situés à l'intérieur de l'enceinte du four sont calculés. La convection dans le silicium liquide a une influence forte sur la solidification dirigée puisqu'elle modifie les gradients de température à l'interface solide/liquide. Les équations de *Navier-Stokes* (1.3) sont donc résolues dans le silicium avec une modélisation de la turbulence par un modèle RANS, et la convection naturelle est prise en compte par l'hypothèse de *Boussinesq* (voir section 1.1.1.1). En revanche, la convection dans la phase gazeuse (atmosphère d'argon) est négligée devant le rayonnement, comme c'est le cas dans d'autres études de ce type [12]. En effet, comme la majeure partie du cycle thermique se passe à haute température, les transferts thermiques par rayonnement sont prépondérants. L'argon est alors considéré comme immobile et transparent au rayonnement ($\varepsilon_{emis}^{Ar} = 0$). L'intensité du rayonnement émis et absorbé par les surfaces solides est définie par leur émissivité ε_{emis} (voir tableau 4.1). Ces surfaces sont supposées opaques. Le flux incident se divise donc en un flux absorbé et un flux réfléchi (transmission nulle dans les solides). L'équation de la chaleur (1.1) est résolue dans l'ensemble du domaine et le rayonnement est modélisé par l'approche *Discret Ordinates* proposée par FLUENT [49]. L'équation de transport de l'intensité rayonnée est alors résolue pour un nombre fini d'angles solides (associés à différentes directions de l'espace).

Le modèle numérique s'arrête au niveau des isolants internes du four (voir figure 4.1). La cuve métallique qui sert d'enceinte extérieure n'est pas modélisée. Des conditions aux limites

sont appliquées sur les faces externes des isolants afin de retranscrire les pertes de chaleur vers le milieu ambiant. Le flux de chaleur vers l'extérieur comprend alors un terme lié au flux par convection et un terme lié au flux par rayonnement. Il s'exprime par la relation suivante [49] :

$$q = h_{ext}(T_{ext} - T_w) + \varepsilon_{emis}\sigma(T_{\infty}^4 - T_w^4), \quad (4.1)$$

où h_{ext} , T_{ext} , T_{∞} , T_w , ε_{emis} et σ représentent respectivement le coefficient d'échange convectif ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$), la température du milieu ambiant (K), la température de la surface solide sur laquelle rayonne la face (K), la température de la face (K), l'émissivité de la face (-) et la constante de *Stefan-Boltzmann* ($\sigma \approx 5.670 \times 10^{-8} \text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-4}$). On suppose que la température ambiante et la température de la cuve sur laquelle rayonnent les isolants est de 300 K ($T_{ext} = T_{\infty} = 300 \text{K}$). Le coefficient d'échange convectif est fixé à $25 \text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Cette valeur a été déterminée par des simulations 2D de l'ensemble du four (incluant la cuve extérieure). On suppose également des contacts parfaits entre les différents solides du modèle, ce qui revient à négliger les résistances thermiques de contact.

4.1.2.2 Modèle enthalpique

On a vu dans la section 1.1.4 qu'il existe deux approches pour modéliser la solidification. La première consiste à définir explicitement l'interface solide/liquide et implique un remaillage dynamique pour suivre l'interface au cours du procédé. La seconde, appelée méthode enthalpique, utilise une description implicite de l'interface. C'est cette méthode qui est proposée dans FLUENT [49]. Le modèle mis en œuvre est celui proposé par Voller and Prakash [91]. L'enthalpie du matériau, H (en $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$), est alors définie comme la somme de la chaleur $c_p T$ et de la chaleur latente ΔH :

$$H = c_p T + \Delta H. \quad (4.2)$$

Afin de décrire le changement de phase solide/liquide, la chaleur latente doit être définie en fonction de la température. On utilise alors la fraction liquide locale f_L pour exprimer $\Delta H(T)$ de la manière suivante :

$$\Delta H(T) = \begin{cases} L, & \text{si } T \geq T_l \\ Lf_L, & \text{si } T_l > T \geq T_s \\ 0, & \text{si } T < T_s \end{cases} \quad (4.3)$$

T_s et T_l désignent respectivement les températures du solidus et du liquidus et L représente la chaleur latente de changement de phase, qui vaut $1.79 \times 10^6 \text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$ pour le silicium [67]. La fraction liquide locale f_L varie entre 0 (matériau solide) et 1 (matériau liquide). La zone de changement de phase ($0 < f_L < 1$) est appelée zone pâteuse. L'équation de conservation de l'énergie (1.1) s'écrit alors sous la forme :

$$\frac{\partial(\rho H)}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla(\rho H) = \nabla \cdot [(\lambda + \lambda_t) \nabla T], \quad (4.4)$$

où λ_t représente la conductivité thermique turbulente. Elle est définie par le nombre de *Prandtl* turbulent $Pr_t = \nu_t / [\lambda_t / (\rho c_p)]$ qui est supposé égal à 0.85. La fermeture du problème de solidification nécessite de définir la fraction liquide locale en fonction de la température. Pour une solidification avec zone pâteuse ($T_l \neq T_s$) on suppose une évolution linéaire de f_L , qui s'exprime par la relation suivante :

$$f_L = \begin{cases} 1, & \text{si } T \geq T_l \\ (T - T_s) / (T_l - T_s), & \text{si } T_l > T \geq T_s \\ 0, & \text{si } T < T_s \end{cases} \quad (4.5)$$

Cette formulation ne peut être appliquée dans le cas d'une solidification isotherme ($T_l = T_s$). La fraction liquide est alors calculée à l'aide d'une méthode alternative, proposée par Voller and Swaminathan [92]. Le lecteur peut se référer à la publication originale pour une présentation détaillée du calcul. On notera que cette méthode conduit implicitement à la définition arbitraire d'un intervalle de température, faible mais non nul, pour le changement de phase. En effet, elle fait intervenir un terme en df_L/dT dont la valeur en $T = T_s$ est définie arbitrairement grande (on ne connaît pas la valeur imposée dans FLUENT).

Dans la zone pâteuse, le matériau est traité comme un milieu poreux. Cette modélisation vise à décrire les caractéristiques de l'écoulement au niveau d'un front dendritique. Dans ce cas, les espaces entre les dendrites peuvent être vus comme des porosités qui rétrécissent à mesure que l'on se rapproche de la zone entièrement solide. La vitesse du fluide est alors amortie et tend vers 0 lorsque la fraction liquide locale diminue. Cet amortissement est décrit par un terme source de quantité de mouvement qui s'exprime de la manière suivante [49] :

$$S_{u_i} = \frac{(1 - f_L)^2}{(f_L + \epsilon)^3} A_{mushy} u_i, \quad (4.6)$$

où ϵ est une constante égale à 10^{-3} et A_{mushy} est le coefficient d'amortissement de la zone pâteuse (en $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$). Pour les configurations turbulentes, un terme source de la même forme est appliqué pour l'énergie cinétique turbulente k et le taux de dissipation ϵ (dans le cas où un modèle $k - \epsilon$ est utilisé).

On s'intéresse ici à la solidification d'un corps pur, avec un front lisse. Les températures du solidus et du liquidus sont donc égales ($T_s = T_l$) et la transition solide/liquide s'effectue de manière brutale, ce qui est équivalent à une zone pâteuse d'épaisseur nulle. On définit donc un coefficient d'amortissement élevé, $A_{mushy} = 10^6 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$, afin d'imposer des vitesses nulles dès que la fraction liquide devient inférieure à 1 et de conserver une zone pâteuse "numérique" la plus fine possible. La figure 4.3 présente l'évolution du terme source de quantité de mouvement en fonction de la fraction liquide pour différentes valeurs du facteur d'amortissement A_{mushy} . Ces courbes montrent bien qu'en imposant un facteur d'amortissement élevé le terme source de quantité de mouvement conserve une valeur forte pour une fraction liquide locale comprise entre 0 et 0.9.

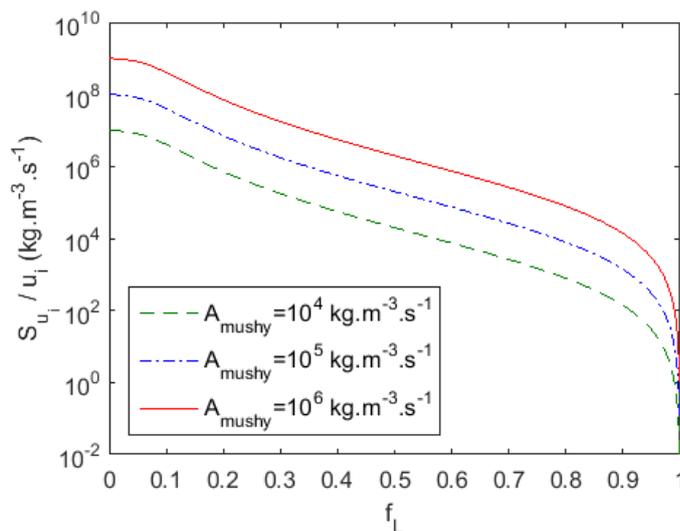


FIGURE 4.3 – Terme source de quantité de mouvement dans la zone pâteuse en fonction de la fraction liquide locale f_L , pour différents facteurs d'amortissement A_{mushy} .

4.1.2.3 Discrétisation spatiale et temporelle

Concernant la discrétisation spatiale, les mailles ont des dimensions de $4 \times 4 \times 4 \text{ mm}^3$ dans le volume de silicium. Un raffinement est appliqué aux parois afin d'améliorer le calcul des couches limites hydrodynamiques. Les mailles adjacentes aux parois ont une hauteur de 0.4 mm et un taux de croissance de 1.3 est imposé pour les mailles suivantes. Dans les autres parties du four les mailles ont des dimensions caractéristiques comprises entre 5 et 15 mm . Le maillage complet comprend 1.6 million d'éléments. La figure 4.4 présente une vue en coupe du maillage utilisé.

Pour la simulation du procédé de cristallisation, l'amplitude des pas de temps est fixée à 1 minute. Cette discrétisation temporelle semble raisonnable compte tenu de la vitesse de déplacement de l'interface (de l'ordre de quelques micromètres par seconde) et de la durée totale du cycle (une douzaine d'heures). On utilise un solveur ségrégué et des schémas numériques au second ordre pour la discrétisation spatiale et temporelle.

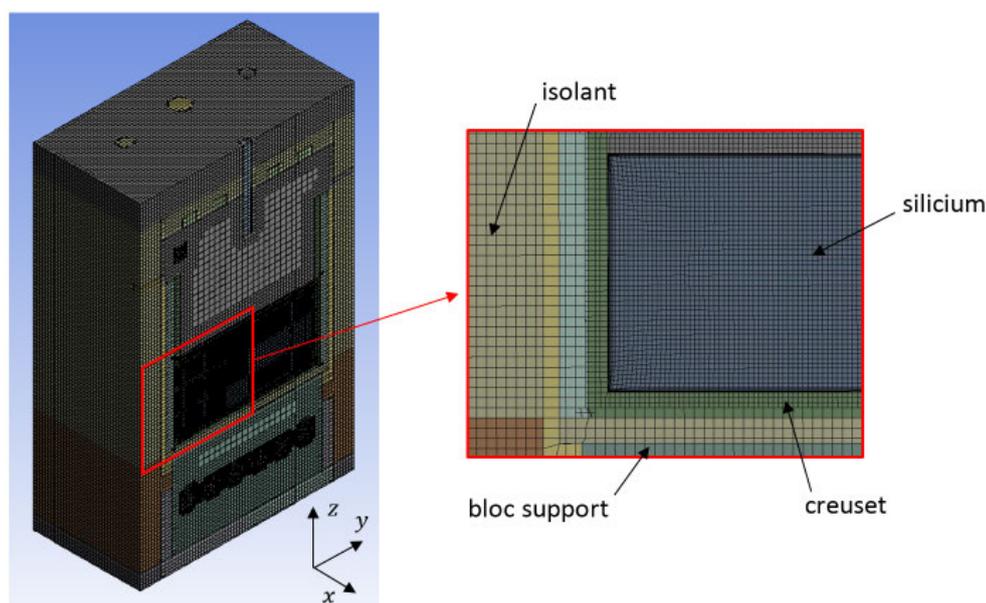


FIGURE 4.4 – Vue en coupe du maillage du four de solidification dirigée.

4.1.3 Résultats numériques de solidification

Dans un premier temps, le procédé est simulé dans un régime de convection naturelle. Un premier calcul a été réalisé avec le modèle de turbulence *realizable* $k-\varepsilon$, mais la solution obtenue n'est pas satisfaisante d'un point de vue physique. On observe en effet une forte diffusion de la zone pâteuse, entraînant une description erronée de la convection naturelle et de la forme du front de solidification. On utilise alors le modèle de turbulence $k-\omega$ *SST* (*Shear Stress Transport*) proposé par FLUENT [49], qui donne des résultats plus cohérents pour notre étude en convection naturelle. Le calcul est initialisé par une simulation en régime stationnaire avec des conditions de températures correspondant aux consignes du palier de fusion (voir figure 4.2). La charge de silicium est alors entièrement liquide. On notera que cet état stationnaire n'est pas représentatif des procédés industriels puisque la durée du palier de fusion est généralement insuffisante pour qu'un régime permanent du champ de température soit atteint. Une approche plus rigoureuse consisterait à simuler la fusion du silicium en régime transitoire. Cependant, nous ne cherchons pas ici à reproduire fidèlement une expérience de solidification donnée. Ce calcul en convection naturelle sert de cas de référence pour l'implémentation d'un terme de convection forcée et l'application de notre approche analytique pour l'estimation des ségréga-

tions. Afin de limiter les temps de calculs, nous faisons donc le choix de ne pas simuler la fusion.

Le calcul transitoire est réalisé jusqu'à ce que le lingot soit solidifié à 90%, ce qui représente une durée de 11.25 heures. La simulation nécessite alors 120 heures de calcul parallélisé sur deux nœuds équipés de 2 processeurs (8 cœurs, fréquence 2.6 GHz) et de 64 Go de RAM. La figure 4.5 donne l'évolution des températures au niveau des thermocouples dans les zones haute et basse du four au cours de la solidification. Le système de régulation des puissances permet un bon suivi des consignes imposées. L'ouverture des volets isolants à $t = 3.4$ h provoque une chute ponctuelle de température en partie basse. La figure 4.6.A représente l'évolution de la fraction solidifiée en fonction du temps. La solidification est initiée au bout de 40 minutes et la fraction solide augmente de façon monotone pour atteindre 90% à $t = 11.25$ h. La figure 4.6.B présente l'évolution de la vitesse de solidification en fonction du temps. Il s'agit d'une vitesse moyenne calculée à partir de la fraction solide totale. On observe alors des variations significatives, difficilement identifiables à partir de la figure 4.6.A. Entre $t = 2$ h et la fin du calcul la vitesse varie entre 3.8 et 5.1 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. La vitesse moyenne sur l'ensemble du cycle est alors de 4.3 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ (soit 1.5 $\text{cm}\cdot\text{h}^{-1}$).

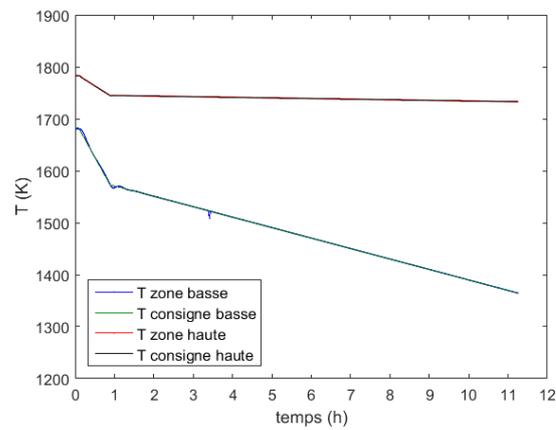
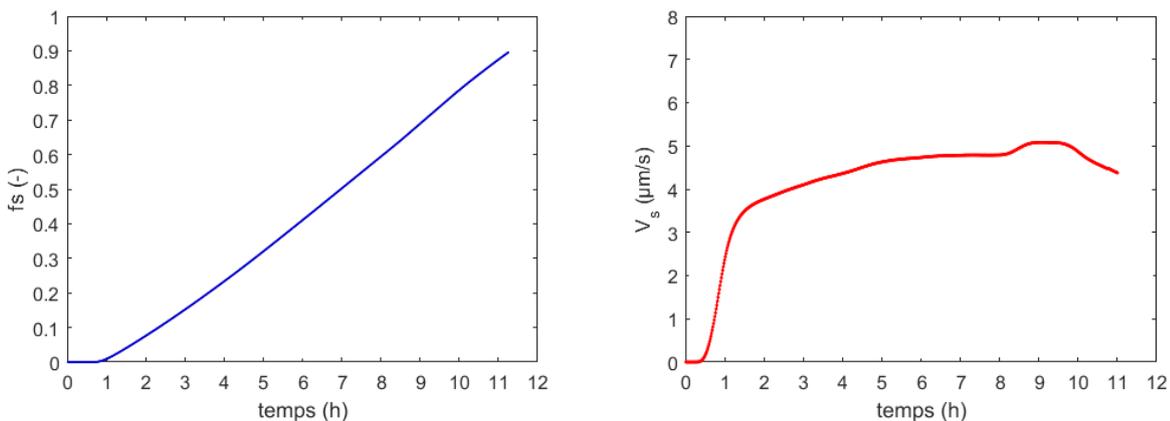


FIGURE 4.5 – Suivi des températures des zones haute et basse lors de la solidification en convection naturelle. Comparaison des températures de consigne et des températures enregistrées au niveau des thermocouples.



A - fraction solide.

B - vitesse de solidification.

FIGURE 4.6 – Évolution de la fraction solide (A) et de la vitesse de solidification (B) en fonction du temps, lors de la solidification en convection naturelle.

Les figures 4.7.A1, 4.7.B1 et 4.7.C1 présentent les champs de fraction liquide locale f_L dans le plan de symétrie $y = 0$ pour $t = 2$ h, 6 h et 10.8 h. Des isothermes dans la phase liquide sont également représentées par des traits continus à partir de la température de solidification du silicium. L'intervalle de température entre deux isothermes est de 0.5 K. L'interface solide/liquide est identifiée par la zone de transition entre $f_L = 0$ et $f_L = 1$. Cette transition s'effectue sur une distance de l'ordre de 1.2 cm, soit 3 mailles. Au début de la solidification, l'interface est globalement plane, excepté à proximité des parois latérales. La courbure des isothermes dans le liquide près des parois indique des pertes thermiques vers le creuset qui favorisent la solidification sur les bords. La courbure de l'interface augmente durant la solidification de la première moitié du lingot. La flèche entre le centre et le bord latéral gauche est alors de 3.8 cm à $t = 6$ h. Puis la courbure diminue progressivement durant la fin de la solidification, la flèche étant de 2 cm à $t = 10.8$ h. Les isothermes sont alors courbées jusqu'au centre du lingot.

Remarque :

Les figures 4.7.A1 et 4.7.A2 montrent des isothermes formant des contours fermés au voisinage de l'interface solide/liquide. Il s'agit d'un artefact lié à la modélisation de la solidification par la méthode enthalpique. On constate en effet que la fraction liquide locale reste légèrement inférieure à 1 sur une distance importante au dessus de l'interface dans le bain liquide, ce qui perturbe le champ de température dans cette zone. On suppose que ce problème est lié à la convection dans la zone pâteuse, qui est particulièrement sensible à la valeur du coefficient d'amortissement A_{mushy} .

Les figures 4.7.A2, 4.7.B2 et 4.7.C2 présentent les champs de vitesse dans la phase liquide aux trois instants considérés. Les vecteurs vitesse sont projetés dans le plan $y = 0$. Les amplitudes de vitesse sont de l'ordre de quelques millimètres par seconde. Au début de la solidification (figure 4.7.A2), on observe un écoulement descendant le long des parois latérales du fait du gradient de température local lié aux pertes thermiques. Cet écoulement n'affecte presque que les côtés du lingot et le cœur du bain est stratifié en température. Des recirculations apparaissent lorsque l'écoulement descendant rencontre l'interface solide/liquide et qu'il décolle. À $t = 6$ h, l'interface présente une courbure importante dans sa partie centrale (x compris entre -16 et 16 cm) mais reste plane sur les bords. On peut voir sur la figure 4.7.B2 que les recirculations ne suivent plus l'interface dans la partie centrale; il y a décollement lorsque le front devient courbe. On observe alors une zone morte au dessus de la partie concave du front. En fin de solidification (figure 4.7.C2), la hauteur de liquide devient faible ce qui modifie la topologie de l'écoulement. Les recirculations sont aplaties et suivent l'interface jusqu'au centre du lingot.

La figure 4.8 représente l'interface solide/liquide en 3 dimensions et des isovaleurs de l'amplitude des vitesses dans un plan diagonal, à $t = 6$ h. On peut voir que la courbure de l'interface est plus importante dans les coins, les pertes thermiques vers le creuset étant plus élevées. Par ailleurs, la structure du champ de vitesse observée sur la figure 4.7.B2 se retrouve dans le plan diagonal avec des vitesses élevées le long des arrêtes et faibles au centre.

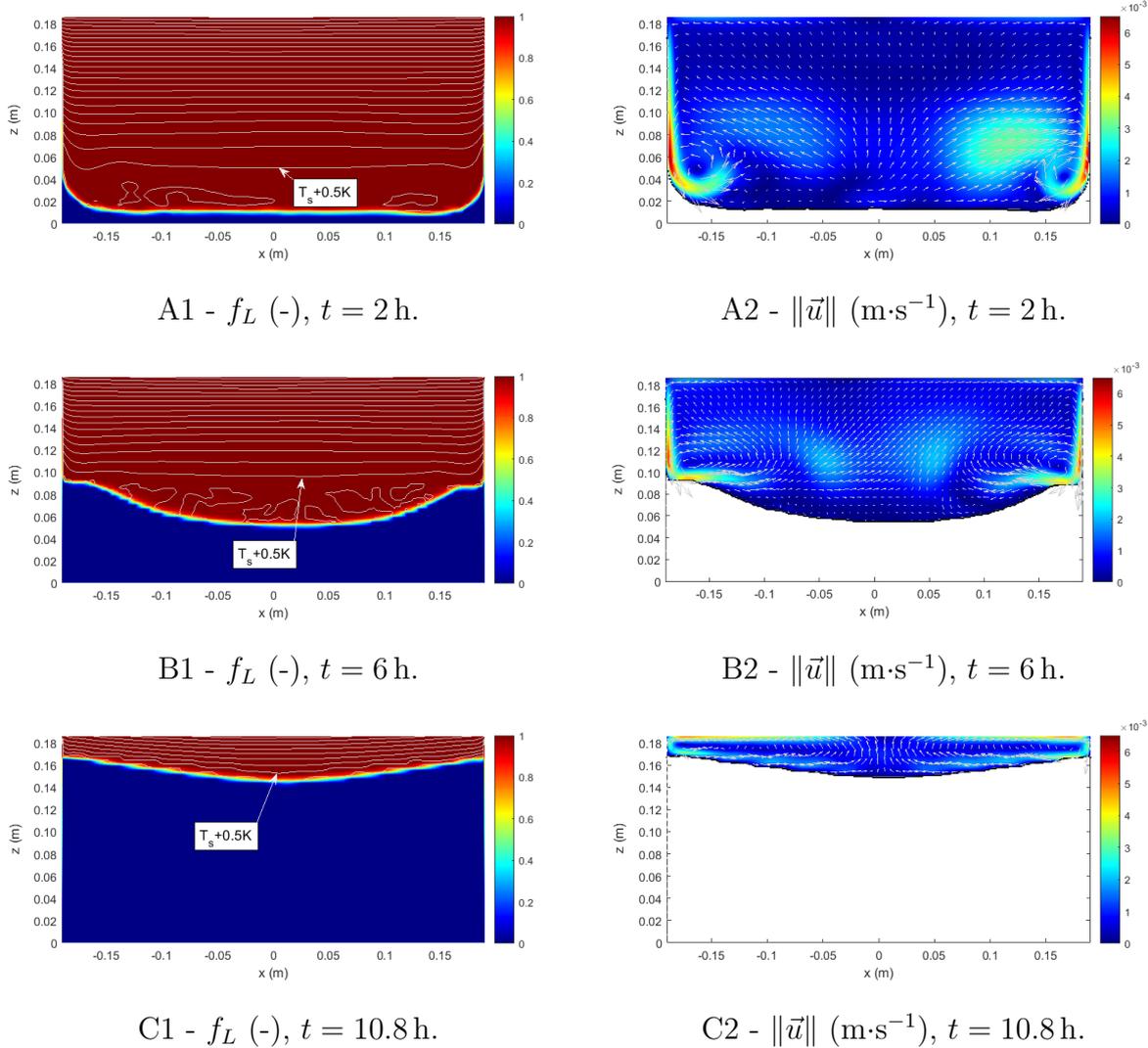


FIGURE 4.7 – Champs de fraction liquide et de vitesse dans le plan vertical $y = 0$, à $t = 2$ h (A), $t = 6$ h (B) et $t = 10.8$ h (C), pour le cas en convection naturelle. Les traits continus sur les figures (A1), (B1) et (C1) représentent des isothermes dans la phase liquide à partir de la température de solidification du silicium, avec un intervalle de température de 0.5 K.

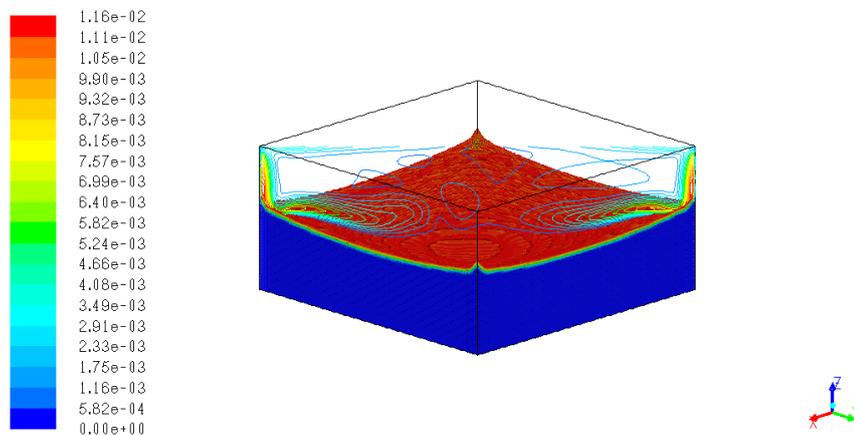


FIGURE 4.8 – Vue 3D de l'interface solide/liquide et des isovaleurs de l'amplitude des vitesses ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) dans le plan diagonal, pour le cas en convection naturelle à $t = 6$ h.

4.2 Simulation du procédé avec brassage mécanique

4.2.1 Modèle de forces volumiques

Dans la section précédente nous nous sommes intéressés à la solidification dirigée en convection naturelle. Nous cherchons maintenant à introduire un terme de convection forcée représentatif du brassage mécanique. Nous avons vu dans le chapitre 3 que le brassage mécanique peut être simulé de façon précise à l'aide d'une technique de maillage glissant. Cependant, cette méthode n'est pas compatible avec la simulation du procédé de solidification dirigée puisque l'échelle de temps relative à la rotation de l'agitateur est très faible devant le temps caractéristique de la solidification. En effet, dans les simulations présentées dans le chapitre 3, le pas de temps est de 0.1 s (pour une vitesse de rotation de 20 rpm) alors que le cycle de cristallisation dure plusieurs heures. La translation verticale de l'agitateur durant la solidification constitue une autre difficulté pour la mise en œuvre de la méthode de maillage glissant. Ce mouvement de translation, qui est nécessaire pour maintenir une certaine distance entre le brasseur et le front de solidification, implique un remaillage dynamique du volume de silicium à chaque pas de temps.

Compte-tenu de ces limitations, nous proposons un modèle simplifié du brassage mécanique basé sur des forces volumiques équivalentes. Cette approche a été évoquée dans la section 1.2.3. L'objectif est d'appliquer des forces volumiques dans le volume balayé par les pales de l'agitateur afin d'imposer un écoulement représentatif du brassage mécanique. On cherche donc à reproduire la solution obtenue avec un maillage glissant en moyenne sur plusieurs périodes puisqu'on néglige les fluctuations liées à la rotation des pales (voir section 3.2.3.3). L'écoulement est alors simulé en régime permanent du point de vue du brassage, ce qui supprime la contrainte liée à l'échelle de temps de la rotation. De plus, dans une simulation de solidification dirigée, le volume où les forces sont appliquées pourra facilement être modifié au cours du cycle afin de simuler la translation du brasseur. Cette méthode présente également l'avantage d'être aisément transposable à d'autres techniques de brassage telles que le brassage électromagnétique ou par ultrasons.

4.2.1.1 Bilan de quantité de mouvement

L'objectif de ce paragraphe est d'estimer les forces volumiques à partir des résultats des simulations de brassage avec maillage glissant (voir chapitre 3). Pour cela, on s'appuiera sur un bilan de quantité de mouvement. On considère un volume de contrôle représentant une portion du cylindre balayé par les pales de l'agitateur. Ce volume de contrôle, représenté sur la figure 4.9, est défini par deux surfaces horizontales situées au dessus et en dessous des pales (S_1 et S_2), une surface cylindrique d'un rayon légèrement supérieur à celui de l'agitateur (S_3) et deux surfaces verticales passant par l'axe de rotation et formant un angle de 10° (S_4 et S_5).

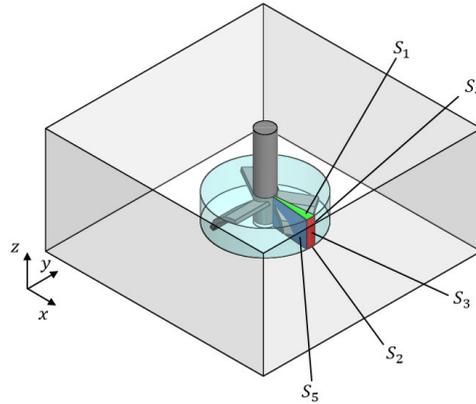


FIGURE 4.9 – Volume de contrôle utilisé pour le bilan de quantité de mouvement, délimité par les surfaces S_1 , S_2 , S_3 , S_4 et S_5 . Le volume cylindrique bleu représente le volume balayé par les pales de l'agitateur.

On applique alors le théorème de la quantité de mouvement à ce volume de contrôle :

$$\iiint_V \frac{\partial(\rho\vec{u})}{\partial t} dv + \iint_S \rho\vec{u}(\vec{u}\cdot\vec{n}) ds = \iiint_V \vec{f}_v dv + \iint_S \vec{f}_\tau ds + \iint_S (-p\vec{n}) ds. \quad (4.7)$$

\vec{f}_v représente le vecteur de force volumique que l'on cherche à déterminer et \vec{f}_τ représente les efforts normaux et tangentiels appliqués par les contraintes visqueuses sur les surfaces délimitant le volume de contrôle. Les forces exercées sur la surface de l'axe de rotation sont négligées. On cherche ici à générer un écoulement en régime stationnaire avec des forces constantes dans le temps et uniformément réparties dans le volume balayé par les pales. Une première méthode consiste à appliquer le bilan de quantité de mouvement directement sur l'écoulement moyenné en temps sur plusieurs périodes, le terme transitoire $\partial(\rho\vec{u})/\partial t$ étant alors nul. Une autre méthode consiste à appliquer le théorème de la quantité de mouvement aux champs instantanés obtenus à chaque pas de temps des simulations transitoires avec maillage glissant. Il faut ensuite calculer la moyenne temporelle des forces équivalentes ainsi obtenues. Nous avons pu voir que les deux approches conduisent dans notre cas à des résultats similaires. Nous choisissons donc de travailler directement à partir de la moyenne temporelle de l'écoulement. Les termes liés au débit sortant de quantité de mouvement ($\rho\vec{u}(\vec{u}\cdot\vec{n})$), aux efforts de pression ($-p\vec{n}$) et aux contraintes visqueuses (\vec{f}_τ) sont calculés par intégration numérique sur les 5 surfaces délimitant le volume de contrôle. La projection de la relation (4.7) suivant les directions \vec{x} , \vec{y} et \vec{z} permet alors de déterminer les trois composantes de \vec{f}_v dans le repère cartésien. Ces composantes sont égales aux composantes radiale (f_r), tangentielle (f_θ) et axiale (f_z) compte-tenu de la position choisie pour le volume de contrôle. Le tableau 4.2 donne les forces obtenues pour les différentes configurations de brassage. On remarque que la force radiale est nettement inférieure aux deux autres composantes pour les configurations à écoulement axial ($H = 15$ cm ou 20 cm). En revanche, les forces axiales et tangentielles sont toujours du même ordre et augmentent avec la vitesse de rotation (en valeur absolue).

Le modèle de forces volumiques est ensuite testé en régime stationnaire avec une hauteur de liquide constante et une interface solide/liquide plane (configuration identique à celle utilisée pour les simulations avec maillage glissant). Ces tests montrent que l'application de forces constantes et uniformes dans le volume balayé par les pales de l'agitateur, ne permet pas de retrouver un jet axial pour les configurations où $H = 15$ cm ou 20 cm. En imposant simultanément les trois composantes de force, on observe systématiquement un écoulement en rotation avec une composante de vitesse tangentielle qui prédomine. La contrainte de frottement à l'interface solide/liquide est alors sous-estimée. Afin de retrouver un écoulement axial similaire à

celui observé dans le chapitre 3 nous sommes contraints d'imposer une force purement axiale (forces radiales et tangentielles supposées nulles). Cette simplification constitue une première approche pour modéliser un agitateur à débit axial mais elle ne permet pas de retranscrire la transition vers un écoulement radial pour les faibles hauteurs de liquide, ce phénomène étant lié à la composante de rotation imposée par l'agitateur (voir section 3.2.3.2).

Tableau 4.2 – Forces volumiques obtenues par le théorème de la quantité de mouvement.

n°	N (rpm)	H (cm)	f_r ($\text{N}\cdot\text{m}^{-3}$)	f_θ ($\text{N}\cdot\text{m}^{-3}$)	f_z ($\text{N}\cdot\text{m}^{-3}$)
1	10	15	-2.26	24.4	-17.8
2	20	15	-6.14	100	-72.8
3	50	15	-22.5	656	-515
4	10	20	-4.57	22.5	-14.8
5	20	20	-11.7	83.1	-57.1
6	50	20	-73.5	511	-352
7	10	10	-3.93	9.31	-10.6
8	20	10	-13.4	36.5	-46.8
9	50	10	-56.7	220	-267

4.2.1.2 Ajustement de la force axiale

Nous avons fait le choix de modéliser le brassage par une force volumique axiale afin de reproduire le jet induit par l'agitateur. Le théorème de la quantité de mouvement nous donne une première estimation de l'amplitude de cette force pour une vitesse de rotation donnée. Afin d'améliorer la description de l'écoulement par cette approche simplifiée, une procédure itérative est mise en œuvre pour ajuster l'amplitude de f_z . Cette procédure consiste à calculer l'écoulement généré par la force axiale en régime stationnaire puis à corriger f_z pour se rapprocher de la solution de référence obtenue avec un maillage glissant. On choisit alors comme critère de convergence la contrainte de frottement moyenne à l'interface solide/liquide. Cette grandeur nous semble particulièrement pertinente puisque l'on s'intéresse en priorité aux conditions de convection au niveau du front de solidification. Afin de simplifier notre démarche, nous avons choisi d'appliquer une force d'amplitude constante au cours du procédé de solidification. La procédure de calage est alors appliquée aux configurations de brassage où la hauteur de liquide est $H = 15$ cm.

La figure 4.10 présente, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm, l'évolution de la force axiale (4.10.A) et de la contrainte moyenne (4.10.B) lors du calcul d'ajustement. La contrainte moyenne converge vers la valeur cible de 0.052 Pa pour une force axiale de $-112 \text{ N}\cdot\text{m}^{-3}$. Après convergence, des fluctuations de $\pm 2\%$ persistent. Le tableau 4.3 compare les forces obtenues avant et après correction pour les différentes vitesses de rotation. Les forces corrigées sont alors systématiquement supérieures aux forces initiales, avec des écarts compris entre 21% et 55%.

Tableau 4.3 – Forces axiales issues du théorème de la quantité de mouvement et ajustées.

n°	N (rpm)	H (cm)	f_z qdm ($\text{N}\cdot\text{m}^{-3}$)	f_z corrigée ($\text{N}\cdot\text{m}^{-3}$)
1	10	15	-17.8	-27.1
2	20	15	-72.8	-112
3	50	15	-515	-623

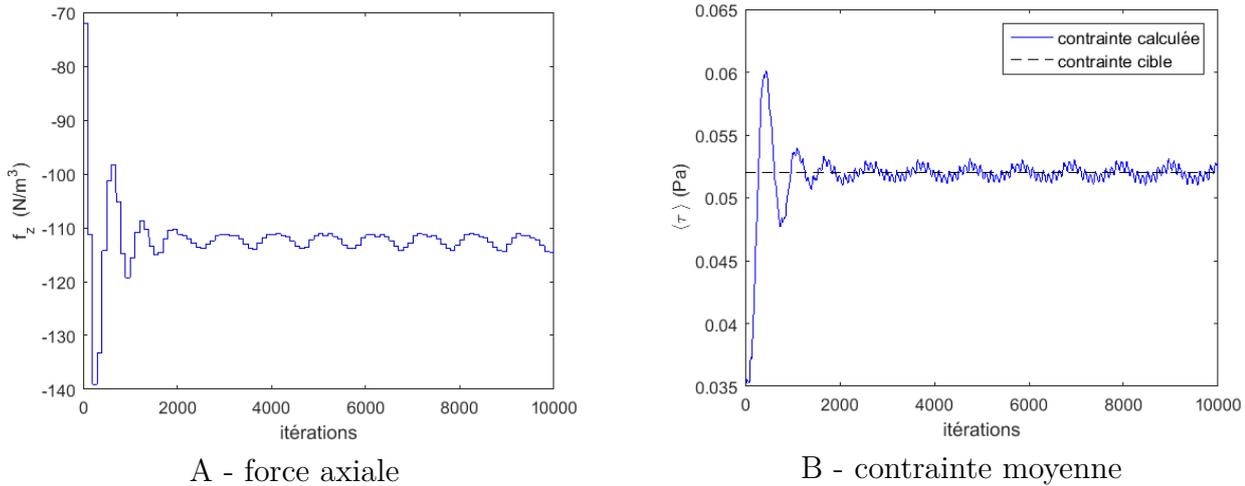


FIGURE 4.10 – Convergence de la force axiale (A) et de la contrainte moyenne à l’interface (B) lors du calcul d’ajustement, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.

La figure 4.11 présente le champ de vitesse obtenu avec une force axiale, dans le plan vertical $y = 0$, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm. Le rectangle rouge représente la zone où la force axiale est appliquée et le cadre noir matérialise l’axe de rotation de l’agitateur. Ce champ de vitesse peut être comparé aux résultats numériques et expérimentaux présentés dans le chapitre 3 (voir figure 3.22). On observe que le modèle de force volumique permet bien de retrouver le jet vertical dirigé vers l’interface, avec des recirculations principales qui occupent la totalité du creuset. On notera que l’axe de rotation de l’agitateur n’est pas physiquement représenté dans le modèle afin d’éviter la difficulté de le déplacer progressivement à chaque pas de temps. La figure 4.12 compare les champs de contrainte à l’interface solide/liquide obtenus par simulation transitoire avec maillage glissant (4.12A) et par simulation stationnaire avec une force axiale (4.12B) (toujours pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm). La répartition de contrainte obtenue avec le modèle de force volumique est en bon accord avec le résultat du calcul avec maillage glissant. Une zone de forte contrainte est située en périphérie de la zone balayée par les pales et des zones de faible contrainte sont observées sous l’agitateur et à proximité des parois latérales. La figure 4.13 présente les profils de contrainte suivant la diagonale pour la même configuration. Ces profils confirment les observations qualitatives faites sur la répartition des contraintes à partir de la figure 4.12. D’un point de vue quantitatif, le modèle de force volumique donne une amplitude de contrainte maximale de 0.115 Pa, soit un écart relatif de seulement 0.3% par rapport à la valeur maximale obtenue par simulation avec maillage glissant.

En conclusion, un modèle empirique de force volumique est proposé afin de simuler la convection forcée induite par un agitateur à débit axial. Ce modèle utilise uniquement une force axiale appliquée dans le volume balayé par les pales de l’agitateur. Les résultats obtenus en régime stationnaire montrent que la structure de l’écoulement et la répartition de contrainte à l’interface sont correctement décrites par cette approche compte tenu des hypothèses utilisées (force uniforme et unidirectionnelle). Cette méthode permet alors d’implémenter un terme de convection forcée dans les simulations de solidification dirigée présentées dans la section 4.1, dans le but d’estimer l’influence du brassage sur la solidification et la ségrégation.

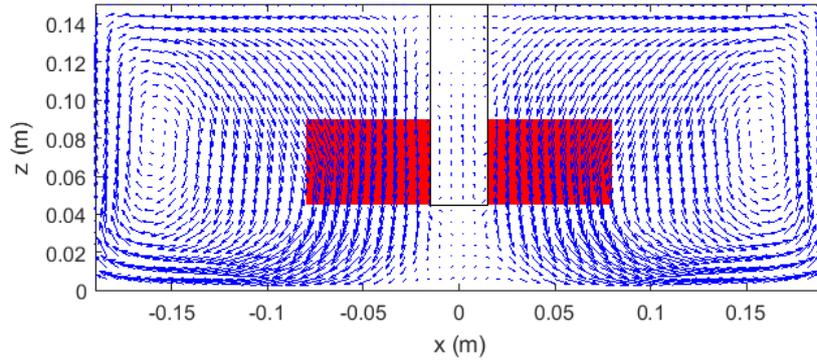


FIGURE 4.11 – Champ de vitesse obtenu avec une force axiale, dans le plan vertical $y = 0$, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm. Le rectangle rouge représente la zone où la force axiale est appliquée et le cadre noir matérialise l'axe de rotation de l'agitateur.

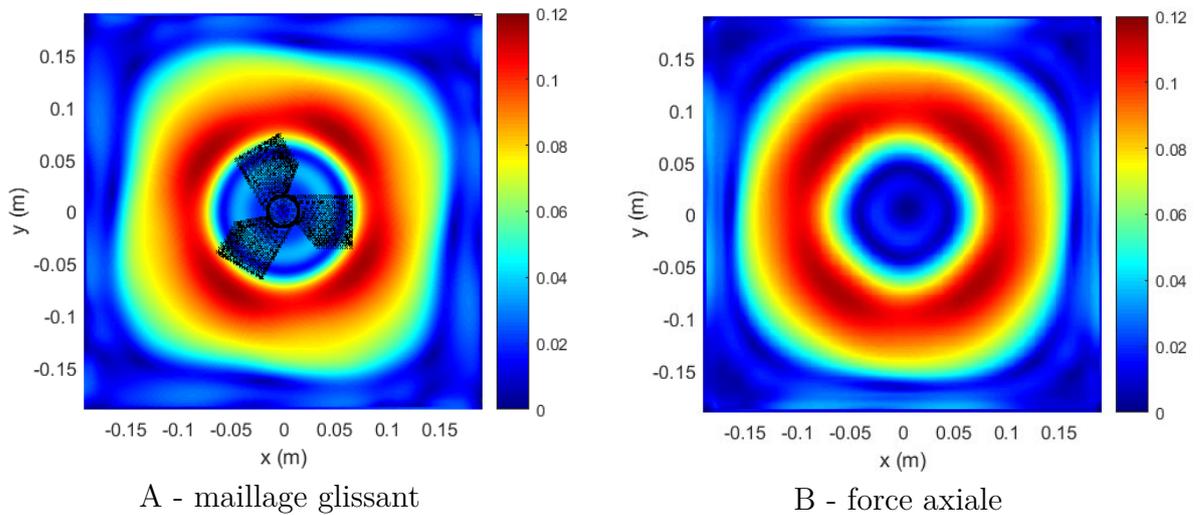


FIGURE 4.12 – Comparaison des champs de contrainte à l'interface solide/liquide obtenus par simulation transitoire avec maillage glissant (A) (en moyenne sur plusieurs périodes) et par simulation stationnaire avec une force axiale (B), pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.

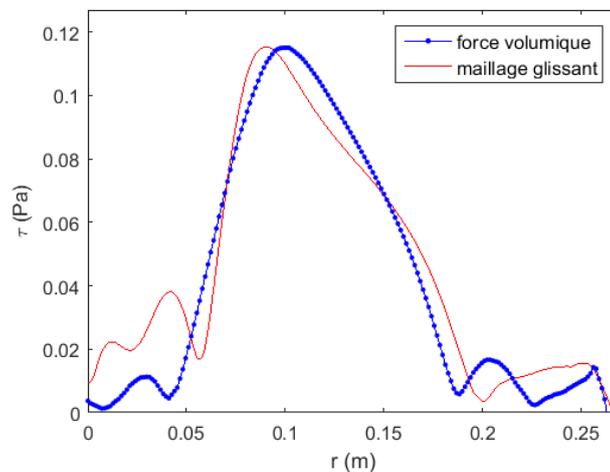


FIGURE 4.13 – Profils de contrainte suivant la diagonale obtenus par simulation transitoire avec maillage glissant et par simulation stationnaire avec une force axiale, pour la configuration $H = 15$ cm et $N = 20$ rpm.

4.2.2 Simulation de la solidification sous brassage

Le modèle de force volumique développé dans la section 4.2.1 est implémenté dans la simulation de solidification dirigée présentée dans la section 4.1. L'objectif est de simuler le procédé avec une convection forcée dans le bain de silicium. On travaille avec le modèle de turbulence *realizable* $k - \varepsilon$, le même que celui utilisé pour le développement du modèle de brassage.

Il faut alors déterminer les paramètres relatifs au système de brassage. Pour cette étude la force appliquée est $f_z = -112 \text{ N}\cdot\text{m}^{-3}$, ce qui est équivalent à une vitesse de rotation de l'agitateur de 20 rpm. Cette force de brassage est imposée dans un volume cylindrique équivalent au volume balayé par les pales de l'agitateur (voir figure 4.9). La distance entre la face inférieure du volume de brassage et la hauteur moyenne du front de solidification est fixée à 5 cm. La hauteur moyenne du front est calculée à chaque pas de temps par intégration de la fraction solidifiée et la position verticale du volume de brassage est ajustée en conséquence. La force de brassage est finalement arrêtée lorsque la surface supérieure du cylindre atteint la surface libre du bain de silicium.

Un premier calcul a été réalisé en utilisant les mêmes consignes de température que pour le cas en convection naturelle (voir figure 4.5). Le brassage homogénéise fortement la température dans le bain de silicium. L'extraction de chaleur en partie basse est alors insuffisante pour initier la solidification. Il est donc nécessaire de modifier les consignes de température pour l'étude en convection forcée.

Afin d'obtenir une extraction de chaleur suffisante pour permettre la solidification, le résistor bas est arrêté au début du calcul transitoire. La température en partie basse n'est donc plus pilotée et décroît rapidement. L'extraction de chaleur est alors maximale. La température en haut est maintenue à 1703 K. Un premier calcul a montré que ces consignes permettent la solidification avec brassage. Les amplitudes des vitesses dans la phase liquide sont cependant bien plus importantes que pour la convection naturelle (de l'ordre de $5 \times 10^{-2} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, voir figure 4.16). Cela entraîne un épaississement de la zone pâteuse par transport convectif. Le coefficient d'amortissement A_{mushy} est alors augmenté à $10^8 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ pour annuler complètement les vitesses et conserver une zone pâteuse fine. Les résultats de solidification en convection forcée sont donc difficilement comparables au cas en configuration naturelle présenté dans la section 4.1.3 puisque plusieurs paramètres sont modifiés. Il serait intéressant de simuler le procédé en convection naturelle avec les mêmes paramètres et les mêmes consignes de température que pour le cas en convection forcée. Cette configuration n'a pas encore pu être étudiée.

La figure 4.14 présente l'évolution des températures des thermocouples dans les zones haute et basse au cours du calcul transitoire. Ici les volets isolants sont ouverts à $t = 35 \text{ min}$. Avant l'ouverture, la zone haute passe d'une température initiale de 1772 K à la température consigne de 1703 K, soit 16 K au dessus de la température de solidification. Pour la zone basse on observe une diminution rapide de la température dès le début du cycle jusqu'à l'ouverture des volets. La température passe alors de 1689 K à 1523 K. Puis l'ouverture des volets provoque un refroidissement rapide lié au flux de rayonnement émis par le bloc support vers la cuve. On observe alors une rupture de pente avec à nouveau une diminution rapide de la température jusqu'à 1133 K à $t = 2 \text{ h}$. La température décroît ensuite plus lentement à mesure que le lingot se solidifie et que sa résistance thermique augmente. Lorsque le lingot est complètement solide le système tend vers un régime permanent et la température de la zone basse se stabilise à 1000 K vers $t = 8 \text{ heures}$. La figure 4.15.A présente l'évolution de la fraction solidifiée en fonction du temps. La solidification débute à $t = 22 \text{ min}$ et dure 5.5 heures. Cette figure montre également l'évolution de la force de brassage f_z imposée au cours du cycle et normalisée par sa valeur initiale $f_z(t_0) = -112 \text{ N}\cdot\text{m}^{-3}$. On peut voir que le brassage est arrêté à $t = 2.5 \text{ h}$, ce qui correspond à une fraction solide de 0.49. La figure 4.15.B présente l'évolution de la vitesse de

solidification obtenue à partir de la fraction solide totale. Cette vitesse croît jusqu'à $t = 1.6$ h pour atteindre $15.4 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ puis diminue jusqu'à la fin du cycle. Cette évolution est cohérente avec les variations des température de la zone basse observées sur la figure 4.14. La vitesse moyenne de solidification est alors de $8.4 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ (soit $3 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$), ce qui est presque deux fois plus élevé que pour le cas en convection naturelle. Des expériences de solidification dirigée ont été réalisées au LMPS avec des vitesses de cet ordre, dans une configuration thermique différente (voir annexe C). L'augmentation de la vitesse de solidification a pour but d'accroître la productivité des procédés de purification par ségrégation. Le brassage mécanique permet alors d'homogénéiser le bain en concentration et d'éviter la formation de précipités dans le cœur du lingot.

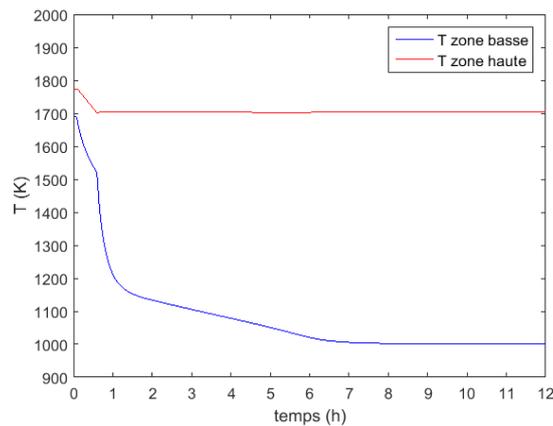


FIGURE 4.14 – Suivi des températures enregistrées au niveau des thermocouples des zones haute et basse lors de la solidification en convection forcée.

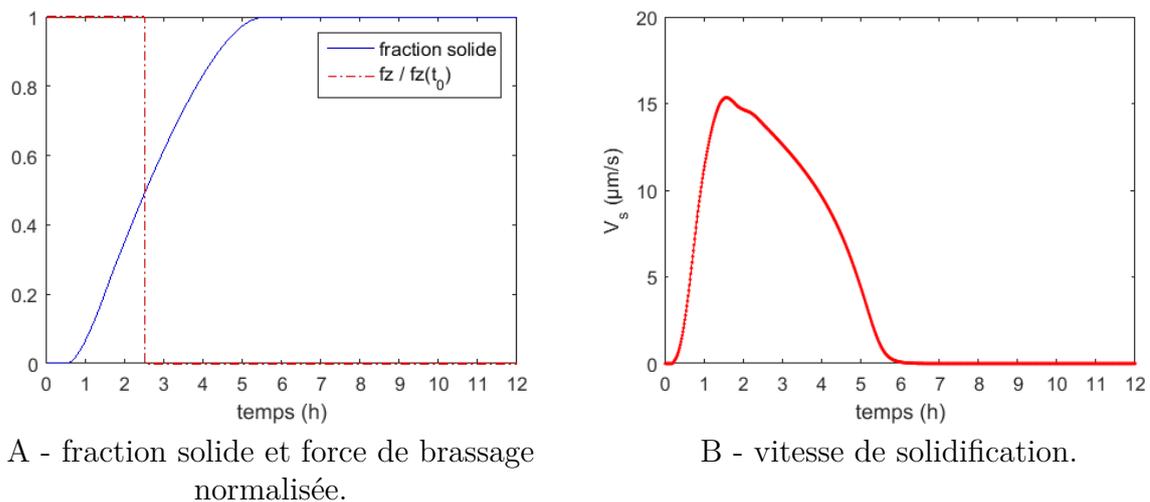


FIGURE 4.15 – Évolution de la fraction solide, de la force de brassage (A) et de la vitesse de solidification (B) en fonction du temps. La force de brassage est normalisée par sa valeur initiale $f_z(t_0) = -112 \text{ N}\cdot\text{m}^{-3}$.

La figure 4.16 présente les champs de fraction liquide et de vitesse dans le plan de symétrie $y = 0$ à différents instants du procédé. Comme pour la figure 4.7, des isothermes dans la phase liquide sont représentées par des traits continus avec un intervalle de température de 0.5 K (figures 4.16.A1, B1, C1 et D1). Les figures 4.16.A1 et 4.16.A2 correspondent au début de la solidification ($t = 1$ h). L'interface solide/liquide est alors globalement plane, excepté sur les bords où la solidification s'effectue rapidement. On voit en effet sur la figure 4.16.A1 qu'une

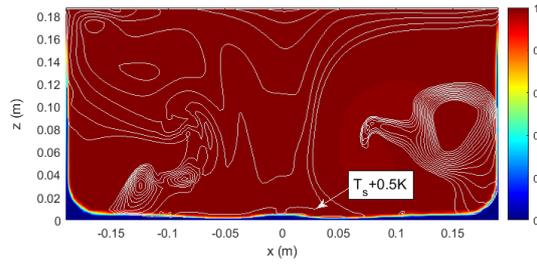
fine couche solide s'est formée sur les parois latérales jusqu'à une hauteur $z = 16$ cm. La figure 4.16.A2 montre que la force volumique imposée dans la phase liquide entraîne bien un jet axial venant impacter le front de solidification. Les vitesses dans le jet sont alors comprises entre 10^{-2} et $5 \times 10^{-2} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, ce qui est supérieur d'un ordre de grandeur aux vitesses générées par la convection naturelle (voir figure 4.7). On remarque également que la couche de solide sur la paroi du fond est plus fine dans la zone d'impact du jet. On peut donc penser que le jet apporte un flux de chaleur dans cette zone de l'interface, ce qui ralentit localement la solidification. D'autre part, les isothermes de la figure 4.16.A1 présentent une structure complexe. Comme pour le cas en convection naturelle, le début de la solidification est instable d'un point de vue numérique. Des fractions liquides locales légèrement inférieures à 1 sont observées dans le liquide, relativement loin du front de solidification. Cela perturbe le champ de température dans le bain liquide. Ce phénomène est vraisemblablement un artefact causé par des vitesses trop élevées dans la zone pâteuse.

Les figures 4.16.B1 et 4.16.B2 représentent l'interface et l'écoulement juste avant l'arrêt du brassage ($t = 2.5$ h). Une couche de solide est maintenant présente sur toute la hauteur des parois latérales. Dans sa partie centrale (de $x = -16$ à 16 cm), l'interface est concave avec une flèche de 6.6 cm. On peut voir sur la figure 4.16.B2 que le volume où la force de brassage est imposée a été translaté vers le haut pour suivre le déplacement du front. La courbure de l'interface entraîne une diminution de l'amplitude des vitesses aux points d'impact du jet par rapport à la figure 4.16.A2. Le système de brassage permet néanmoins une forte homogénéisation de la température dans le bain liquide, comme le montrent les isothermes de la figure 4.16.B1.

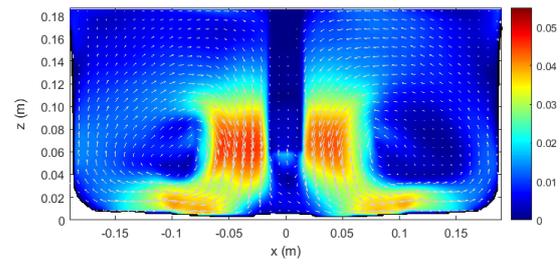
Les figures 4.16.C1 et 4.16.C2 sont obtenues 5 minutes après l'arrêt du brassage ($t = 2.58$ h). La forme de l'interface reste identique à celle observée à $t = 2.5$ h. On observe maintenant un écoulement de convection naturelle dans la phase liquide, lié à un gradient de température horizontal près des parois latérales. Les amplitudes de vitesse sont inférieures à $5 \times 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. L'écoulement de convection forcée par le brassage a donc eu le temps d'être atténué par dissipation visqueuse. Des recirculations principales, tournant en sens inverse des recirculations créées précédemment par le brasseur, se forment à proximité de chaque paroi latérale et décollent de l'interface en $x = -11$ et 11 cm respectivement. Des recirculations secondaires sont alors observées entre ces décollements.

Enfin, les figures 4.16.D1 et 4.16.D2 sont obtenues en fin de solidification, à $t = 4.5$ h. L'interface présente une courbure régulière avec une flèche de 6.3 cm. Les recirculations principales occupent toute la cavité liquide et suivent l'interface jusqu'au centre.

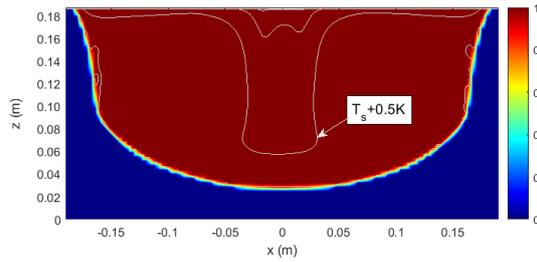
La figure 4.17 présente une vue de l'interface solide/liquide et de l'amplitude du champ de vitesse dans un plan diagonal, avant et après l'arrêt du brassage ($t = 2.5$ h et $t = 3$ h). On peut voir sur la figure 4.17.A que le brassage structure l'écoulement dans tout le liquide avec des vitesses de l'ordre de $10^{-2} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Des zones de faible vitesse peuvent être observées à proximité des coins et de la surface libre. La figure 4.17.B montre que l'écoulement de convection naturelle a une structure tout à fait différente, avec des recirculations principales confinées à proximité des parois latérales. La partie centrale de la phase liquide présente alors des vitesses relativement faibles (de l'ordre de $10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).



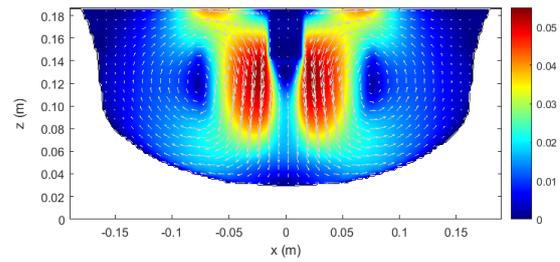
A1 - $f_L (-)$, $t = 1$ h.



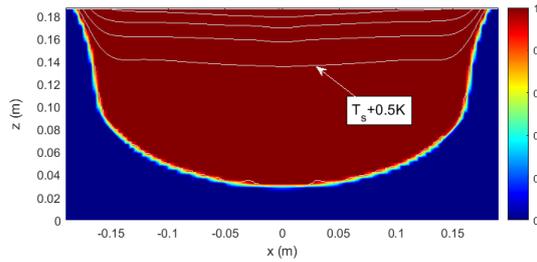
A2 - $\|\vec{u}\|$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), $t = 1$ h.



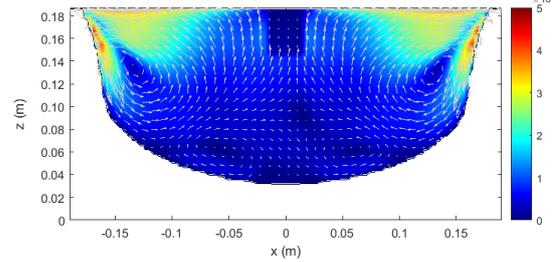
B1 - $f_L (-)$, $t = 2.5$ h.



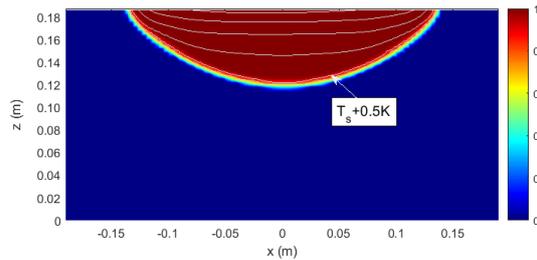
B2 - $\|\vec{u}\|$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), $t = 2.5$ h.



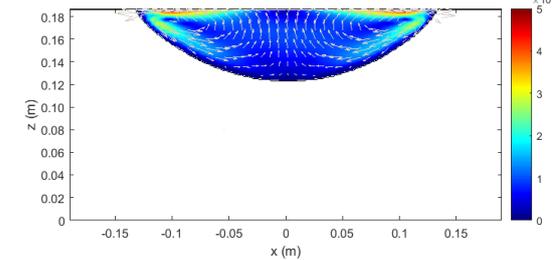
C1 - $f_L (-)$, $t = 2.58$ h.



C2 - $\|\vec{u}\|$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), $t = 2.58$ h.

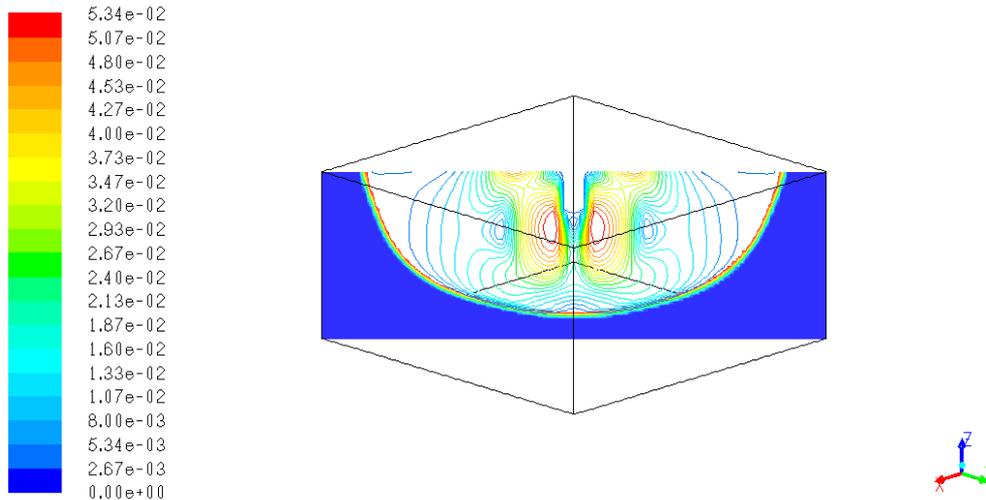


D1 - $f_L (-)$, $t = 4.5$ h.

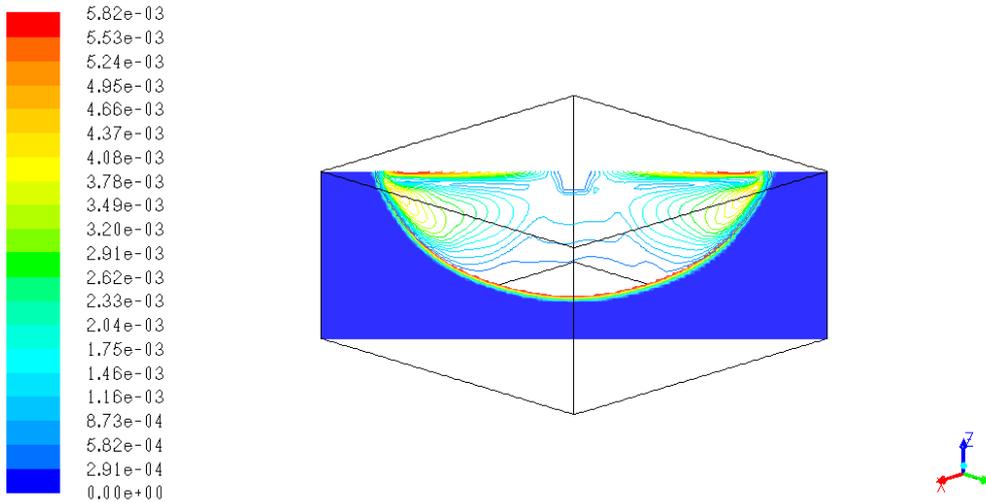


D2 - $\|\vec{u}\|$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), $t = 4.5$ h.

FIGURE 4.16 – Champs de fraction liquide et de vitesse dans le plan vertical $y = 0$, à $t = 1$ h (A), $t = 2.5$ h (B), $t = 2.58$ h (C) et $t = 4.5$ h (D). La force de brassage est active pour les figures (A) et (B) et inactive pour les figures (C) et (D). Les échelles de couleurs des amplitudes de vitesse sont différentes pour les écoulements de convection forcée (A.2 et B.2) et de convection naturelle (C.2 et D.2). Les traits continus sur les figures (A1), (B1), (C1) et (D1) représentent des isothermes dans la phase liquide à partir de la température de solidification du silicium, avec un intervalle de température de 0.5 K.



A - $t = 2.5$ h, convection forcée.



B - $t = 3$ h, convection naturelle.

FIGURE 4.17 – Vue de l’interface solide/liquide et de l’amplitude du champs de vitesse dans le plan diagonal, à $t = 2.5$ h (A) et $t = 3$ h (B). L’échelle de couleurs correspond à l’amplitude des vitesse en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

4.3 Estimation de la ségrégation

Une procédure permettant de calculer les concentrations dans le solide à partir d'une simulation hydrodynamique a été présentée dans la section 2.3.4. Nous essayons ici d'adapter cette procédure aux résultats des simulations de solidification dirigée en 3D. Contrairement au cas de la cavité entraînée, l'interface est définie de façon implicite par la fraction liquide locale. Des étapes de traitement supplémentaires sont alors nécessaires pour déterminer la contrainte pariétale au front de solidification. Nous présentons tout d'abord la démarche mise en œuvre pour traiter cette nouvelle configuration. Nous analysons ensuite les résultats obtenus en convection naturelle et en convection forcée. Ces calculs de ségrégation sont réalisés à l'aide du logiciel commercial MATLAB.

4.3.1 Procédure de traitement

À l'issue des simulations de solidification dirigée, on dispose des champs 3D de toutes les variables du problème, dans le volume de silicium. Ces champs sont enregistrés périodiquement au cours du calcul transitoire. Dans le cas en convection naturelle, l'enregistrement est réalisé tous les 10 pas de temps, ce qui équivaut à 10 minutes. Compte tenu de la vitesse moyenne de solidification, le déplacement moyen de l'interface entre 2 enregistrements est de 2.6 mm. Pour le cas en convection forcée la vitesse de solidification moyenne est plus élevée. Les enregistrements sont donc réalisés tous les 5 pas de temps et le déplacement de l'interface entre 2 enregistrements est de 2.5 mm en moyenne.

La première étape de traitement consiste à détecter la position de l'interface solide/liquide. On définit l'interface par une surface d'isovaleur de la fraction liquide locale. Cette isovaleur est fixée à $f_L = 0.5$. Compte tenu de l'irrégularité de la zone pâteuse, un lissage de la surface est réalisé afin d'obtenir une interface régulière. Cette procédure est directement liée à la précision de notre simulation de solidification. On peut en effet penser qu'une meilleure discrétisation spatiale permettrait d'obtenir une zone pâteuse plus fine et une interface plus régulière.

Il faut ensuite calculer la contrainte pariétale au niveau de cette interface. La contrainte de cisaillement τ dépend du gradient de vitesse suivant la normale à l'interface (voir équation (1.33)). Ici la discrétisation spatiale n'est pas suffisante pour fournir une valeur précise du gradient de vitesse au niveau du front de solidification. On utilise donc une approche de type fonction de paroi. Pour chaque point de l'interface on enregistre la vitesse du liquide en un point situé en dehors de la zone pâteuse et dans la direction normale au front. On suppose alors un profil de couche limite donné par la formule de *Rannie* (équation (2.24)) lorsque la distance est inférieure à 27.5 unités de parois, ou par le profil logarithmique de *Prandtl* et *Taylor* (équation (1.37)) pour une distance supérieure [4]. Cette approche nous fournit une estimation de τ en tout point de l'interface.

Enfin, la vitesse de l'interface, qui intervient dans le calcul du paramètre convecto-diffusif, doit être déterminée localement pour chaque point du front. Cette étape reste imprécise compte tenu de l'incertitude sur la position exacte de l'interface dans la zone pâteuse. Le déplacement normal dn est calculé en tout point par différence centrée en temps, en considérant les positions de l'interface aux temps $t - dt$ et $t + dt$. La vitesse locale est alors obtenue par la relation :

$$V_I = \frac{dn}{2dt}. \quad (4.8)$$

Une fois ce post-traitement réalisé, on dispose de l'ensemble des données nécessaires au calcul du paramètre convecto-diffusif et de la concentration dans la phase solide. Les propriétés

et la concentration initiale de l'impureté étudiée doivent également être définies. On fixe la diffusivité moléculaire à $D = 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, le coefficient de ségrégation à $k_0 = 0.3$ et la concentration initiale dans la phase liquide à $C_0 = 2 \times 10^{-5}$ (en fraction massique). On peut alors calculer le paramètre de ségrégation $B = (\tau D^2)/(V_I^3 \mu L)$ en tout point de chaque interface. On a vu dans la section 2.3.2 que la longueur caractéristique L doit être représentative des tailles des différentes recirculations dans la phase liquide. En première approche, cette longueur est assimilée à la demi-largeur du creuset, soit $L = 0.19 \text{ cm}$. Comme dans l'étude de la cavité entraînée (section 2.3.4) et celle dédiée au brassage mécanique (section 3.2.3.4), le paramètre B est comparé à la valeur critique B_c (définie par la relation (2.34)). Le paramètre convecto-diffusif Δ est alors calculé par la relation (1.47) si $B < B_c$, ou par la relation (2.33) si $B > B_c$. Le champ de concentration dans la phase solide est ensuite obtenu par la procédure itérative définie dans la section 2.3.4, qui est basée sur la conservation de la masse de soluté.

4.3.2 Ségrégation en convection naturelle

La procédure de traitement définie dans le paragraphe précédent est tout d'abord appliquée aux résultats de la simulation de solidification en régime de convection naturelle. La fiabilité de ces calculs dépend directement de la précision de la simulation de solidification. Nous avons vu que le maillage utilisé dans nos simulations n'est pas assez fin pour obtenir une description précise de l'interface solide/liquide. Les travaux présentés dans cette section, ainsi que dans la section 4.3.3, constituent donc une première approche permettant de tester la mise en œuvre de la méthode de calcul analytique de ségrégation et d'évaluer ses capacités et ses limites.

Après détection de l'interface solide/liquide, la contrainte pariétale, la vitesse de l'interface et le paramètre convecto-diffusif sont calculés en tout points. Ce calcul est réalisé pour chaque enregistrement effectué au cours de la simulation transitoire de solidification. La figure 4.18 présente les champs de τ , V_I et Δ obtenus sur les interfaces détectées à $t = 2 \text{ h}$, 6 h et 10.8 h . Pour une configuration de ségrégation donnée, D et μ sont des constantes. En première approche la longueur caractéristique des recirculations L est aussi supposée constante (assimilée à la demi-largeur du creuset). Le paramètre convecto-diffusif Δ varie alors uniquement en fonction de τ et V_I . La figure 4.18 montre bien la corrélation entre la répartition de Δ et celles de τ et V_I , à un instant donné du procédé. De manière générale, les zones où la vitesse de l'interface est importante correspondent à un Δ élevé (compris entre 0.7 et 1). À l'inverse, lorsque la contrainte de frottement est forte Δ tend vers des valeurs plus faibles (inférieures à 0.5). Ces variations locales de Δ indiquent que des régimes de ségrégation différents ont lieu dans le lingot. On s'attend donc à observer des ségrégations latérales liées aux variations de Δ le long de l'interface, ainsi que des changements de régime de ségrégation axiale liés à l'évolution de Δ en un point de l'interface en fonction du temps.

Les répartitions de τ observées sur les figures 4.18.A1, 4.18.B1 et 4.18.C1 sont cohérentes avec les champs de vitesse présentés sur les figures 4.7 et 4.8. Dans les coins et près des parois latérales la convection naturelle est intense et la contrainte de frottement est élevée. Le centre de l'interface correspond à une zone morte de l'écoulement et la contrainte y est faible.

Au début de la solidification l'interface présente une vitesse élevée sur les bords et plus faible au centre (figure 4.18.A2). Le front de solidification prend alors une forme concave. Puis la tendance s'inverse au cours du procédé. La vitesse augmente vers le centre et diminue en périphérie (figures 4.18.B2 et 4.18.C2). L'interface devient alors moins courbée (diminution de la flèche observée sur la figure 4.7.C1).

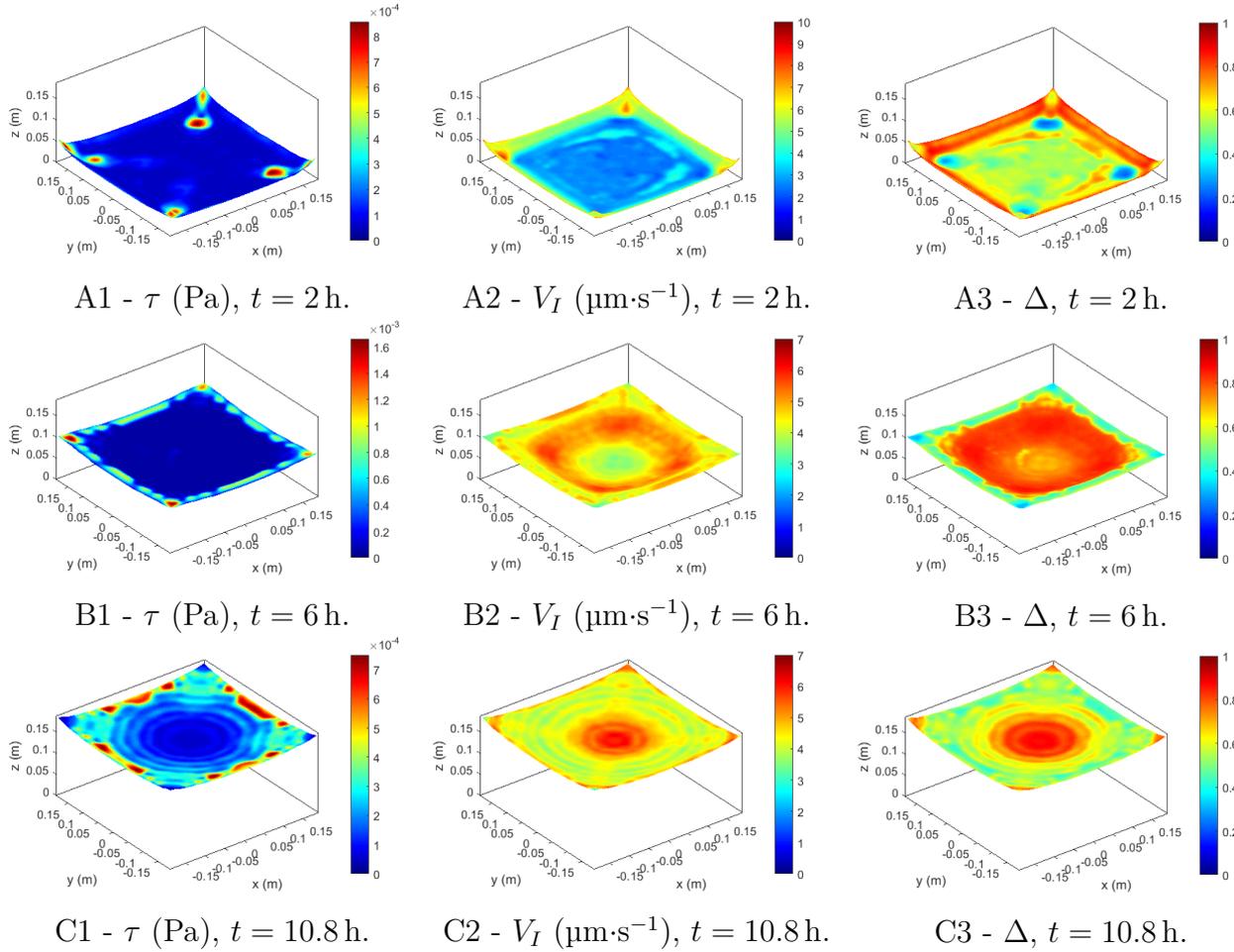


FIGURE 4.18 – Champs de contrainte de frottement τ , de vitesse de l'interface V_I et de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface solide/liquide, à $t = 2$ h (A), 6 h (B) et 10.8 h (C), pour le cas en convection naturelle. Les échelles de couleurs pour τ et V_I sont modifiées dans les différents cas pour améliorer le contraste.

La figure 4.19 présente l'évolution de la contrainte de frottement moyenne à l'interface solide/liquide et de la vitesse moyenne de l'interface en fonction de la fraction solidifiée. La solidification est initiée sur les coins et les bords, ce qui explique les fortes valeurs de $\langle\tau\rangle$ et $\langle V_I\rangle$ lorsque f_S est proche de 0. Puis l'interface s'étend jusqu'au centre et les valeurs moyennes $\langle\tau\rangle$ et $\langle V_I\rangle$ diminuent en conséquence sur les premiers pourcents de fraction solidifiée. Sur l'ensemble du cycle, $\langle\tau\rangle$ présente des variations irrégulières qui peuvent être associées à des instationnarités de l'écoulement de convection naturelle. La contrainte moyenne à l'interface est alors comprise entre 6.5×10^{-5} et 6.5×10^{-4} Pa. La vitesse moyenne de l'interface présente des fluctuations rapides entre 3.8 et $6.9 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ lorsque la fraction solide est inférieure à 0.15. Au delà de cette valeur $\langle V_I\rangle$ augmente de manière relativement monotone jusqu'à $f_S = 0.8$, puis décroît en fin de solidification. Le paramètre convecto-diffusif moyen varie peu tout au long de la solidification, comme le montre la figure 4.20. On observe néanmoins une décroissance en fin de solidification qui est liée à une augmentation de $\langle\tau\rangle$ associée à une diminution de $\langle V_I\rangle$. $\langle\Delta\rangle$ varie entre 0.6 et 0.76. Le régime de ségrégation moyen reste relativement uniforme sur la hauteur du lingot, en dépit des variations locales observées précédemment.

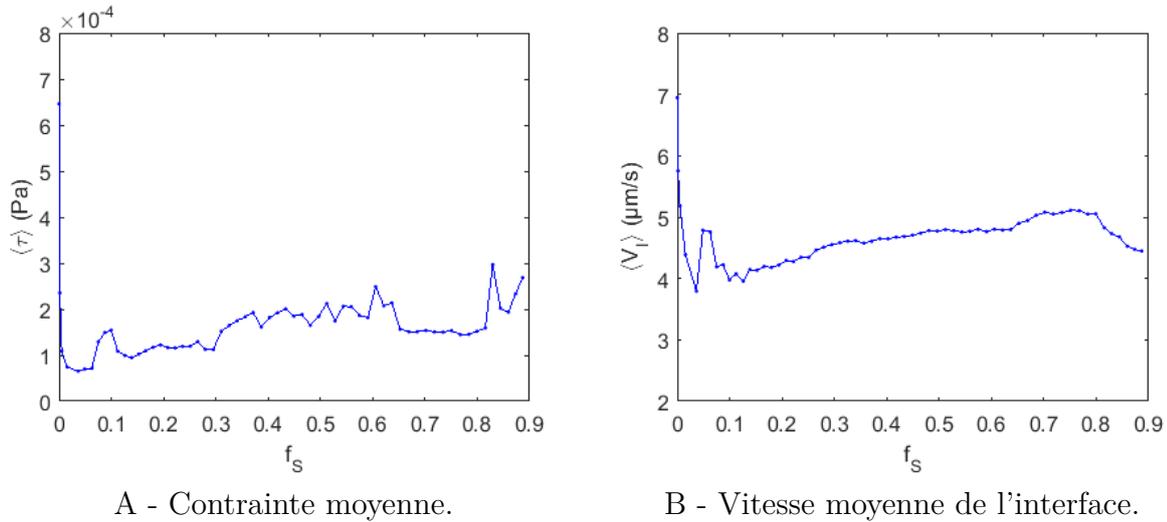


FIGURE 4.19 – Évolution de la contrainte de frottement moyenne (A) et de la vitesse moyenne de l'interface (B) en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas en convection naturelle.

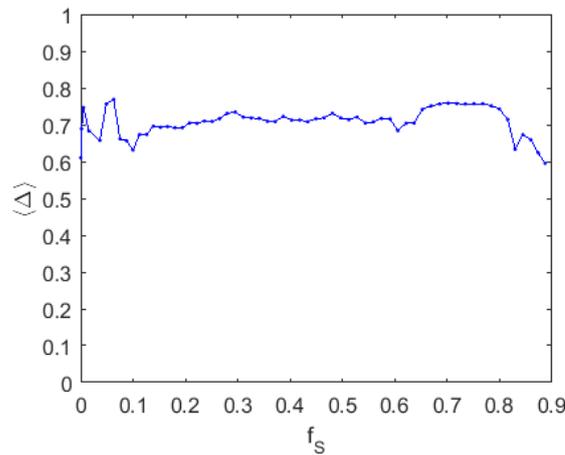


FIGURE 4.20 – Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas en convection naturelle.

Une fois que les champs de V_I et Δ sont déterminés pour chaque interface, les concentrations dans la phase solide sont obtenues par la procédure itérative définie dans la section 2.3.4. Cette procédure est ici adaptée à une configuration 3D avec une forme d'interface non plane. La longueur du transitoire initial z_T (équation (2.41)) et la hauteur de liquide restante H (équation (2.44)) sont alors définies localement en fonction de la position et de la vitesse locale de l'interface. Ce calcul nous donne accès à une cartographie de la concentration en impuretés dans tous le lingot. La figure 4.21 présente les champs de concentration obtenus dans les plans verticaux $x = 0$ et $y = 0$. On observe tout d'abord un phénomène de ségrégation axiale avec des concentrations élevées dans la dernière partie solidifiée du lingot. On remarque aussi des ségrégations latérales liées aux variations locales de Δ . À proximité des parois latérales la convection naturelle a permis une ségrégation efficace, avec de faibles concentrations dans le solide. La première moitié du lingot (suivant la direction z) présente également des concentrations faibles au centre qui sont dues à une vitesse de l'interface localement plus faible. Des faisceaux de concentrations plus fortes partent des coins en bas et se prolongent vers le centre lorsque z augmente. Ils correspondent aux surfaces inclinées de l'interface solide/liquide où la vitesse de solidification est élevée et la contrainte de frottement faible.

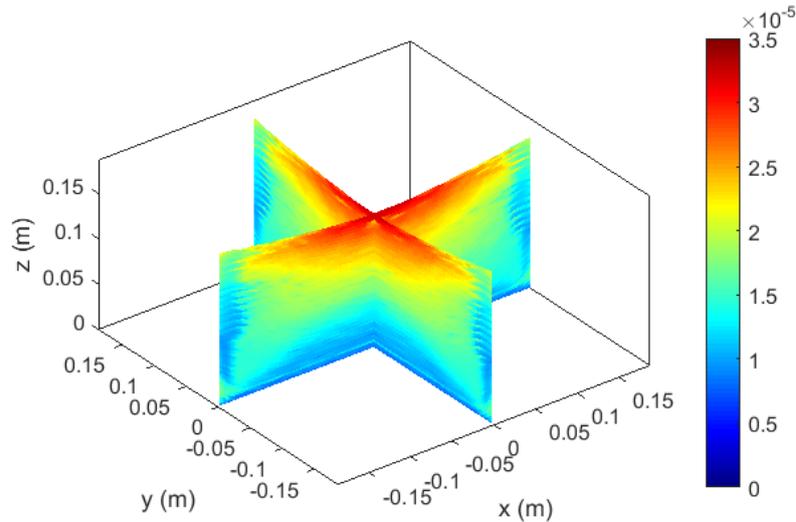


FIGURE 4.21 – Champ de concentration de soluté dans le lingot estimé par l’approche analytique, pour le cas en convection naturelle. Les concentrations sont données en fraction massique et représentées dans les plans verticaux $x = 0$ et $y = 0$.

La figure 4.22 présente le profil de ségrégation axiale obtenu en considérant la concentration moyenne à l’interface $\langle C_S^I \rangle$. Ce profil est comparé aux lois théoriques de *Scheil* et du régime diffusif pur [89]. Pour tracer le profil du régime diffusif pur nous utilisons la vitesse moyenne de l’interface $\langle V_I \rangle$ (figure 4.19.B), qui intervient dans la relation (1.16). Le profil obtenu par notre approche analytique prévoit un régime de ségrégation intermédiaire entre la loi de *Scheil* et le régime diffusif pur. Un coefficient de partage effectif global du procédé est calculé par la relation (1.22) en considérant la moyenne temporelle de $\langle \Delta \rangle$. On obtient un k_{eff} de 0.59, soit deux fois la valeur du k_0 choisi pour ce calcul de ségrégation. Une loi *Scheil* modifiée est tracée sur la figure 4.22 pour cette valeur de k_{eff} . Le profil analytique suit très bien cette loi jusqu’à une fraction solide de 0.8. Au delà la ségrégation devient plus efficace et les concentrations sont inférieures à celles prévues par la loi *Scheil* modifiée.

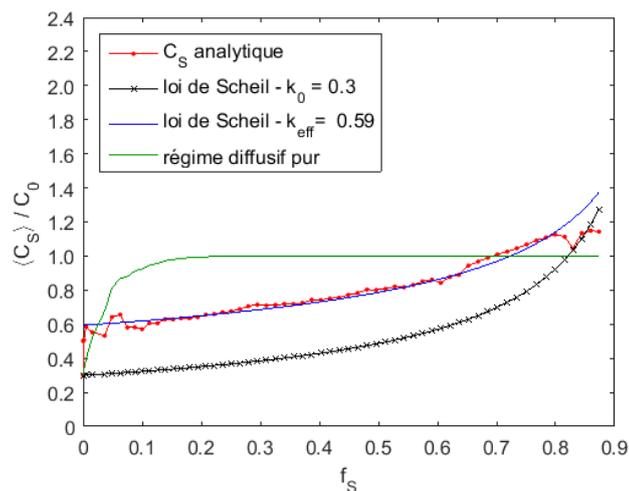


FIGURE 4.22 – Profil de ségrégation axiale estimé par l’approche analytique, pour le cas en convection naturelle. Comparaison avec la solution analytique du régime diffusif pur [89], la loi de *Scheil* et la loi de *Scheil* modifiée avec un coefficient de partage effectif $k_{eff} = 0.59$.

4.3.3 Ségrégation avec brassage mécanique

La procédure de calcul des ségrégations est maintenant appliquée aux résultats de la simulation de solidification avec brassage mécanique. Nous ne pouvons pas faire de comparaison directe avec le cas en convection naturelle présenté dans la section précédente puisque les conditions de température sont différentes. Cependant, le brassage mécanique est arrêté au cours de la solidification. Les résultats obtenus avant et après l'arrêt du brassage donnent alors des premières informations sur l'influence de la convection forcée sur la ségrégation.

La figure 4.23 présente les champs de τ , V_I et Δ obtenus pour les interfaces détectées à $t = 1$ h, 2.5 h et 2.58 h. À $t = 1$ h, l'interface est globalement plane, excepté dans les coins où la solidification s'effectue rapidement. La trace du jet de l'écoulement de brassage est bien visible sur le champ de contrainte de la figure 4.23.A1. Sous le jet, τ est de l'ordre de 2×10^{-2} Pa, ce qui est nettement inférieur aux contraintes observées dans les simulations hydrodynamiques avec un front plan (voir figure 4.12). Cela laisse penser que l'amortissement de l'écoulement dans la zone pâteuse fausse le calcul de la contrainte à l'interface. Les variations de τ et V_I entraînent de fortes variations de Δ , avec des valeurs proches de 1 sur les bords et inférieures à 0.4 sur toute la partie plane de l'interface.

Avant l'arrêt du système de brassage ($t = 2.5$ h) la trace du jet de l'agitateur est toujours visible sur le fond de l'interface (figure 4.23.B1). L'amplitude de contrainte est cependant diminuée d'un ordre de grandeur (environ 2.5×10^{-3} Pa). Cette évolution est cohérente avec le champ de vitesse observé sur la figure 4.16.B2. En effet, la courbure de l'interface modifie la structure de l'écoulement et limite la vitesse du fluide au voisinage du front. Le paramètre convecto-diffusif est alors globalement plus élevé avec des valeurs de l'ordre de 0.6 au fond et proches de 1 dans les coins. En haut des parois latérales la vitesse de l'interface est plus faible, ce qui diminue sensiblement Δ .

À $t = 2.58$ h le brassage est arrêté depuis quelques minutes. La répartition de contrainte de la figure 4.23.C1 est alors caractéristique de l'écoulement de convection naturelle observé sur la figure 4.16.C2, avec des contraintes fortes en haut à proximité des parois latérales (de l'ordre de 4×10^{-4} Pa). Sur le fond de l'interface, Δ augmente brutalement pour atteindre des valeurs proches de 1. En haut des surfaces latérales, Δ est plus faible en raison d'une convection plus intense et d'une solidification localement plus lente.

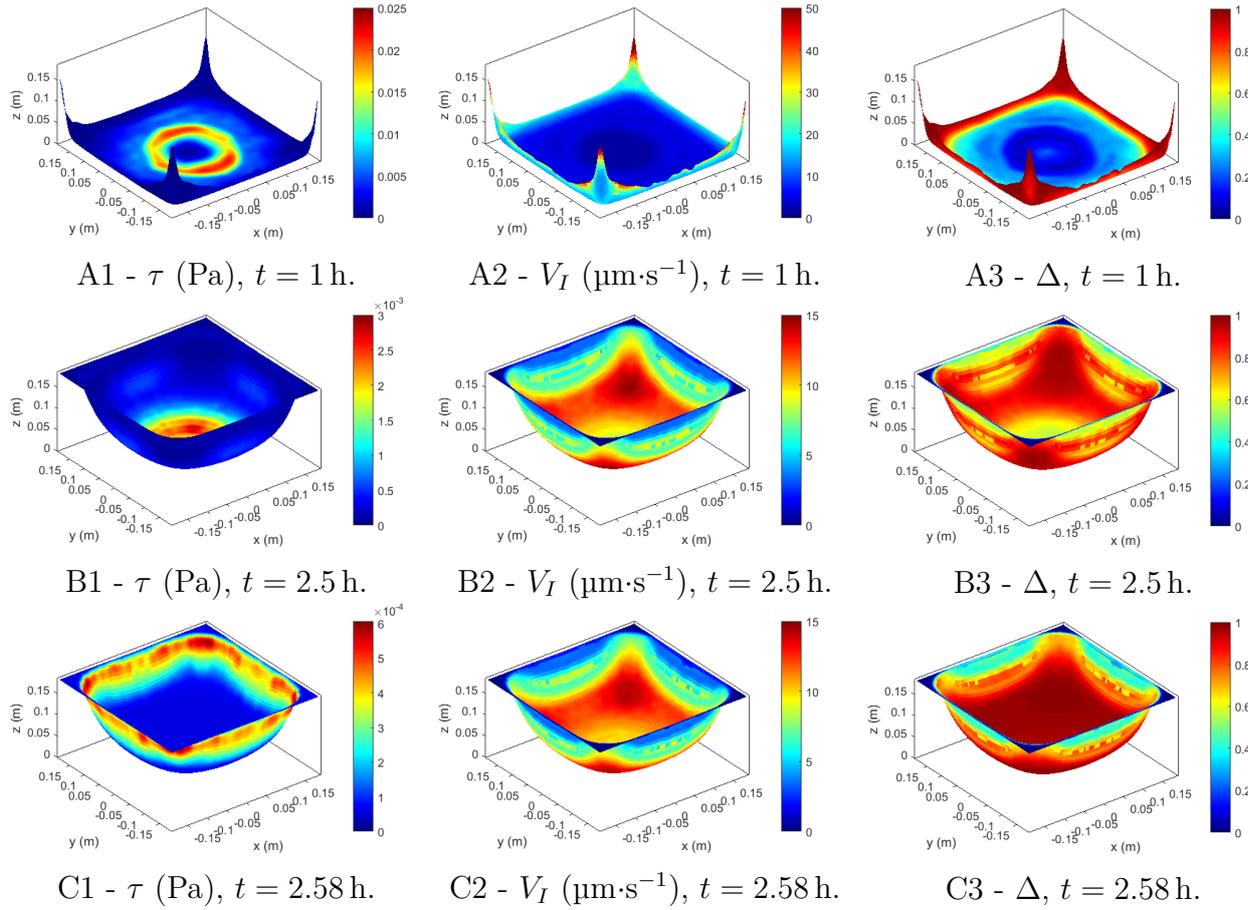


FIGURE 4.23 – Champs de contrainte de frottement τ , de vitesse de l'interface V_I et de paramètre convecto-diffusif Δ à l'interface solide/liquide, à $t = 1$ h (A), 2.5 h (B) et 2.58 h (C), pour le cas avec brassage mécanique. Les échelles de couleurs pour τ et V_I sont modifiées dans les différents cas pour améliorer le contraste.

La figure 4.24 présente l'évolution de la contrainte moyenne $\langle\tau\rangle$ et de la vitesse moyenne de l'interface $\langle V_I\rangle$ en fonction de la fraction solidifiée. La solidification commence par les coins et les bords, pour lesquels la contrainte est faible et la vitesse de l'interface est élevée. Puis le front s'étend jusqu'au centre où la contrainte est élevée, impliquant une augmentation de $\langle\tau\rangle$ jusqu'à 3.7×10^{-3} Pa. De $f_S = 0.05$ à 0.23 la courbure de l'interface augmente et modifie la structure de l'écoulement, ce qui entraîne une diminution de $\langle\tau\rangle$. Lorsque l'écoulement s'est adapté à la nouvelle forme du front, un régime stable est observé avec une contrainte moyenne de l'ordre de 8×10^{-4} Pa pour f_S comprise entre 0.23 et 0.5. L'arrêt du brasseur provoque ensuite une diminution brutale de $\langle\tau\rangle$ qui est alors de l'ordre de 1.5×10^{-4} Pa jusqu'à $f_S = 0.83$. À la fin de la solidification la hauteur de liquide devient faible et l'intensité de la convection naturelle décroît progressivement. L'évolution de $\langle V_I\rangle$ présente 3 régimes. Pour $f_S < 0.1$ la vitesse moyenne de l'interface a tendance à augmenter, jusqu'à une valeur de $17 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Puis elle décroît jusqu'à $f_S = 0.35$ où elle atteint $9.7 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Enfin elle augmente jusqu'à la fin de la solidification où elle atteint $18 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Durant toute la période de brassage les variations de $\langle\tau\rangle$ et $\langle V_I\rangle$ entraînent des fluctuations importantes de $\langle\Delta\rangle$ qui varie alors entre 0.66 et 0.9, comme on peut le voir sur la figure 4.25. À l'arrêt du brasseur, $\langle\Delta\rangle$ augmente brutalement puis tend progressivement vers 1 jusqu'à la fin de la solidification, à mesure que la contrainte diminue et que la vitesse de l'interface augmente.

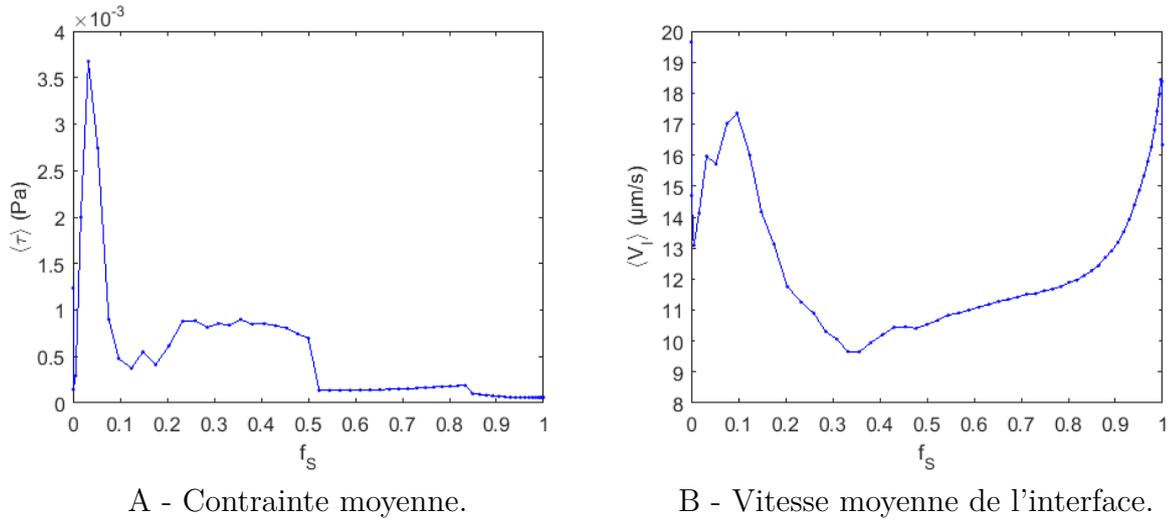


FIGURE 4.24 – Évolution de la contrainte de frottement moyenne (A) et de la vitesse moyenne de l’interface (B) en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas avec brassage mécanique.

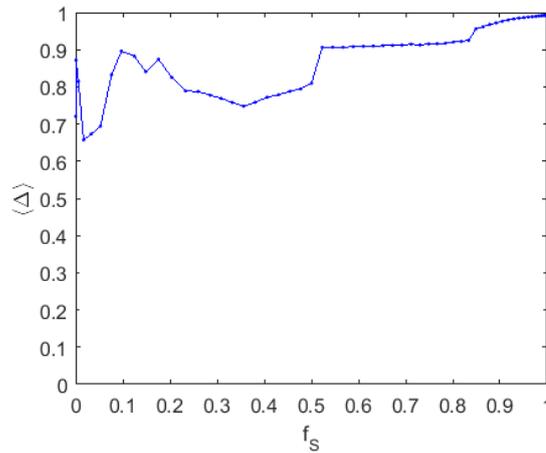


FIGURE 4.25 – Évolution du paramètre convecto-diffusif moyen en fonction de la fraction solidifiée, pour le cas avec brassage mécanique.

Le champ de concentration dans le solide obtenu à partir de la procédure analytique est représenté sur la figure 4.26. Une discontinuité évidente marque la position du front (représentée par des lignes noires) au moment où l’écoulement passe d’un régime de convection forcée à un régime de convection naturelle. Avant l’arrêt du brassage, des ségrégations latérales liées aux variations de Δ à l’interface peuvent être observées. Après l’arrêt du brassage, il y a peu de ségrégations latérales mais une ségrégation axiale avec des concentrations élevées en haut de lingot.

La figure 4.27 présente le profil de ségrégation axiale obtenu en considérant la concentration moyenne à l’interface $\langle C_S^I \rangle$. Là encore ce profil est comparé à la loi de *Scheil* et au régime diffusif pur. On notera que pour représenter le régime diffusif pur nous avons utilisé l’équation (1.16) qui n’est valable que pour un milieu semi-infini. La concentration devrait en fait augmenter lors d’un transitoire de fin de solidification afin de vérifier la conservation de la masse de soluté. Le profil de ségrégation axiale obtenu analytiquement présente trois régimes. Le premier régime correspond à la solidification sous brassage mécanique. Il s’agit d’un régime intermédiaire entre la loi de *Scheil* ($k_0 = 0.3$) et le régime diffusif pur, avec des fluctuations liées aux variations de la contrainte et de la vitesse de l’interface. Le second régime correspond à la ségrégation avec un écoulement de convection naturelle. La discontinuité du profil de $\langle C_S \rangle$ pour $f_s \approx 0.5$

marque le début de ce nouveau régime. L'arrêt du brassage provoque une augmentation rapide du coefficient de partage effectif et par conséquent de la concentration incorporée dans le solide. La concentration incorporée augmente ensuite progressivement au cours de la solidification. Enfin, un troisième régime apparaît en fin de solidification lorsque la convection devient très faible et que Δ tend vers 1. La concentration augmente alors de manière exponentielle pour vérifier la conservation de la masse de soluté. Le coefficient de partage effectif moyenné en espace et en temps sur l'ensemble du procédé est alors $k_{eff} = 0.79$.

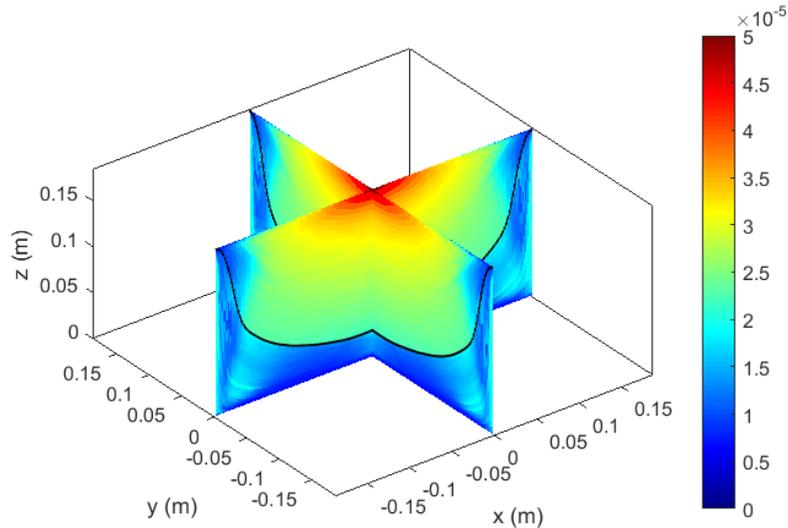


FIGURE 4.26 – Champ de concentration de soluté dans le lingot estimé par l'approche analytique, pour le cas avec brassage mécanique. Les concentrations sont données en fraction massique et représentées dans les plans verticaux $x = 0$ et $y = 0$. Les lignes noires représentent la position du front à $t = 2.58$ h.

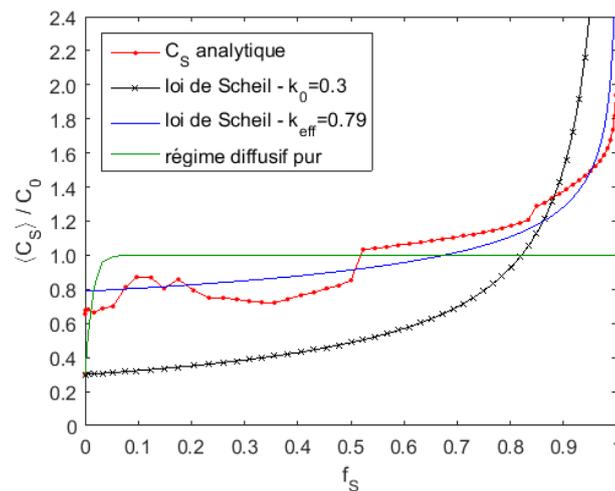


FIGURE 4.27 – Profil de ségrégation axiale estimé par l'approche analytique, pour le cas avec brassage mécanique. Comparaison avec la solution analytique du régime diffusif pur (en milieu semi-infini) [89], la loi de *Scheil* et la loi de *Scheil* modifiée avec un coefficient de partage effectif $k_{eff} = 0.79$.

4.4 Conclusion

Des simulations de solidification ont été réalisées dans une configuration pré-industrielle d'échelle G2 (lingot de largeur 40 cm). On utilise un modèle de four de solidification dirigée développé au LMPS sous le logiciel FLUENT. Après une première étude en convection naturelle, un cas de solidification en convection forcée par brassage mécanique est traité. Un modèle empirique de forces volumiques est alors développé pour décrire le champ de vitesse moyen généré par l'agitateur dans le bain liquide. Ce modèle néglige les fluctuations temporelles rapides liées à la rotation des pales et évite un remaillage dynamique associé à une modélisation physique de l'agitateur. Les résultats des simulations montrent que le maillage utilisé n'est pas assez fin pour décrire précisément l'interface solide/liquide. La zone pâteuse "numérique" a alors une épaisseur non négligeable et perturbe l'écoulement au voisinage du front. Les résultats apparaissent également très sensibles à la valeur imposée pour le coefficient d'amortissement A_{mushy} .

Ces premiers résultats sont ensuite exploités pour mettre en œuvre la méthode de calcul analytique des ségrégations développée dans le chapitre 2. Il s'agit d'une première tentative pour adapter cette démarche à un cas 3D avec un front de solidification courbé. Une procédure de post-traitement est alors développée pour détecter le front et calculer au mieux la contrainte de frottement et la vitesse locale de l'interface. Des champs de concentration dans tout le lingot sont finalement obtenus et corrélés aux conditions de solidification et de convection dans le bain liquide. La méthodologie proposée dans cette thèse pour le calcul des ségrégations a donc pu être appliquée à un cas de solidification 3D en régime de convection forcée.

De nombreuses améliorations doivent encore être apportées afin de garantir la fiabilité et la précision des calculs. La qualité des résultats des calculs analytiques de ségrégation dépend directement de la précision de la description de l'interface solide/liquide et du calcul de l'écoulement lors de la simulation de la solidification. Ici la méthode enthalpique ne produit pas des résultats satisfaisants car le maillage utilisé n'est pas suffisamment fin. Plusieurs perspectives peuvent alors être envisagées pour améliorer le calcul de solidification. Tout d'abord, Bellmann and M'Hamdi [5] ont montré que le raffinement du maillage et la définition explicite d'un faible intervalle de température pour le changement de phase permettent de limiter l'épaisseur de la zone pâteuse à une maille. Le raffinement du maillage dans tout le volume de silicium requiert cependant des moyens et des temps de calcul conséquents puisque les simulations réalisées dans notre étude nécessitent déjà 120 heures de calcul parallélisé sur 32 cœurs. Une méthode en développement au LMFA, dans le cadre de la thèse de Virgile Tavernier, consiste à utiliser un maillage mobile qui puisse suivre l'interface et assurer une discrétisation spatiale fine dans une zone limitée, afin de conserver des temps de calcul raisonnables. D'autre part, la description du profil de vitesse au niveau de l'interface est un paramètre essentiel pour obtenir une estimation correcte de la contrainte de frottement. Le modèle de solidification développé dans la thèse de Mircea Cablea [12] au SIMAP semble alors particulièrement pertinent. Ce modèle, implémenté sous FLUENT, utilise un maillage dynamique pour décrire explicitement le front de solidification par une condition limite de type paroi. Les fonctions de paroi disponibles dans FLUENT peuvent alors être exploitées directement pour calculer de manière précise la contrainte de frottement à l'interface. Enfin, des méthodes numériques sans maillage, type SPH¹ [18, 19, 30, 68], peuvent également être envisagées pour simuler la solidification dirigée.

1. Smoothed Particle Hydrodynamics

Bilan et perspectives

Cette étude s'inscrit dans un contexte d'optimisation des procédés de purification et de cristallisation du silicium pour l'industrie photovoltaïque. Elle s'intéresse particulièrement à la simulation de la ségrégation des impuretés lors de la solidification dirigée du silicium. L'introduction d'un régime de convection forcée dans le bain liquide permet de favoriser la ségrégation en réduisant fortement l'épaisseur de la couche limite solutale, ce qui améliore la qualité du matériau et le rendement matière du procédé. Une problématique majeure pour la simulation numérique de configurations industrielles en 3D provient de la disparité des échelles spatiales et temporelles mises en jeu. Notre objectif est donc de proposer des outils et des modèles efficaces pour estimer la ségrégation en régime de convection forcée.

Modèle analytique de couche limite solutale

La première partie de l'étude est dédiée à la formulation d'un modèle analytique de la couche limite solutale. Un premier modèle proposé par Garandet et al. [41] permet d'estimer le paramètre convecto-diffusif à partir de la contrainte de frottement à l'interface solide/liquide. L'intérêt de cette approche est qu'elle offre la perspective de limiter la simulation du procédé au problème thermique et hydrodynamique et d'éviter la résolution numérique d'une couche limite solutale micrométrique. Notre étude s'intéresse principalement à des configurations d'écoulements turbulents pleinement développés, pour lesquelles la sous-couche visqueuse hydrodynamique devient plus fine que la couche limite solutale. Un terme de diffusion turbulente doit alors être introduit dans le modèle analytique afin de prendre en compte l'influence des fluctuations turbulentes sur le transport des impuretés. Le nouveau modèle proposé permet donc d'estimer les régimes de ségrégation en présence d'une turbulence intense.

Les concentrations dans la phase solide sont ensuite calculées par une procédure itérative simple, en post-traitement d'une simulation transitoire de solidification dirigée. L'étude de validation, réalisée sur un cas de référence en 2D, révèle qu'une analyse de la structure de l'écoulement dans la phase liquide donne accès à une description pertinente des ségrégations latérales. La comparaison des résultats analytiques aux champs de concentration numériques de référence montre bien que l'approche proposée permet d'estimer de manière raisonnable les ségrégations à partir d'une simulation de solidification sans raffinement du maillage pour les couches limite solutales fines. Cette approche présente toutefois plusieurs limitations. D'une part, la concentration dans la phase liquide est considérée homogène en dehors de la couche limite solutale. Cette hypothèse est raisonnable en régime turbulent mais fortement discutable pour des écoulements laminaires. D'autre part, le modèle analytique suppose un écoulement de couche limite parallèle au front de solidification, ce qui n'est pas valable au voisinage des décollements et des points d'arrêts. Des critères spécifiques doivent alors être développés pour ces points caractéristiques.

Ségrégation sous brassage mécanique

La seconde partie de l'étude s'intéresse à l'utilisation d'un brassage mécanique pour homogénéiser le silicium liquide. Un agitateur a été développé spécifiquement pour cette application au LMPS. Le système est tout d'abord caractérisé expérimentalement par des mesures de champ de vitesse par PIV. Ces mesures sont réalisées sur une maquette en eau placée en similitude de *Reynolds* avec le système réel. Différents régimes d'écoulements sont alors identifiés en fonction

de la vitesse de rotation de l'agitateur et de la hauteur de liquide dans le creuset.

Des simulations hydrodynamiques transitoires sont ensuite réalisées à l'aide du logiciel FLUENT. Ces simulations utilisent une technique de maillage glissant afin de décrire au mieux la dynamique de l'écoulement. Les champs de vitesse numériques sont en bon accord avec ceux issus des mesures PIV. Le modèle hydrodynamique est couplé à un calcul de ségrégation en régime quasi-permanent, ce qui permet d'analyser de façon directe l'influence des paramètres de brassage (tels que la vitesse de rotation ou la hauteur de liquide) sur l'épaisseur de la couche limite solutale. Le modèle analytique de couche limite solutale est également appliqué à cette configuration de brassage mécanique en 3D. L'approche analytique donne alors une bonne estimation du régime global de ségrégation, à partir de la contrainte de frottement moyenne sur le front de solidification obtenue par la simulation hydrodynamique. La description des ségrégations latérales proposée ici peut cependant être améliorée en approfondissant l'analyse de la structure de l'écoulement et en traitant spécifiquement les points caractéristiques à l'interface solide/liquide.

Simulation de la solidification en convection forcée

Enfin, la troisième partie de l'étude aborde la simulation transitoire d'un procédé de solidification dirigée en régime de convection forcée. Deux simulations de solidification dirigée de lingots de taille pré-industrielle G2 (lingot de 60 kg et de largeur 38 cm) ont pu être réalisées. Le procédé est d'abord étudié en régime de convection naturelle, puis en convection forcée par brassage mécanique. L'échelle de temps caractéristique de la solidification est incompatible avec une simulation de la rotation de l'agitateur par maillage glissant. Un modèle empirique de forces volumiques est alors développé dans le but d'imposer un écoulement représentatif du brassage mécanique dans la phase liquide. Cette approche nous semble particulièrement pertinente dans la mesure où elle peut être utilisée pour l'étude d'autres techniques de brassage telles que le brassage par ultrasons [70] ou le brassage électromagnétique [12].

Le modèle de solidification de FLUENT se base sur la méthode enthalpique. L'interface solide/liquide est donc décrite de manière implicite par une zone pâteuse à l'intérieur de laquelle l'écoulement est amorti par des termes sources. Les différents tests réalisés en convection forcée montrent que la valeur imposée pour le coefficient d'amortissement a une influence forte sur l'épaisseur de la zone pâteuse et la forme de l'interface. Une étude de sensibilité à la discrétisation spatiale et au coefficient d'amortissement semble donc nécessaire pour pouvoir conclure sur la validité des calculs réalisés.

Une première tentative de calcul des ségrégations par notre approche analytique est ensuite réalisée à partir des résultats de simulations. La méthode est alors adaptée à un cas 3D avec une interface définie implicitement. Des champs de concentration dans les lingots sont obtenus et corrélés avec les conditions de solidification et les régimes de convection. Cette étape montre alors la faisabilité d'un calcul analytique de ségrégation à partir des résultats d'une simulation de solidification avec des temps et des moyens de calcul raisonnables.

Perspectives

Tout d'abord, l'objectif du modèle analytique de couche limite solutale est d'implémenter des fonctions de paroi solutales dans un code CFD, de manière analogue aux fonctions de paroi hydrodynamiques utilisées de manière standard dans les codes commerciaux. La résolution numérique de l'équation de la concentration dans le bain liquide serait alors couplée à une résolution analytique du transfert de masse à l'interface solide/liquide. Le calcul des concentrations incorporées dans le solide pourrait être réalisé au cours de la simulation de solidification et tiendrait compte d'un éventuel appauvrissement ou enrichissement du liquide en impuretés par

les parois du creuset et la surface libre du bain. Cette perspective suppose le développement d'un algorithme robuste pour caractériser les recirculations, détecter les décollements et les points d'arrêt et les traiter par des procédures spécifiques.

D'autre part, cette étude montre que le brassage mécanique permet de réduire significativement l'épaisseur de la couche limite solutale pour des lingots pré-industriels G2. Le rendement matière d'un procédé de solidification dirigée utilisant cette technique dépend du ratio entre la hauteur solidifiée avec un brassage efficace et la hauteur totale du lingot. La conception d'agitateurs avec un faible encombrement vertical, permettant une ségrégation optimale sur une plus grande hauteur, constitue donc une première voie d'optimisation du procédé. La performance du brassage sur des lingots industriels d'une largeur d'un mètre (échelle G6) doit également être évaluée pour pouvoir statuer sur la viabilité économique du procédé. L'utilisation de techniques de brassage non-intrusives telles que le brassage par ultrasons ou le brassage électromagnétique permettrait de s'affranchir de certaines problématiques associées au brassage mécanique. On pense notamment à la contamination du silicium par l'agitateur, au suivi du front de solidification au cours du procédé et à l'obtention d'un régime de ségrégation uniforme sur toute la hauteur du lingot.

Le modèle de ségrégation sous brassage en régime quasi-permanent constitue un outil efficace pour le développement des techniques de brassage. Il serait pertinent de prendre en compte la courbure de l'interface solide/liquide dans ces simulations. Une étude numérique présentée par Dumitrica et al. [29] souligne en effet un couplage fort entre ce paramètre et la dynamique de l'écoulement dans la phase liquide. D'autre part, les mesures de champ de vitesse sur une maquette en eau constituent une première étape pour la validation de ce type de modèle. Cette approche expérimentale pourrait être complétée par des mesures de transferts de chaleur ou de masse dans la zone proche paroi. En définissant des conditions de similitudes adaptées, ces mesures peuvent nous renseigner sur les transferts de masse au niveau d'un front de solidification et être comparées aux résultats numériques de ségrégation. Par ailleurs, le modèle empirique de force volumique utilisé pour simuler le brassage lors de la solidification dirigée peut également être enrichi afin de prendre en compte les composantes radiales et périphériques de l'écoulement et décrire au mieux l'influence de la hauteur de liquide sur le champ de vitesse.

Enfin, l'estimation analytique des ségrégations sur la base d'une simulation numérique de la solidification dirigée nécessite une description précise de l'interface solide/liquide. Plusieurs perspectives sont évoquées en conclusion du chapitre 4 afin d'améliorer ce point sans raffiner le maillage du volume de silicium en entier. L'implémentation de ces méthodes permettrait de simuler précisément la solidification et d'obtenir une estimation pertinente des concentrations d'impuretés dans les lingots. Les résultats pourraient alors être comparés à des expériences de solidification dirigée qui seraient réalisées avec différents régimes de convection.

Références

- [1] M. Albaric, D. Pelletier, E. Pihan, N. Plassat, and A. Jouini. Silicon Crystallization Process : Comparison between 3D Transient Simulations and Experimental Results. 2012. <http://dx.doi.org/10.4229/27thEUPVSEC2012-2BV.5.5>. (Cité pages 148 et 150.)
- [2] J. Aubin, D.F. Fletcher, and C. Xuereb. Modeling turbulent flow in stirred tanks with CFD : the influence of the modeling approach, turbulence model and numerical scheme. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 28, 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2003.04.001>. (Cité pages 21, 55, 56, 126, et 136.)
- [3] J. Aubin, N. Le Sauze, J. Bertrand, D.F. Fletcher, and C. Xuereb. PIV measurements of flow in an aerated tank stirred by a down- and an up-pumping axial flow impeller. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2001.12.001>. (Cité page 59.)
- [4] A. Bejan. *Convection heat transfer*. Wiley, 3rd edition, 2004. ISBN 0471271500. (Cité pages 35, 43, 45, 46, 49, 84, 111, et 167.)
- [5] M.P. Bellmann and M. M'Hamdi. Effect of flow pattern on the segregation of impurities in vertical Bridgman growth of multi-crystalline silicon. *Journal of Crystal Growth*, 362, 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2011.10.055>. (Cité pages 49 et 176.)
- [6] M.P. Bellmann, B. Panjwani, M. Syvertsen, and E.A. Meese. Dynamic simulation of impurity transport and chemical reactions in a Bridgman furnace for directional solidification of multi-crystalline silicon. *Journal of Crystal Growth*, 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.02.008>. (Cité page 49.)
- [7] A.M. Bianchi, Y. Fautrelle, J. Etay, and R. Longchamp. *Transferts thermiques*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 2004. ISBN 2880744962. (Cité pages 35, 43, 44, et 111.)
- [8] M. Borrelli. Estimation of the uncertainties and errors in PIV measurement without the knowledge of the flow field a-priori. Rapport de stage, CEA/DEN/DANS/DM2S/STMF/LIEFT, CEA Saclay, 2015. (Cité pages 108, 122, et 123.)
- [9] A. Brucato, M. Ciofalo, F. Grisafi, and G. Micale. Numerical prediction of flow fields in baffled stirred vessels : a comparison of alternative modelling approaches. *Chemical Engineering Science*, 53, 1998. [http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509\(98\)00149-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509(98)00149-3). (Cité pages 54, 55, et 56.)
- [10] S. Bugay, R. Escudie, and A. Line. Experimental analysis of hydrodynamics in axially agitated tank. *AIChE journal*, 2002. <http://dx.doi.org/10.1002/aic.690480306>. (Cité page 58.)
- [11] J.A. Burton, R.C. Prim, and W.P. Slichter. The distribution of solute in crystals grown from the melt. part i. theoretical. *The Journal of Chemical Physics*, 1953. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1698728>. (Cité pages 35 et 37.)

- [12] M. Cablea. *Numerical and experimental studies of magnetic field effects on solidification of metallurgical silicon for photovoltaic applications*. PhD thesis, Grenoble Alpes, 2015. <http://www.theses.fr/2015GREAI017>. (Cit  pages 50, 150, 176, et 178.)
- [13] M. Cablea, K. Zaidat, A. Gagnoud, A. Nouri, and Y. Delannoy. Directional solidification of silicon under the influence of travelling magnetic field. *Journal of Crystal Growth*, 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.11.062>. (Cit  page 49.)
- [14] J.L. Camacho-Martinez, M.A. Ram rez-Arg ez, R. Zenit-Camacho, A. Ju rez-Hern andez, J.D.O. Barceinas-S nchez, and G. Tr paga-Martinez. Physical modelling of an aluminium degassing operation with rotating impellers - a comparative hydrodynamic analysis. *Materials and Manufacturing Processes*, 2010. <http://dx.doi.org/10.1080/10426910903367386>. (Cit  page 59.)
- [15] S. Caron. Etude du brassage m canique pour la s gr gation du silicium. Rapport de stage, CEA, 2012. (Cit  page 54.)
- [16] C.J. Chang and R.A. Brown. Radial segregation induced by natural convection and melt/solid interface shape in vertical bridgman growth. *Journal of Crystal Growth*, 1983. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90225-7](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(83)90225-7). (Cit  page 127.)
- [17] M. Chatelain, M. Albaric, D. Pelletier, and V. Botton. Solute segregation in directional solidification : Scaling analysis of the solute boundary layer coupled with transient hydrodynamic simulations. *Journal of Crystal Growth*, 2015. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2015.08.013>. (Cit  page 62.)
- [18] P.W. Cleary. Extension of SPH to predict feeding, freezing and defect creation in low pressure die casting. *Applied Mathematical Modelling*, 34, 2010. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apm.2010.02.012>. (Cit  page 176.)
- [19] P.W. Cleary, J. Ha, M. Prakash, and T. Nguyen. Short shots and industrial case studies : Understanding fluid flow and solidification in high pressure die casting. *Applied Mathematical Modelling*, 34, 2010. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apm.2009.10.015>. (Cit  page 176.)
- [20] P. Cognart, F. Bouquet, and M. Roustan. *Agitation, Melange - Aspects Mecaniques*. Ed. Techniques Ingenieur, 2002. <http://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/operations-unitaires-agitation-et-melange-42486210/>. (Cit  page 53.)
- [21] G. Coletti. Impurities in silicon and their impact on solar cell performance, 2011. <http://dspace.library.uu.nl/handle/1874/209735>. (Cit  page 31.)
- [22] K. Dadzis, D. Vizman, and J. Friedrich. Unsteady coupled 3D calculations of melt flow, interface shape, and species transport for directional solidification of silicon in a traveling magnetic field. *Journal of Crystal Growth*, 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.12.135>. (Cit  page 50.)
- [23] Y. Delannoy and K. Zaidat. Modelling the segregation of impurities during solidification with turbulent electromagnetic stirring. In *The 7 th International Conference on Electromagnetic Processing of Materials*, pages 217–220, 2012. http://www.researchgate.net/publication/258834890_Modeling_the_segregation_of_impurities_during_solidification_with_turbulent_electromagnetic_stirring. (Cit  pages 48, 49, 67, 127, et 129.)

- [24] Y. Delannoy, F. Barvinschi, and T. Duffar. 3D dynamic mesh numerical model for multi-crystalline silicon furnaces. *Journal of Crystal Growth*, 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2006.12.075>. (Cité page 49.)
- [25] J.J. Derby and A. Yeckel. Modeling of crystal growth processes. In *Crystal Growth - From Fundamentals to Technology*, pages 143–167. Elsevier, 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/B978-044451386-1/50008-8>. (Cité page 127.)
- [26] M. Dhainaut, P. Tetlie, and K. Bech. Modeling and experimental study of a stirred tank reactor. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 2005. <http://dx.doi.org/10.2202/1542-6580.1274>. (Cité page 55.)
- [27] P. Dold, A. Cröll, M. Lichtensteiger, Th. Kaiser, and K.W. Benz. Floating zone growth of silicon in magnetic fields : IV. rotating magnetic fields. *Journal of crystal growth*, 2001. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)01491-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(01)01491-9). (Cité page 51.)
- [28] W. Dridi, D. Henry, and H. Ben Hadid. Influence of acoustic streaming on the stability of melt flows in horizontal Bridgman configurations. *Journal of Crystal Growth*, 2008. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2007.11.014>. (Cité page 51.)
- [29] S. Dumitrica, D. Vizman, J.P. Garandet, and A. Popescu. Numerical studies on a type of mechanical stirring in directional solidification method of multicrystalline silicon for photovoltaic applications. *Journal of Crystal Growth*, 2012. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.01.011>. (Cité pages 50, 51, et 179.)
- [30] K. Ellingsen, T. Coudert, and M. M’Hamdi. SPH based modelling of oxide and oxide film formation in gravity die castings. *IOP Conference Series : Materials Science and Engineering*, 84, 2015. <http://dx.doi.org/10.1088/1757-899X/84/1/012064>. (Cité page 176.)
- [31] E. Erturk. Discussions on driven cavity flow. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 2009. <http://dx.doi.org/10.1002/fd.1887>. (Cité page 68.)
- [32] E. Erturk, T. C. Corke, and C. Gökçöl. Numerical solutions of 2-d steady incompressible driven cavity flow at high reynolds numbers. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 2005. <http://dx.doi.org/10.1002/fd.953>. (Cité pages 21, 22, 68, et 69.)
- [33] A.M. Fincham and G.R. Spedding. Low cost, high resolution DPIV for measurement of turbulent fluid flow. *Experiments in Fluids*, 1997. <http://dx.doi.org/10.1007/s003480050135>. (Cité page 122.)
- [34] J.P. Garandet. On the problem of radial segregation in an idealized horizontal bridgman configuration : scaling and numerical approaches. *Journal of crystal growth*, 1991. [http://dx.doi.org/doi:10.1016/0022-0248\(91\)90405-T](http://dx.doi.org/doi:10.1016/0022-0248(91)90405-T). (Cité page 101.)
- [35] J.P. Garandet. Microsegregation in crystal growth from the melt : an analytical approach. *Journal of Crystal Growth*, 1993. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(93\)90192-Y](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(93)90192-Y). (Cité pages 92, 93, 94, 96, et 140.)
- [36] J.P. Garandet. Croissance cristalline en phase liquide : Eléments théoriques. EDP Sciences, 2003. <http://dx.doi.org/10.1051/bib-sfo:2002809>. (Cité pages 37 et 38.)

- [37] J.P. Garandet. New Determinations of Diffusion Coefficients for Various Dopants in Liquid Silicon. *International Journal of Thermophysics*, 2007. <http://dx.doi.org/10.1007/s10765-007-0205-z>. (Cité pages 19, 20, 36, 37, 104, 105, 201, et 205.)
- [38] J.P. Garandet, T. Duffar, and J. J. Favier. On the scaling analysis of the solute boundary layer in idealized growth configurations. *Journal of crystal growth*, 1990. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(90\)90090-8](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(90)90090-8). (Cité pages 45 et 46.)
- [39] J.P. Garandet, S. Corre, S. Kaddeche, and T. Alboussière. The influence of convection on the duration of the initial solute transient in alloy crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, 2000. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(99\)00630-2](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(99)00630-2). (Cité pages 21, 42, et 97.)
- [40] J.P. Garandet, N. Kaupp, and D. Pelletier. The effect of lid driven convective transport on lateral solute segregation in the vicinity of a crucible wall. *Journal of Crystal Growth*, 2012. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.09.026>. (Cité page 101.)
- [41] J.P. Garandet, N. Kaupp, D. Pelletier, and Y. Delannoy. Solute segregation in a lid driven cavity : Effect of the flow on the boundary layer thickness and solute segregation. *Journal of Crystal Growth*, 2012. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2011.11.071>. (Cité pages 21, 22, 46, 47, 48, 62, 67, 73, 81, 82, 85, 86, 87, 88, 101, 102, 106, 127, et 177.)
- [42] U. Ghia, K.N. Ghia, and C.T. Shin. High-Re solutions for incompressible flow using the navier-stokes equations and a multigrid method. *Journal of Computational Physics*, 1982. [http://dx.doi.org/10.1016/0021-9991\(82\)90058-4](http://dx.doi.org/10.1016/0021-9991(82)90058-4). (Cité pages 21, 22, 68, et 69.)
- [43] C.J. Glassbrenner and G.A. Slack. Thermal Conductivity of Silicon and Germanium from 3°K to the Melting Point. *Physical Review*, 134, 1964. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.134.A1058>. (Cité pages 19, 149, et 205.)
- [44] I. Grants and G. Gerbeth. Use of a traveling magnetic field in vgf growth : Flow reversal and resulting dopant distribution. *Journal of Crystal Growth*, 2008. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2008.05.025>. (Cité page 51.)
- [45] F.Z. Haddad, J.P. Garandet, D. Henry, and H. Ben Hadid. Analysis of the unsteady segregation in crystal growth from a melt. *Journal of Crystal Growth*, 1999. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(99\)00093-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(99)00093-7). (Cité pages 92 et 140.)
- [46] F.Z. Haddad, J.P. Garandet, D. Henry, and H. Ben Hadid. Analysis of the unsteady segregation in crystal growth from a melt part II : fluctuating convection velocity. *Journal of Crystal Growth*, 2000. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(00\)00587-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(00)00587-X). (Cité pages 92 et 140.)
- [47] J.F. Hall, M. Barigou, M.J.H. Simmons, and E.H. Stitt. A piv study of hydrodynamics in gas-liquid high throughput experimentation (hte) reactors with eccentric impeller configurations. *Chemical Engineering Science*, 2005. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2005.03.044>. (Cité page 59.)
- [48] Robert Hull and Institution of Electrical Engineers, editors. *Properties of crystalline silicon*. EMIS datareviews series. INSPEC, London, 1999. ISBN 0852969333. (Cité page 205.)
- [49] ANSYS Inc. Ansys fluent 14.0 - theory guide, 2011. (Cité pages 65, 150, 151, 152, et 153.)

- [50] Fraunhofer ISE. Photovoltaics report. Technical report, Freiburg, November 2015. www.ise.fraunhofer.de. (Cité pages 29 et 30.)
- [51] ITRPV. International technology roadmap for photovoltaic results 2015. Technical report, 2015. <http://www.itrpv.net>. (Cité page 31.)
- [52] J.B. Joshi, N.K. Nere, C.V. Rane, B.N. Murthy, C.S. Mathpati, A.W. Patwardhan, and V.V. Ranade. Cfd simulation of stirred tanks : Comparison of turbulence models (Part II : Axial flow impellers, multiple impellers and multiphase dispersions). *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2011. <http://doi.wiley.com/10.1002/cjce.20465>. (Cité page 136.)
- [53] T. Jung, J. Seebeck, and J. Friedrich. Combined global 2d-local 3D modeling of the industrial Czochralski silicon crystal growth process. *Journal of Crystal Growth*, pages 72–80, 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.01.026>. (Cité page 49.)
- [54] S. Kaddeche, J.P. Garandet, D. Henry, H. Ben Hadid, and A. Mojtabi. On the effect of natural convection on solute segregation in the horizontal Bridgman configuration : Convergence of a theoretical model with numerical and experimental data. *Journal of Crystal Growth*, 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2014.10.009>. (Cité page 48.)
- [55] H. Kawamura, H. Fukuyama, M. Watanabe, and T. Hibiya. Normal spectral emissivity of undercooled liquid silicon. *Measurement Science and Technology*, 16, 2005. doi : 10.1088/0957-0233/16/2/009. <http://dx.doi.org/10.1088/0957-0233/16/2/009>. (Cité pages 19, 149, et 205.)
- [56] H. Kodera. Diffusion Coefficients of Impurities in Silicon Melt. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1963. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.2.212>. (Cité pages 19, 20, 36, 37, 104, et 205.)
- [57] G.N. Kozhemyakin, L.V. Nemets, and A.A. Bulankina. Simulation of ultrasound influence on melt convection for the growth of GaxIn1-xSb and Si single crystals by the Czochralski method. *Ultrasonics*, 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultras.2014.06.006>. (Cité page 51.)
- [58] W. Kurz and D.J. Fisher. *Fundamentals of solidification*. Trans Tech Publ, 3. rev. ed., reprinted edition, 1992. ISBN 0-87849-522-3. (Cité page 38.)
- [59] R.F. La Fontaine and I.C. Shepherd. Particle image velocimetry applied to a stirred vessel. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 1996. [http://dx.doi.org/10.1016/0894-1777\(95\)00096-8](http://dx.doi.org/10.1016/0894-1777(95)00096-8). (Cité page 58.)
- [60] L. Liu and K. Kakimoto. Partly three-dimensional global modeling of a silicon Czochralski furnace. I. Principles, formulation and implementation of the model. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2005. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.04.031>. (Cité page 50.)
- [61] J.Y. Luo, R.I. Issa, and A.D. Gosman. Prediction of impeller induced flows in mixing vessels using multiple frames of reference. Institution of Chemical Engineers Symposium Series, Univ Cambridge, England, 1994. Inst. Chemical Engineers. (Cité page 55.)
- [62] S. Malik, E. Lévêque, M. Bouaifi, L. Gamet, E. Flottes, S. Simoëns, and M. El-Hajem. Shear improved Smagorinsky model for large eddy simulation of flow in a stirred tank

- with a Rushton disk turbine. *Chemical Engineering Research and Design*, 108, 2016. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2016.02.035>. (Cité page 136.)
- [63] G. Masson, S. Orlandi, and M. Rekinge. Global market outlook for photovoltaics 2014-2018. Technical report, EPIA, 2014. (Cité page 29.)
- [64] P. Mavros. Flow visualization in stirred vessels. *Chemical Engineering Research and Design*, 2001. <http://dx.doi.org/10.1205/02638760151095926>. (Cité page 57.)
- [65] P. Meunier and T. Leweke. Analysis and treatment of errors due to high velocity gradients in particle image velocimetry. *Experiments in Fluids*, 2003. <http://dx.doi.org/10.1007/s00348-003-0673-2>. (Cité pages 58, 115, et 122.)
- [66] P. Meunier, T. Leweke, R. Lebescond, B. Van Aughem, and C. Wang. Dpivsoft user guide, 2004. <https://www.irphe.fr/~meunier/>. (Cité pages 24, 114, 122, et 123.)
- [67] K.C. Mills and L. Courtney. Thermophysical Properties of Silicon. *ISIJ International*, 40, 2000. http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.40.Suppl_S130. (Cité pages 19, 149, 151, et 205.)
- [68] J.J. Monaghan, H.E. Huppert, and M.G. Worster. Solidification using smoothed particle hydrodynamics. *Journal of Computational Physics*, 206, 2005. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcp.2004.11.039>. (Cité page 176.)
- [69] D. Morvan, J. Amouroux, and G. Revel. Mise au point d'une technique de fusion de zone sous plasma appliquée à la préparation du silicium photovoltaïque. *Revue de Physique Appliquée*, 1980. <http://dx.doi.org/10.1051/rphysap:019800015070122900>. (Cité pages 19, 20, 36, 37, 104, et 205.)
- [70] B. Moudjed. *Caractérisation expérimentale et théorique des écoulements entraînés par ultrasons. Perspectives d'utilisation dans les procédés de solidification du Silicium Photovoltaïque*. PhD thesis, INSA de Lyon, 2013. <http://theses.insa-lyon.fr/publication/2013ISAL0145/these.pdf>. (Cité page 178.)
- [71] B. Moudjed, V. Botton, D. Henry, H. Ben Hadid, and J.-P. Garandet. Scaling and dimensional analysis of acoustic streaming jets. *Physics of Fluids*, 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4895518>. (Cité page 51.)
- [72] W.W. Mullins and R.F. Sekerka. Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy. *Journal of Applied Physics*, 1964. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1713333>. (Cité page 37.)
- [73] A.W. Patwardhan. Prediction of Flow Characteristics and Energy Balance for a Variety of Downflow Impellers. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2001. <http://dx.doi.org/10.1021/ie000455x>. (Cité page 55.)
- [74] K.A. Pericleous and M.K. Patel. Modelling of tangential and axial agitators in chemical reactors. *PCH. Physicochemical hydrodynamics*, 1987. (Cité page 55.)
- [75] S.B. Pope. *Turbulent flows*. Cambridge University Press, Cambridge; New York, 2000. ISBN 978-0-521-59125-6. (Cité pages 21 et 45.)

- [76] M. Raffel, editor. *Particle image velocimetry : a practical guide*. Springer, Heidelberg ; New York, 2nd ed edition, 2007. ISBN 978-3-540-72307-3. (Cité page 122.)
- [77] W.K. Rhim and K. Ohsaka. Thermophysical properties measurement of molten silicon by high-temperature electrostatic levitator : density, volume expansion, specific heat capacity, emissivity, surface tension and viscosity. *Journal of crystal growth*, 208, 2000. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(99\)00437-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(99)00437-6). (Cité pages 19, 148, 149, et 205.)
- [78] S. Rhouzlane. Modélisation des phénomènes de transport solutal pour la purification du silicium photovoltaïque. Rapport de stage de master, Laboratoire de Mécanique des Fluides et d'Acoustique, CNRS/Université de Lyon, Ecole Centrale de Lyon/Université Lyon 1/INSA de Lyon, 2015. (Cité page 95.)
- [79] M. Roustan, J.C. Pharamond, and A. Line. *Agitation. Melange : Concepts Theoriques Base*. Ed. Techniques Ingenieur, 1999. <http://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/operations-unitaires-agitation-et-melange-42486210/>. (Cité pages 21, 51, 52, 53, et 112.)
- [80] F.B. Santara. *Cristallisation du silicium photovoltaïque sous induction électromagnétique : étude d'une vanne de rétention et de la ségrégation sous brassage*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble-INPG, 2010. <http://hal.archives-ouvertes.fr/tel-00526496/>. (Cité pages 48, 67, 127, et 129.)
- [81] V.G. Smith, W.A. Tiller, and J.W. Rutter. A mathematical analysis of solute redistribution during solidification. *Canadian Journal of Physics*, 1955. <http://dx.doi.org/10.1139/p55-089>. (Cité pages 21 et 40.)
- [82] D.B. Spalding. Concentration fluctuations in a round turbulent free jet. *Chemical Engineering Science*, 1971. [http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509\(71\)86083-9](http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(71)86083-9). (Cité page 65.)
- [83] C. Stelian, Y. Delannoy, Y. Fautrelle, and T. Duffar. Solute segregation in directional solidification of GaInSb concentrated alloys under alternating magnetic fields. *Journal of Crystal Growth*, 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2004.02.047>. (Cité page 50.)
- [84] E. Takasuka, E. Tokizaki, K. Terashima, and S. Kimura. Emissivity of liquid silicon in visible and infrared regions. *Journal of Applied Physics*, 81, 1997. <http://dx.doi.org/10.1063/1.364418>. (Cité pages 19, 149, et 205.)
- [85] C. Tanasie, D. Vizman, and J. Friedrich. Numerical study of the influence of different types of magnetic fields on the interface shape in directional solidification of multi-crystalline silicon ingots. *Journal of Crystal Growth*, 2011. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2010.11.034>. (Cité page 51.)
- [86] K. Tang, E.J. Øvrelid, G. Tranell, and M. Tangstad. Critical assessment of the impurity diffusivities in solid and liquid silicon. *JOM*, 2009. <http://dx.doi.org/10.1007/s11837-009-0167-7>. (Cité pages 19, 20, 36, 37, 104, et 205.)
- [87] Y.Y. Teng, J.C. Chen, C.W. Lu, and C.Y. Chen. The carbon distribution in multicrystalline silicon ingots grown using the directional solidification process. *Journal of Crystal Growth*, 2010. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2009.11.020>. (Cité pages 50 et 89.)

- [88] V. Thenault. Ségrégation des impuretés métalliques dans le silicium liquide : Etude de l'influence du champ de vitesse sur le keff. Rapport de stage, CEA, 2014. (Cité page 199.)
- [89] W.A. Tiller, K.A. Jackson, J.W. Rutter, and B. Chalmers. The redistribution of solute atoms during the solidification of metals. *Acta Metallurgica*, 1953. [http://dx.doi.org/10.1016/0001-6160\(53\)90126-6](http://dx.doi.org/10.1016/0001-6160(53)90126-6). (Cité pages 21, 27, 37, 39, 40, 171, et 175.)
- [90] Y. Tominaga and T. Stathopoulos. Turbulent Schmidt numbers for CFD analysis with various types of flowfield. *Atmospheric Environment*, 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.06.054>. (Cité page 65.)
- [91] V.R. Voller and C. Prakash. A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 30, 1987. [http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310\(87\)90317-6](http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310(87)90317-6). (Cité page 151.)
- [92] V.R. Voller and C.R. Swaminathan. General source-based method for solidification phase change. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, 19, 1991. <http://dx.doi.org/10.1080/10407799108944962>. (Cité page 152.)
- [93] L.O. Wilson. On interpreting a quantity in the burton, prim and slichter equation as a diffusion boundary layer thickness. *Journal of Crystal Growth*, 44, 1978. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(78\)90199-9](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(78)90199-9). (Cité page 41.)
- [94] Q. Xiao, S. Kuppurao, A. Yeckel, and J.J. Derby. On the effects of ampoule tilting during vertical bridgman growth : three-dimensional computations via a massively parallel, finite element method. *Journal of Crystal Growth*, 1996. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(96\)00231-X](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(96)00231-X). (Cité page 127.)
- [95] Y. Xu and G. McGrath. CFD predictions of stirred tank flows. volume 74 of *Chemical engineering research & design*, pages 415–504, Amsterdam, PAYS-BAS, 1996. Elsevier. (Cité page 55.)
- [96] E. Yamasue, M. Susa, H. Fukuyama, and K. Nagata. Thermal conductivities of silicon and germanium in solid and liquid states measured by non-stationary hot wire method with silica coated probe. *Journal of Crystal Growth*, 234, 2002. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)01673-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(01)01673-6). (Cité pages 19, 149, et 205.)

Annexe A

Synthèse des mesures PIV

Les tableaux A.1, A.2, A.3 et A.4 regroupent pour les différentes configurations de mesure, l'intervalle de temps utilisé pour le traitement PIV, la moyenne des normes des déplacements calculés et la moyenne des pourcentages de vecteurs aberrants détectés sur les champs instantanés.

Tableau A.1 – Synthèse des calculs PIV pour la configuration 1 ($N = 35$ rpm et $H = 15$ cm).

plan de mesure	f_{cam} (fps)	dt (ms)	$\ \vec{U}\ _{moyen}$ (pixels)	vecteurs aberrants
h1	250	12	4.6	6.0%
h2	250	12	3.3	7.0%
h3	250	8	1.6	7.1%
h4	250	8	1.3	7.6%
h5	250	8	1.7	7.4%
v1	250	8	1.6	5.5%
v2	250	8	1.7	4.5%
v3	250	8	1.5	4.1%
v4	250	8	1.3	3.2%
v5	250	8	1.2	6.1%

Tableau A.2 – Synthèse des calculs PIV pour la configuration 2 ($N = 70$ rpm et $H = 15$ cm).

plan de mesure	f_{cam} (fps)	dt (ms)	$\ \vec{U}\ _{moyen}$ (pixels)	vecteurs aberrants
h1	250	4	3.1	1.6%
h2	250	4	2.2	3.4%
h3	250	4	1.6	4.9%
h4	250	4	1.3	6.4%
h5	250	4	1.0	4.8%
v1	250	4	1.7	6.0%
v2	250	4	1.8	5.3%
v3	250	4	1.5	6.2%
v4	250	4	1.3	6.0%
v5	250	4	1.2	6.5%

Tableau A.3 – Synthèse des calculs PIV pour la configuration 3 ($N = 170$ rpm et $H = 15$ cm).

plan de mesure	f_{cam} (fps)	dt (ms)	$\ \vec{U}\ _{moyen}$ (pixels)	vecteurs aberrants
h1	500	2	3.9	3.1%
h2	500	2	2.7	6.1%
h3	500	2	2.0	8.9%
h4	500	2	1.6	10%
h5	500	2	1.2	7.2%
v1	500	2	2.2	3.6%
v2	500	2	2.2	4.0%
v3	500	2	1.8	4.6%
v4	500	2	1.7	6.5%
v5	500	2	1.5	6.2%

Tableau A.4 – Synthèse des calculs PIV pour les configurations 4 à 9.

n°	plan	f_{cam} (fps)	dt (ms)	$\ \vec{U}\ _{moyen}$ (pixels)	vecteurs aberrants
4	v1	250	8	1.4	3.4%
5	v1	250	4	1.7	3.5%
6	v1	500	2	2.0	3.2%
7	v1	250	4	0.67	5.8%
8	v1	250	4	1.2	7.9%
9	v1	500	2	0.82	8.2%

Le tableau A.5 présente pour chaque mesure les gradients moyens $\|\nabla\vec{U}\|_{moyen}$ et maximum $\|\nabla\vec{U}\|_{max}$ obtenus sur les champs instantanés de déplacement. Il indique également l'incertitude relative ε_{tot} estimée pour chaque mesure à partir des gradients et des déplacements moyens par l'approche présentée dans la section 3.1.3.3.

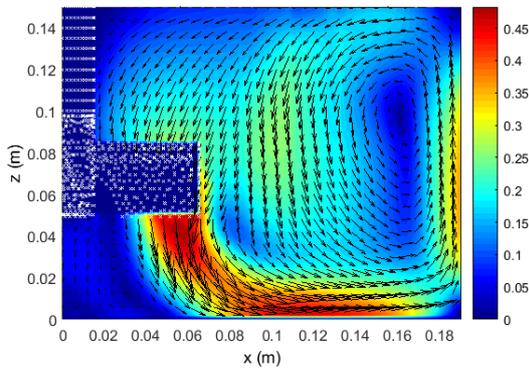
Tableau A.5 – Gradients moyens $\|\nabla\vec{U}\|_{moyen}$ et maximum $\|\nabla\vec{U}\|_{max}$ et incertitude relative ε_{tot} obtenus pour chaque configuration de mesure.

configuration	H (cm)	N (rpm)	plan	$\ \nabla\vec{U}\ _{moyen}$ (pix·pix ⁻¹)	$\ \nabla\vec{U}\ _{max}$ (pix·pix ⁻¹)	ε_{tot} (%)
1	15	35	v1	0.0395	0.462	7.29
1	15	35	v2	0.0393	0.457	6.86
1	15	35	v3	0.0323	0.443	7.77
1	15	35	v4	0.0281	0.218	8.97
1	15	35	v5	0.0295	0.226	9.72
1	15	35	h1	0.0838	0.544	2.54
1	15	35	h2	0.0779	0.634	3.53
1	15	35	h3	0.0427	0.438	7.29
1	15	35	h4	0.0371	0.478	8.97
1	15	35	h5	0.0420	0.571	7.77
2	15	70	v1	0.0400	0.395	6.86
2	15	70	v2	0.0425	0.493	6.48
2	15	70	v3	0.0337	0.429	7.77
2	15	70	v4	0.0309	0.347	8.97
2	15	70	v5	0.0305	0.256	9.72
2	15	70	h1	0.0490	0.242	3.76
2	15	70	h2	0.0466	0.311	5.30
2	15	70	h3	0.0395	0.351	7.29
2	15	70	h4	0.0361	0.472	8.97
2	15	70	h5	0.0286	0.359	11.66
3	15	170	v1	0.0478	0.517	5.30
3	15	170	v2	0.0488	0.570	5.30
3	15	170	v3	0.0383	0.456	6.48
3	15	170	v4	0.0374	0.445	6.86
3	15	170	v5	0.0372	0.557	7.77
3	15	170	h1	0.0572	0.255	2.99
3	15	170	h2	0.0514	0.290	4.32
3	15	170	h3	0.0464	0.388	5.83
3	15	170	h4	0.0405	0.392	7.29
3	15	170	h5	0.0298	0.227	9.72
4	20	35	v1	0.0312	0.360	8.33
5	20	70	v1	0.0356	0.390	6.86
6	20	170	v1	0.0399	0.503	5.83
7	10	35	v1	0.0204	0.160	17.41
8	10	70	v1	0.0375	0.495	9.72
9	10	100	v1	0.0272	0.355	14.22

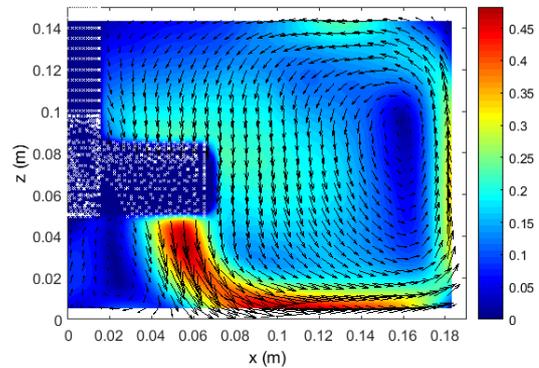
Annexe B

Résultats expérimentaux et numériques de brassage

Cette annexe complète la comparaison des résultats numériques et expérimentaux de champs de vitesse présentés dans la section 3.2.3.2. Les figures B.1 et B.2 présentent les champs de vitesse normalisés obtenus dans les différents plans de mesure verticaux et horizontaux (figure 3.3). Ces résultats correspondent à la configuration de mesure 3, avec une hauteur de liquide de 15 cm et une vitesse de rotation dans l'eau de 170 rpm (soit une vitesse de rotation dans le silicium de 50 rpm). D'un point de vue qualitatif, ces figures montrent que les simulations reproduisent bien la structure 3D de l'écoulement observée expérimentalement. Sur l'ensemble des plans verticaux, on retrouve la recirculation principale qui occupe la totalité de la cuve. Cette recirculation apparaît de plus en plus déformée à mesure que l'on s'écarte de l'axe de rotation de l'agitateur (du plan v1 vers le plan v5). Ceci est lié à la forme torique de cette recirculation 3D. Concernant les plans horizontaux, le plan h1 (figure B.2.A) met en évidence l'écoulement parallèle obtenu sur la paroi du fond grâce au jet de l'agitateur. Lorsque l'on remonte vers l'agitateur (du plan h1 vers le plan h5), on observe une mise en rotation du fluide dans la zone balayée par les pales. La composante radiale de l'écoulement donne lieu à des structures assez complexes dans le reste de la cuve, avec différentes recirculations liées aux parois latérales (figure B.2.C, D et E).



A1 - Simulation - Plan v1



A2 - Mesure - Plan v1

FIGURE B.1 – Comparaison des champs de vitesse normalisés numériques et expérimentaux pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$) dans les plans verticaux. Les vecteurs représentent les deux composantes coplanaires de la vitesse (V_x et V_z) et les contours de couleurs représentent l'amplitude de ces vecteurs normalisés (*à suivre*).

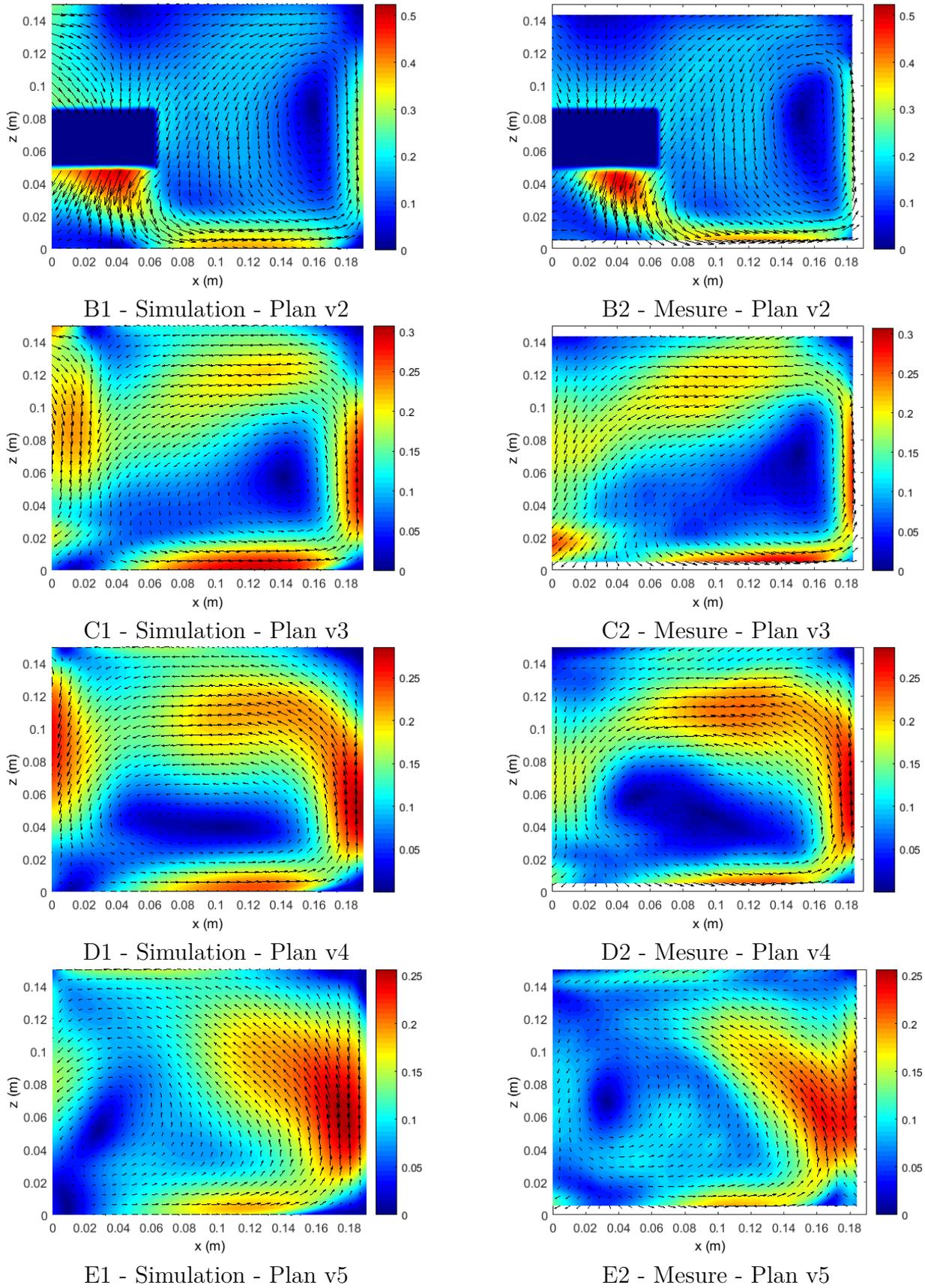


FIGURE B.1 – suite

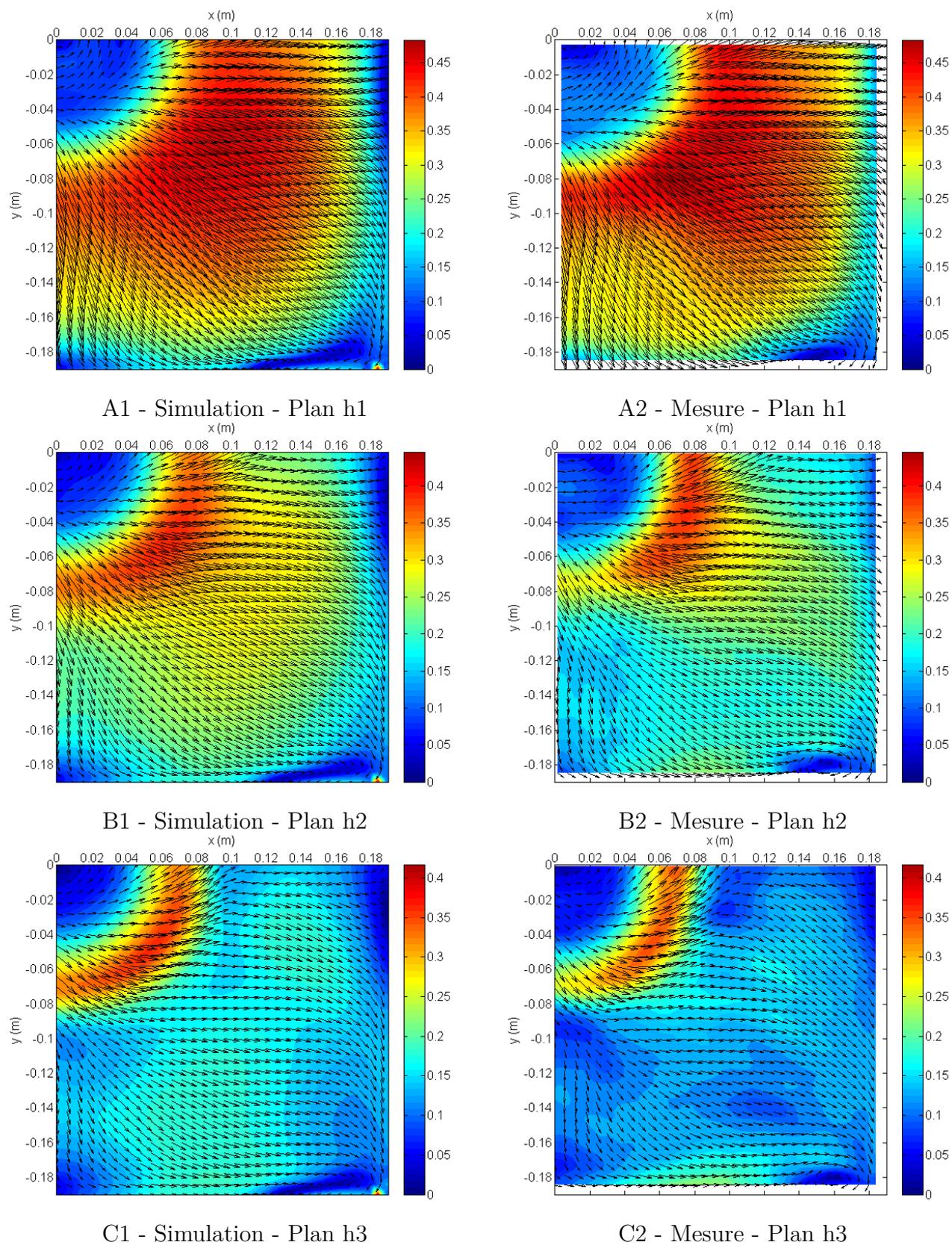


FIGURE B.2 – Comparaison des champs de vitesse normalisés numériques et expérimentaux pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$) dans les plans horizontaux. Les vecteurs représentent les deux composantes coplanaires de la vitesse (V_x et V_y) et les contours de couleurs représentent l'amplitude de ces vecteurs normalisés (*à suivre*).

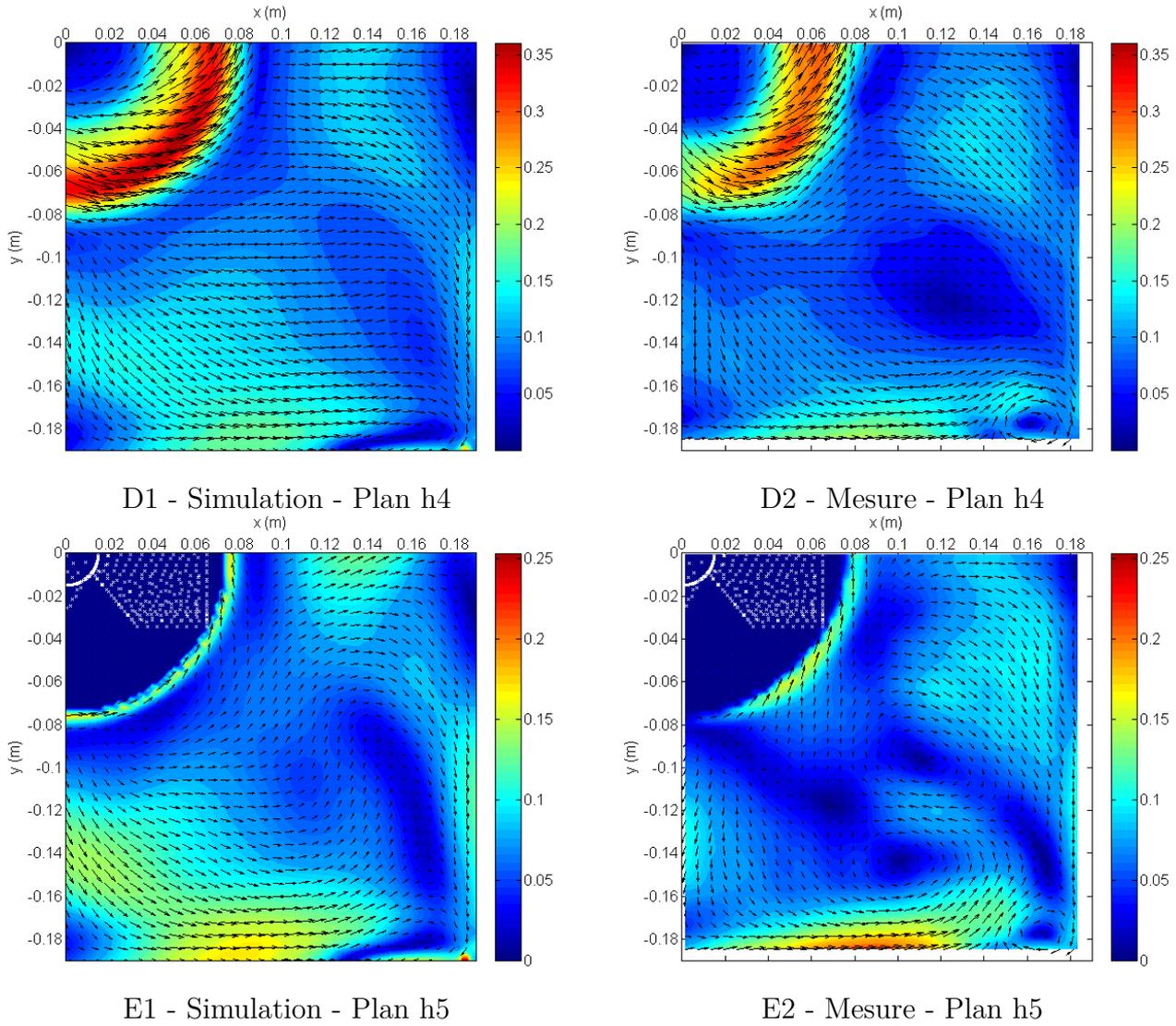


FIGURE B.2 – suite

Les tableaux B.1, B.2 et B.3 donnent pour les configurations 1, 2 et 3, les écarts relatifs des amplitudes maximales de vitesse obtenues numériquement par rapport aux valeurs mesurées. Ces écarts sont donnés pour tous les plans étudiés expérimentalement et sont inférieurs à $\pm 20\%$. Les résultats des simulations numériques semblent donc raisonnables compte tenu de l'incertitude des mesures PIV (estimée de l'ordre de $\pm 10\%$) et des limites du modèle utilisé.

Tableau B.1 – Erreur relative sur l'amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 1 ($H = 15$ cm et $Re = 6.0 \times 10^4$).

plan vertical	erreur relative	plan horizontal	erreur relative
v1	0.609%	h1	-3.35%
v2	19.1%	h2	-10.9%
v3	-7.60%	h3	-13.1%
v4	3.58%	h4	-14.1%
v5	11.7%	h5	-9.05%

Tableau B.2 – Erreur relative sur l’amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 2 ($H = 15$ cm et $Re = 1.2 \times 10^5$).

plan vertical	erreur relative	plan horizontal	erreur relative
v1	-0.805%	h1	-1.15%
v2	2.30%	h2	-6.86%
v3	6.00%	h3	-7.92%
v4	5.07%	h4	-1.97%
v5	4.71%	h5	-22.7%

Tableau B.3 – Erreur relative sur l’amplitude maximale du champ de vitesse numérique par rapport à la valeur mesurée, pour la configuration 3 ($H = 15$ cm et $Re = 3.0 \times 10^5$).

plan vertical	erreur relative	plan horizontal	erreur relative
v1	0.0633%	h1	1.50%
v2	5.87%	h2	15.0%
v3	2.30%	h3	20.1%
v4	0.932%	h4	14.7%
v5	9.45%	h5	18.4%

Annexe C

Comparaison expérimentale et numérique de profils de ségrégation

Cette annexe propose une comparaison entre les résultats numériques de ségrégation obtenus avec le modèle 2D (chapitre 2) et des expériences de solidification dirigée réalisées au LMPS. L'objectif est de vérifier la cohérence du modèle numérique vis à vis du phénomène étudié et d'identifier les limites de la configuration de cavité entraînée pour l'étude de la ségrégation en présence d'une convection forcée. La première partie de cette annexe présente le protocole expérimental utilisé pour la réalisation des lingots et l'estimation des profils de concentration. La seconde partie traite de la démarche numérique mise en œuvre et compare les résultats numériques et expérimentaux.

C.1 Procédure expérimentale

Les expériences de purification par solidification dirigée qui sont présentées dans ce paragraphe ont été réalisées dans le cadre du stage de Victorien Thenault [88], encadré par Claire Audoin. Ces expériences ont pour objectif d'étudier l'influence du champ de convection sur la ségrégation des impuretés métalliques lors de la solidification dirigée du silicium. On utilise une charge de silicium de haute pureté (grade électronique) que l'on vient contaminer avec une concentration connue d'impureté. Le cycle de fusion et solidification dirigée a été effectué dans un four de cristallisation équipé d'un agitateur mécanique dont la géométrie a été présentée dans la section 1.2.2. Une charge de 60 kg de silicium est placée dans un creuset de dimension G2 (largeur de 38 cm) et le lingot final a une hauteur de 18 cm. La configuration thermique est différente de celle présentée dans le chapitre 4 et plus complexe à modéliser puisque le four présente trois zones de chauffe ainsi qu'un extracteur de chaleur mobile. Le cycle dure environ 30 heures et la vitesse de solidification est de l'ordre de $3 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$. Deux expériences ont été réalisées avec différents paramètres de brassage. Pour la première expérience la vitesse de rotation de l'agitateur est imposée à 50 rpm et l'agitateur est retiré lorsque la hauteur solidifiée atteint 85%. Pour la seconde, la vitesse de rotation est fixée à 20 rpm et l'agitateur est retiré lorsque la hauteur solidifiée atteint 74%. Pour ces deux expériences, la distance entre le brasseur et le front de solidification est maintenue à 5 cm, dans la mesure du possible.

Les profils de concentration dans les lingots sont ensuite estimés à partir d'une mesure de résistivité par une procédure expérimentale développée au LMPS. Les lingots sont alors découpés en plaques de 2 cm d'épaisseur sur lesquelles ces mesures sont réalisées. Deux outils de mesure de résistivité ont été utilisés : le WT-2010D et une pointe RT1000, tous deux produits par la société SEMILAB. Ils permettent de réaliser une mesure hors contact par courant de *Foucault*. La pointe RT1000 offre une limite de détection plus basse mais une résolution spatiale plus limitée que le WT-2010D. Le choix de l'impureté introduite et de la concentration initiale est essentiel pour pouvoir étudier la ségrégation. Compte tenu de la méthode utilisée, l'impureté doit être électriquement active dans le silicium. De plus, le coefficient de ségrégation k_0 doit être suffisamment faible pour obtenir le phénomène de ségrégation et suffisamment élevé

pour que les concentrations en bas de lingot restent détectables. L'aluminium a donc été choisi comme contaminant car il présente un coefficient de partage intermédiaire ($k_{0al} = 2 \times 10^{-3}$) et la concentration initiale a été fixée à 65 ppm (en fraction massique). Cette concentration est suffisamment élevée pour que toutes les autres sources d'impuretés soient négligeables (contamination initiale de la charge, pollution par le creuset ou par l'atmosphère du four) et elle permet d'obtenir des résistivités mesurables par les outils disponibles.

La figure C.1 donne une image infrarouge de la plaque centrale du lingot SUSI 104. Comme le silicium est transparent aux infrarouges, cette image permet de révéler les précipités d'impuretés. Une zone de précipitation apparaît clairement en haut de lingot. La forme de cette zone est représentative de la forme du front de solidification à l'instant où la concentration à l'interface a dépassé le seuil de précipitation. Ici le front de solidification est concave. La figure C.2 présente le résultat de la mesure de résistivité par le WT-2010D sur cette même plaque. Les profils de concentration sont obtenus à partir de ces cartographies de résistivité.

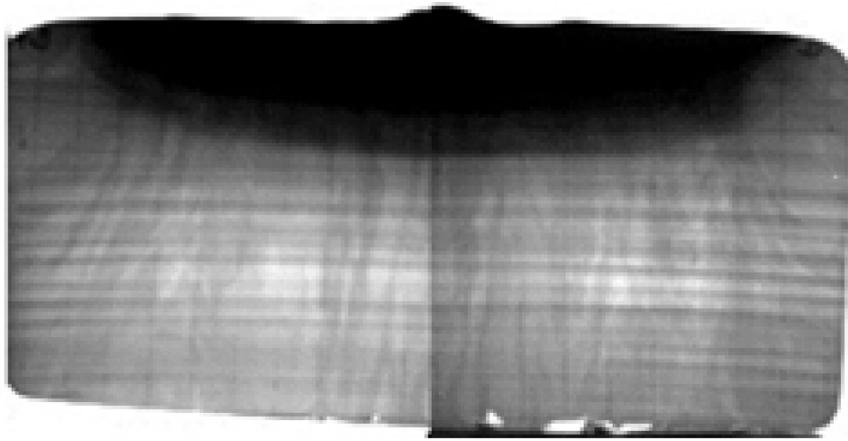


FIGURE C.1 – Photo infrarouge de la plaque centrale du lingot SUSI 104.

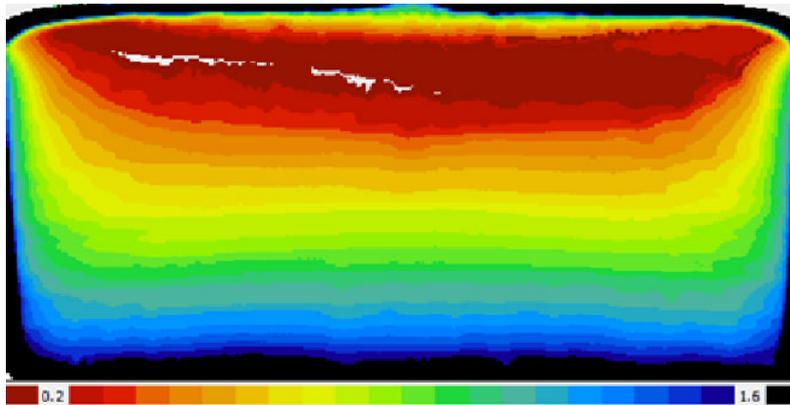


FIGURE C.2 – Mesure de résistivité ($\Omega \cdot \text{cm}$) de la plaque centrale du lingot SUSI 104.

C.2 Etude numérique

C.2.1 Paramètres de simulation

Afin de simuler l'expérience présentée dans le paragraphe précédent les paramètres du modèle 2D sont définis comme suit :

- Coefficient de ségrégation de l'aluminium [37] : $k_{0al} = 2 \times 10^{-3}$.
- Coefficient de diffusion de l'aluminium [37] : $D_{al} = 6.8 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.
- Concentration initiale d'aluminium : $C_0 = 65 \text{ ppm}$.

En première approche, nous conservons une vitesse de solidification $V_I = 3.6 \text{ cm} \cdot \text{h}^{-1}$ (identique aux simulations présentées dans le chapitre 2 et proche de la vitesse estimée expérimentalement). Pour définir la vitesse d'entraînement V_E nous utilisons les résultats des simulations de brassage présentés dans la section 3.2. En effet, ces simulations nous renseignent sur l'intensité du champ de vitesse et de la contrainte de frottement à l'interface pour des vitesses de rotation de 50 et 20 rpm. Nous en déduisons les vitesses d'entraînement V_E à appliquer dans le modèle 2D afin d'obtenir une convection de même intensité. Pour le cas à 50 rpm nous imposons $V_{E1} = 0.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et pour le cas à 20 rpm nous imposons $V_{E2} = 0.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Les figures C.3.A et C.3.B donnent les profils de contrainte de frottement à l'interface obtenus avec les modèles 2D et 3D. On peut voir que pour les deux régimes étudiés, la convection imposée dans le modèle 2D est bien du même ordre de grandeur que celle estimée par le modèle 3D. Pour ces deux régimes d'écoulement, les nombres de *Reynolds* sont respectivement $Re_{L1} = 1.36 \times 10^5$ et $Re_{L2} = 6.80 \times 10^4$. En se basant sur les résultats de simulations présentés dans le chapitre 2, on peut déjà remarquer que l'on se situe dans des régimes fortement convectifs, favorables à la ségrégation dans la partie haute du lingot.

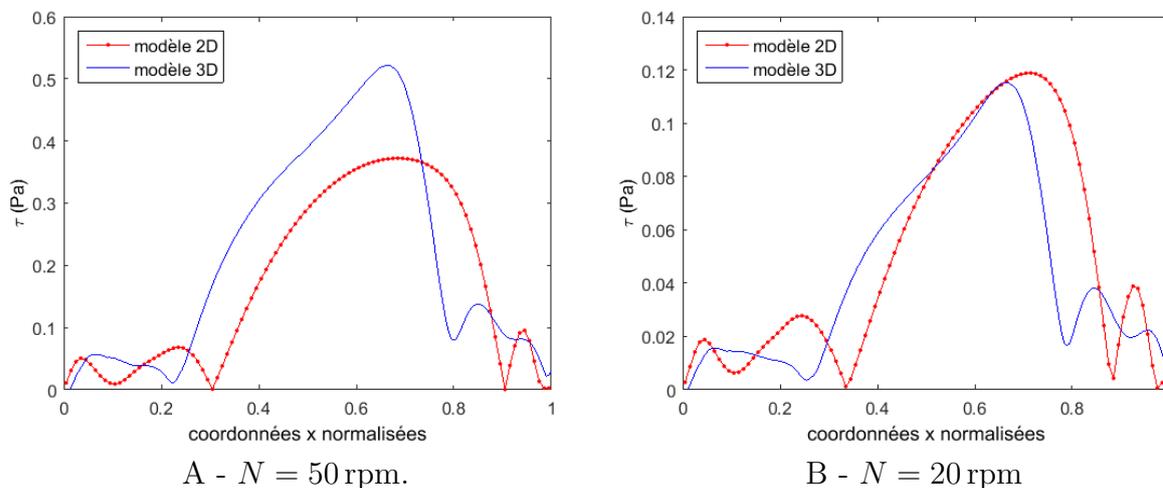


FIGURE C.3 – Profils de contrainte de frottement obtenus par simulation 2D de cavité entraînée et par simulations 3D de brassage avec maillage glissant pour $N = 50 \text{ rpm}$ (A) et $N = 20 \text{ rpm}$ (B).

C.2.2 Comparaison des résultats

Les figures C.4 et C.5 donnent les champs de concentration d'aluminium mesurés sur les tranches centrales des lingots et ceux calculés numériquement. Pour le brassage à 50 rpm, les gradients verticaux de concentration obtenus expérimentalement et numériquement en $x = 0.1 \text{ m}$ sont qualitativement similaires. Néanmoins, les iso-concentrations numériques sont quasiment

horizontales alors que les iso-concentrations expérimentales sont concaves. Cette différence provient du fait que le front de solidification est supposé plan dans le modèle numérique. Par ailleurs, il y a un décalage d'environ 1 cm entre les iso-concentrations numériques et expérimentales en $x = 0.1$ m. Pour le brassage à 20 rpm, les résultats expérimentaux et numériques sont en moins bon accord. Le décalage entre les iso-concentrations numériques et expérimentales en $x = 0.1$ m est d'environ 3.5 cm. On remarque également que les profils numériques à 20 et 50 rpm sont quasiment similaires. Il n'y a donc pas suffisamment d'écart entre les deux régimes d'écoulement pour influencer significativement le calcul de ségrégation. Contrairement aux simulations, l'expérience 2 présente une moins bonne ségrégation que l'expérience 1. Cependant, la vitesse d'agitation n'est pas le seul paramètre influent. On peut citer la distance entre le front et l'agitateur qui est un paramètre difficile à contrôler expérimentalement, la durée du brassage ou encore la vitesse de solidification qui évolue au cours du procédé.

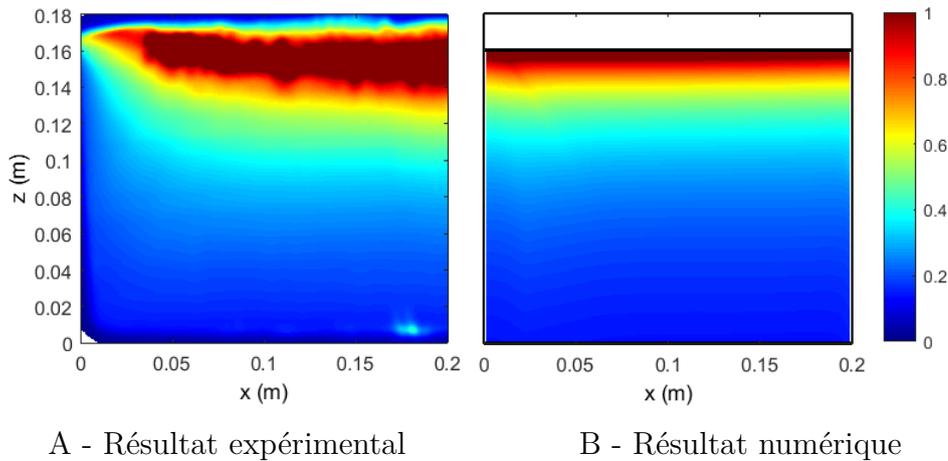


FIGURE C.4 – Champs de concentration en aluminium (en fraction massique), obtenus expérimentalement (A) et numériquement (B), pour le cas $N = 50$ rpm.

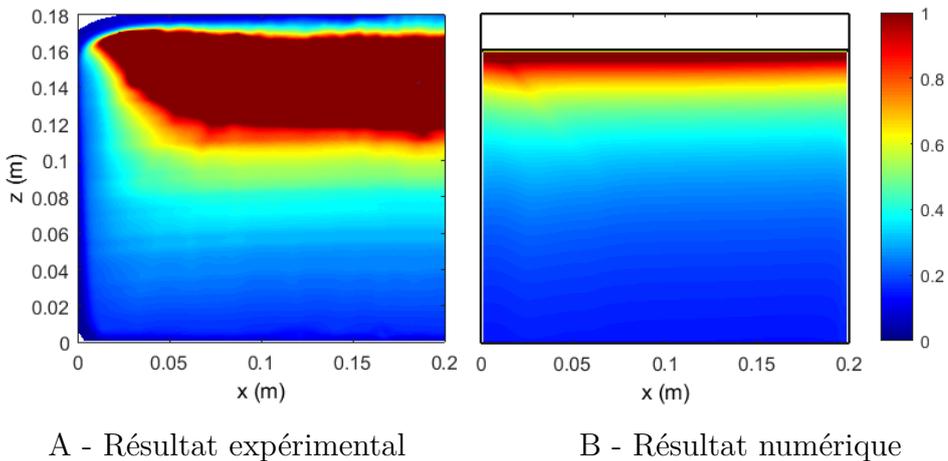


FIGURE C.5 – Champs de concentration en aluminium (en fraction massique), obtenus expérimentalement (A) et numériquement (B), pour le cas $N = 20$ rpm.

Pour approfondir la comparaison des résultats nous avons tracé sur les figures C.6.A et C.6.B les profils de concentration en aluminium au centre des lingots et au centre des cavités 2D, en fonction de la fraction solide. À titre comparatif nous avons également tracé le profil prédit par la loi de *Scheil*. Pour les deux régimes d'écoulement étudiés les profils numériques sont très proches de la loi de *Scheil*, ce qui implique une ségrégation optimale des impuretés. Pour les profils expérimentaux nous avons tracé deux courbes qui correspondent aux mesures réalisées

avec le WT-2010D et le RT1000. Dans le cas du brassage à 50 rpm, le profil expérimental suit assez bien la loi de *Scheil* et le profil numérique durant la première moitié de la solidification. Au delà de $f_s = 0.55$ les résultats expérimentaux et numériques divergent. Expérimentalement la ségrégation est moins efficace en fin de procédé. On peut supposer que le système de brassage est moins performant lorsque la hauteur de liquide devient faible. Ce phénomène n'est pas pris en compte dans les simulations 2D puisque l'écoulement de cavité entraînée reste intense même lorsque la hauteur de liquide est faible. Dans le cas du brassage à 20 rpm, les concentrations expérimentales sont supérieures aux concentrations numériques dès le début de la solidification. Cet écart s'accroît à mesure que la fraction solide augmente. Là encore, il semble que l'écoulement de cavité entraînée permette un meilleur mélange que celui qui peut être obtenu avec le brasseur pour cette vitesse de rotation.

Remarque :

Afin de comparer les profils de concentration expérimentaux aux lois théoriques de *Scheil*, il est nécessaire d'exprimer la concentration en fonction de la fraction solidifiée f_s . La courbure de l'interface doit alors être estimée afin de faire le lien entre la hauteur solidifiée au centre du lingot et la fraction solidifiée totale. Pour estimer cette courbure on considère qu'une iso-résistivité est équivalente à la forme du front à un instant donné de la solidification. Cela revient à supposer que la concentration en aluminium est homogène au niveau du front de solidification. Cette hypothèse est raisonnable dans le cas du brassage mécanique où la convection est intense.

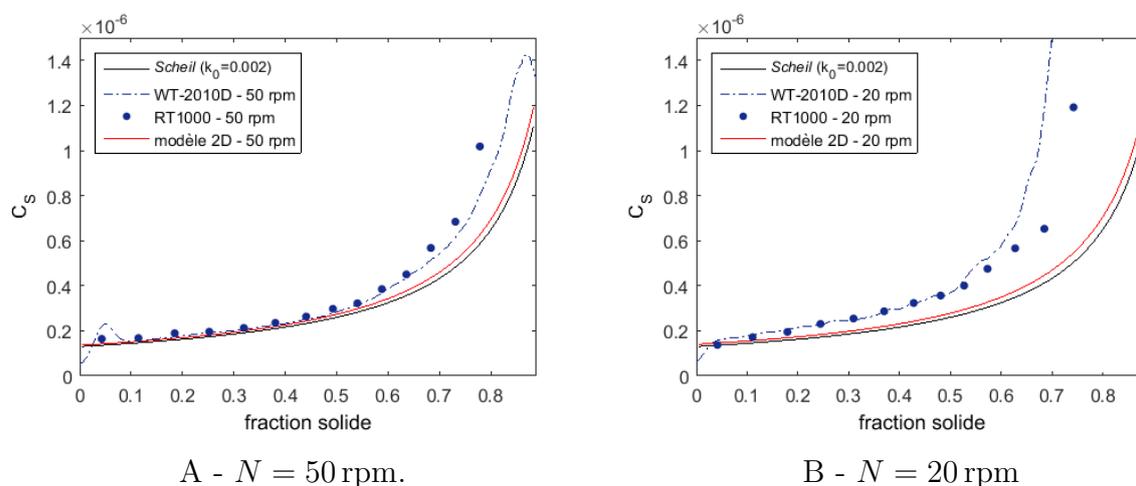


FIGURE C.6 – Profils de concentration (en fraction massique) au centre de la cavité, pour les cas $N = 50$ rpm (A) et $N = 20$ rpm (B).

En conclusion de cette étude nous pouvons dire que le modèle développé permet de retranscrire qualitativement les phénomènes mis en jeu lors d'un procédé de purification par solidification dirigée. Les concentrations prédites par le calcul sont cohérentes avec l'expérience et peuvent fournir une première estimation de l'efficacité du procédé. Il est cependant évident que l'écoulement de cavité entraînée en 2D n'est pas assez représentatif du brassage mécanique pour obtenir des informations quantitatives très précises, en particulier à la fin de la solidification, lorsque la hauteur de liquide devient faible. Enfin, les incertitudes relatives à certaines données expérimentales sont difficiles à évaluer. On pense notamment à l'estimation indirecte des concentrations en aluminium par les mesures de résistivité, ainsi qu'à la correction de la fraction solidifiée après estimation de la courbure de l'interface. Certains paramètres d'entrée du modèle numérique peuvent également être source d'imprécision, tels que le coefficient de diffusion de l'aluminium dans le silicium liquide ou la vitesse de solidification.

Annexe D

Paramètres physico-chimiques

Tableau D.1 – Propriétés physico-chimiques du silicium utilisées dans cette étude. Pour la plupart, ces propriétés varient avec la température. Les valeurs indiquées dans ce tableau correspondent à la température de fusion du silicium T_f .

propriétés	valeurs	références
température de fusion	$T_f = 1687 \text{ K}$	[77]
masse volumique en phase liquide	$\rho = 2550 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$	[77]
viscosité dynamique	$\mu = 7.5 \times 10^{-4} \text{ Pa}\cdot\text{s}$	[77]
conductivité thermique en phase solide	$\lambda_S = 19 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	[43]
conductivité thermique en phase liquide	$\lambda_L = 56.5 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	[96]
capacité thermique massique	$c_p = 1032 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	[48]
émissivité en phase solide	$\varepsilon_{emis}^S = 0.6$	[67]
émissivité en phase liquide	$\varepsilon_{emis}^L = 0.2$	[55, 84]
chaleur latente de changement de phase	$L = 1.79 \times 10^6 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}$	[67]

Tableau D.2 – Coefficients de ségrégation, k_0 , et diffusivités moléculaires dans le silicium liquide, D , du phosphore, de l'aluminium et du fer [37, 56, 69, 86].

	k_0	$D \text{ (m}^2\cdot\text{s}^{-1}\text{)}$
phosphore	3.32×10^{-1}	2.3×10^{-8}
aluminium	2×10^{-3}	6.8×10^{-8}
fer	8×10^{-6}	8.0×10^{-8}

Tableau D.3 – Masse volumique, conductivité thermique, capacité thermique massique et émissivité à 1687 K des matériaux présents dans le four de solidification modélisé dans le chapitre 4 (propriétés issues de données constructeur).

	$\rho \text{ (kg}\cdot\text{m}^{-3}\text{)}$	$\lambda \text{ (W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}\text{)}$	$c_p \text{ (J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}\text{)}$	$\varepsilon_{emis} \text{ (-)}$
graphite dense	1830	45	381	0.85
graphite feutre	160	0.34	910	0.7
silice	2000	1.70	1369	0.9
argon	1.623	6.21×10^{-2}	520	-



FOLIO ADMINISTRATIF

THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON OPEREE AU SEIN DE L'INSA LYON

NOM : CHATELAIN

DATE de SOUTENANCE : 28/10/2016

Prénoms : Marc

TITRE :

Modélisation des phénomènes de transport solutal et étude d'un dispositif de brassage pour la purification du silicium photovoltaïque.

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2016LYSEI105

Ecole doctorale : Mécanique, Energétique, Génie civil et Acoustique (MEGA)

Spécialité : Mécanique des fluides

RESUME :

Cette étude s'intéresse à la modélisation de la ségrégation des impuretés lors des procédés de solidification dirigée du silicium pour l'industrie photovoltaïque. Il s'agit d'un problème multi-physiques et multi-échelles qui nécessite des modèles efficaces pour pouvoir traiter des configurations industrielles en 3D. La première partie de l'étude porte sur le développement de fonctions de paroi solutales dans le but d'estimer la ségrégation sans résoudre numériquement la couche limite solutale. Un modèle analytique est alors utilisé pour estimer le paramètre convecto-diffusif à partir de la contrainte de frottement à l'interface solide/liquide. L'approche proposée consiste à coupler une simulation hydrodynamique de la convection dans la phase liquide et un calcul analytique de la ségrégation. Cette démarche est validée sur un cas de référence en 2D. Le modèle développé fournit une estimation pertinente de la concentration dans un lingot solidifié avec une vitesse imposée, y compris sur un maillage ne résolvant pas la couche limite solutale. La deuxième partie de l'étude concerne l'utilisation d'un système de brassage mécanique dans le but de favoriser la ségrégation des impuretés. Des simulations transitoires de brassage sont réalisées avec le logiciel FLUENT. Les résultats sont comparés à des mesures de champ de vitesse par PIV effectuées sur une maquette en eau, afin de valider le modèle hydrodynamique. La simulation de brassage est ensuite couplée à un calcul de ségrégation en régime quasi-permanent qui permet d'analyser l'influence de l'écoulement sur la couche limite solutale. Dans la dernière partie de l'étude, une simulation de solidification dirigée 3D instationnaire en régime de convection forcée, intégrant la thermique du four, est réalisée. Un modèle empirique de forces volumiques est alors proposé pour décrire l'écoulement lié au brassage dans le silicium liquide. Une première tentative d'estimation des ségrégations par l'approche analytique est ensuite mise en œuvre.

MOTS-CLÉS : ségrégation, solidification dirigée, couche limite solutale, fonction de paroi, brassage mécanique, silicium photovoltaïque.

Laboratoires de recherche :

LMFA, CNRS / Université de Lyon / École Centrale de Lyon / Université Lyon 1 / INSA Lyon,
ECL, 36 Avenue Guy de Collongue, 69134 Ecully Cedex, France.

CEA, LITEN, Département des Technologies du Solaire,
F-73375 Le Bourget du Lac, France.

Directeur de thèse: Valéry Botton, Professeur INSA de Lyon.

Co-encadrant : Mickael Albaric, Ingénieur de recherche CEA.

Président de jury :

Composition du jury : Pr. Yves Delannoy, D.R. Mohammed M'Hamdi, D.R. Dominique Gobin, Dr. Nathalie Mangelinck-Noël, Dr. Séverine Millet (MdC), Dr. Sven Eckert, Pr. Valéry Botton, Dr. Mickael Albaric.