



# **Elaboration semi-continue de silicium multicristallin en creuset froid inductif**

Sophie Plan-Servant

## **► To cite this version:**

Sophie Plan-Servant. Elaboration semi-continue de silicium multicristallin en creuset froid inductif. Electromagnétisme. INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE, 1993. Français. <NNT : >. <tel-01339844>

**HAL Id: tel-01339844**

**<https://hal.science/tel-01339844v1>**

Submitted on 30 Jun 2016

**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.



HAL Authorization

# **THESE**

présentée par

**Sophie PLAN - SERVANT**

pour obtenir le grade de DOCTEUR

**de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE  
de GRENOBLE**

(arrêté ministériel du 30 mars 1992)

Spécialité : Science et Génie des Matériaux

---

**Elaboration semi-continue de silicium multicristallin  
en creuset froid inductif**

---

---

Date de soutenance : 25 mai 1993

Composition du jury :

M. M. CLAVERIE	Président
M. J.C. CHEVRIER M. M. COEVOET	Rapporteurs
M. A. CLAVERIE M. C. REMY M. F. DURAND	Examineurs

Thèse préparée au sein du laboratoire MADYLAM



Je tiens à exprimer ma gratitude à toutes les personnes qui par leur aide et leur soutien ont permis la réalisation de ce travail.





## AVERTISSEMENT

Les recherches qui sont présentées dans ce mémoire ont été menées en collaboration avec PHOTOWATT Int SA. Pour des raisons de confidentialité, une partie du chapitre 3 et le chapitre 6 font l'objet d'une annexe qui ne sera pas publiée.



# SOMMAIRE

## Chapitre 1 : Introduction

## Chapitre 2 : Le silicium pour l'application photovoltaïque

2.1 Le silicium.....	3
2.1.1 Structure cristalline.....	3
2.1.2 Défauts cristallins.....	3
2.1.3 Etat liquide et solidification.....	3
2.2 Cellule solaire.....	7
2.2.1 Fonctionnement d'une cellule solaire multicristalline.....	7
2.2.2 Impuretés.....	9
2.3 Techniques d'élaboration du silicium multicristallin.....	9
2.3.1 Elaboration de rubans.....	9
2.3.2 Moulage dans des creusets réfractaires.....	9
2.3 Technologie du creuset froid inductif.....	13
2.3.1 Principe du creuset froid inductif.....	13
2.3.2 Système électrique équivalent.....	15
2.3.3 Application de l'élaboration en creuset froid inductif au silicium.....	15

## Chapitre 3 : Application de la technologie du creuset froid inductif à l'élaboration de silicium multicristallin

3.1 Problèmes posés par le silicium.....	19
3.2 Etude préalable du tirage de silicium en creuset froid.....	19
3.2.1 Préchauffage du silicium.....	21
3.2.1.1 Préchauffage par sole chaude.....	21
3.2.1.2 Préchauffage par suscepteur rayonnant.....	21
3.2.2 Fusion et alimentation.....	23
3.2.3 Tirage.....	25
3.2.4 Conclusion.....	29
3.3 Elaboration de billettes de silicium multicristallin en creuset froid inductif.....	

*confidentiel*

## Chapitre 4 : Structure du matériau en relation avec les paramètres expérimentaux

4.1 Structure de solidification.....	31
4.1.1 Grains de solidification.....	31
4.1.2 Calcul analytique de l'épaisseur de la zone de peau.....	31
4.1.3 Taille de grain.....	40
4.1.4 Forme du front de solidification.....	40
4.1.5 Mâcles et défauts.....	43
4.1.7 Discussion sur la formation de la structure de grain.....	43
4.2 Aspect extérieur des billettes.....	47
4.2.1 Observation des produits élaborés.....	47

4.2.1 Hypothèses sur la formation des vagues de solidification.....	50
4.3 Fissures.....	54
4.3.1 Classification des fissures observées .....	54
4.3.2 Importance du champ de température sur l'état de la billette .....	56
4.3.3 Notions sur la relation contrainte/dislocation.....	56
4.3.4 De la dislocation à la rupture .....	57
4.4 Caractérisation du matériau creuset froid .....	58
4.4.1 Mesure de longueur de diffusion .....	58
4.4.1.1 Principe .....	58
4.4.1.2 Mesures .....	58
4.4.1.3 Autre mesures de longueur de diffusion .....	61
4.4.1.4 Conclusion.....	61
4.4.2 Premières analyses de concentration en impuretés .....	61
4.5.2.1 Concentration en oxygène .....	62
4.5.2.2 Concentration en carbone .....	62
4.5.2.3 Concentration en cuivre .....	62
4.5.2.4 Conclusion.....	62
4.6 Conclusion .....	62

## Chapitre 5 : Modélisation des phénomènes couplés intervenant dans le procédé

5.1. Modélisation de l'élaboration en creuset froid .....	65
5.1.1. Interaction des phénomènes physiques .....	65
5.1.2. Modélisation du creuset froid à Madylam .....	65
5.1.3. Choix des méthodes numériques .....	66
5.1.4. Organisation du logiciel MALICE (Modélisation des Aspects Liés à l'Induction dans les Creusets froids d'Elaboration) .....	66
5.1.4.1 Modèle électromagnétique .....	67
5.1.4.1.1 Modèle physique.....	67
5.1.4.1.2 Modèle numérique.....	69
5.1.4.2 Modélisation des autres phénomènes par la méthode des éléments finis : Flux-Expert .....	73
5.1.4.3 Couplage.....	75
5.1.4.3.1 Interpolations.....	75
5.1.4.3.2 Algorithmes .....	83
5.1.4.4 Structure et utilisation du logiciel .....	83
5.1.5. Modèles thermiques.....	85
5.1.5.1. Formulation en température.....	87
5.1.5.1.1 Modèle physique.....	87
5.1.5.1.1 Modèle numérique.....	87
5.1.5.2. Formulation en enthalpie.....	91
5.1.5.2.1 Modèle physique.....	91
5.1.5.2.2 Modèle numérique.....	91
5.2. Cas d'application .....	92
5.2.1 Couplage faible : élaboration des verres en creuset froid .....	92
5.2.2. Application à la refusion-solidification d'un alliage inoxydable .....	107
5.2.2.1. Prise en compte des changements d'état .....	112
5.2.2.2 Stabilité numérique .....	112
5.3 Conclusion .....	113

## **Chapitre 6 : Modélisation de l'élaboration de silicium en creuset froid**

*confidentiel*

## **Chapitre 7 : Conclusion et perspectives.....115**

## **Références bibliographiques .....117**

### **Annexes**

Annexe 1 : méthode du décréement logarithmique.....	119
Annexe 2 : détermination de la localisation du projeté orthogonal P d'un point Q sur une surface.....	123
Annexe 3 : expression des matrices jacobiennes des formulations par éléments finis du problème thermique. ....	127



# NOMENCLATURE

## Grandeurs électromagnétiques

t	temps	s
f	fréquence	Hz
$\omega$	pulsation	Rad/s
$\mu_0$	perméabilité magnétique de l'air = $4\pi \cdot 10^{-7}$	H/m
$\mu$	perméabilité magnétique du matériau	H/m
$\mu_r$	perméabilité magnétique relative dumatériau	S/m
$\sigma$	conductivité électrique du matériau	S/m
$\delta$	épaisseur de peau électromagnétique	m
V	potentiel scalaire électrique	V
$\vec{J}$	densité volumique de courant électrique	A/m <sup>2</sup>
$\vec{B}$	induction magnétique	T
$\vec{A}$	potentiel vecteur magnétique	Tm
$\vec{F}$	densité de forces de Laplace	N/m <sup>3</sup>

## Grandeurs thermiques :

$\rho$	masse volumique	kg/m <sup>3</sup>
$C_p$	capacité calorifique	J/kg K
$C_{pce}$	capacité calorifique équivalente de changement d'état	J/kg K
$k_{th}$	conductivité thermique	W/m K
$\sigma_{sb}$	constante de Stefan Boltzman	W/m <sup>2</sup> K <sup>4</sup>
$\epsilon_r$	émissivité	
h	coefficient d'échange	W/m <sup>2</sup> K
$Q_{th}$	densité de puissance	W/m <sup>3</sup>
H	enthalpie globale	J
$h_e$	enthalpie sensible	J
$\Delta H$	variation d'enthalpie au changement de phase	J
$L_f$	chaleur latente de changement d'état	J/kg
T	température	K

## Nombres sans dimension

$R_\omega$	paramètre d'écran	$\omega \mu \sigma L^2$
$R_m$	Nombre de Reynolds magnétique	$\mu \sigma U L$
Re	Nombre de Reynolds	$U L / \nu$
W	Nombre de Weber	$\gamma / \rho g L^2$
Pe	Nombre de Peclet	$U L \rho C_p / k_{th}$





# **Chapitre 1**

## **Introduction**



Ces dernières années, les pays industrialisés connaissent un regain d'intérêt pour les énergies renouvelables. La filière photovoltaïque en bénéficie. Ainsi, différents pays comme le Japon, les USA et l'Allemagne investissent dans la recherche sur le photovoltaïque (revue de presse du CNRS 1993).

Les applications photovoltaïques terrestres sont destinées à électrifier des sites isolés comme des refuges de haute montagne, en fournissant l'énergie nécessaire à rendre autonome un petit parc d'installations domestiques. D'autres applications plus communes permettent l'électrification des pays en voie de développement. Il s'agit alors de réaliser des installations clef en main pour pomper de l'eau et irriguer, d'installer sur batteries solaires des réfrigérateurs ou des télévisions. Ce marché est soumis à l'afflux des capitaux occidentaux qui subventionnent ces installations. Le dernier type d'applications, de moindre puissance, concernent les piles de calculatrice ou les bornes lumineuses de jardin.

Les applications de faibles puissance sont réalisées à partir de composants couches minces de silicium amorphe. Ces cellules de faible rendement se dégradent très vite au cours du temps. Les applications de moyenne puissance sont dominées par le silicium multicristallin. Ce matériau, dont le prix de revient est inférieur à celui du monocristallin, fournit des photopiles de rendement suffisant pour ces applications.

Photowatt, seul fabricant français de photopiles multicristallines tient une place de choix sur le marché mondial. Cette société a notamment orienté son activité de recherche sur l'optimisation des procédés de cristallisation dirigée en creuset chaud. Cette technologie, après de multiples améliorations, est aujourd'hui proche de son optimum. Les limites de ce procédé discontinu apparaissent : les consommables tels que le creuset entrent pour une grande part dans le prix de revient final de la cellule.

C'est dans ce contexte que Photowatt a décidé de diversifier ses techniques d'élaboration en explorant différentes voies, le creuset froid inductif en est l'illustration. Le projet d'élaboration semicontinue de silicium multicristallin en creuset froid inductif dont fait l'objet le présent mémoire s'inscrit dans une action commune entre Photowatt et l'ADEME, Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie. Les retombées espérées d'un tel procédé sont essentiellement la diminution du coût de revient par l'augmentation de la productivité, la réduction des consommables et la moindre contamination du matériau susceptible d'améliorer les rendements de conversion photovoltaïque.

L'objectif de ce travail a consisté à démontrer que le creuset froid peut permettre d'élaborer du silicium photovoltaïque. Il a été réalisé au laboratoire Madylam, laboratoire reconnu pour sa connaissance à la fois théorique, expérimentale et numérique du procédé du creuset froid inductif.

La méthode d'investigation repose sur des essais sur un pilote d'échelle semi industrielle et sur une modélisation numérique du procédé.

Dans le second chapitre, nous rappellerons quelques notions simples sur le matériau et les divers procédés d'élaboration du silicium.

Les essais expérimentaux dont les résultats sont exposés dans les chapitres 3 et 4 sont destinés à étudier l'influence des conditions opératoires sur les billettes élaborées. L'étude

commence par la mise au point technique et électrique du procédé, puis la structure de grains est observée.

Les couplages existant entre les différents paramètres opératoires nous ont conduit à développer un modèle numérique multiméthodes, Malice, modélisant les aspects liés à l'induction en creuset froid d'élaboration. Le chapitre 5 décrit la structure de ce logiciel ainsi que des applications types.

Le chapitre 6 concerne l'application du modèle numérique au cas complexe du silicium et plus particulièrement l'influence des principaux paramètres sur la répartition et la forme des isothermes dans la billette.

## **Chapitre 2**

### **Le silicium pour l'application photovoltaïque**



## 2.1 Le silicium

### 2.1.1 Structure cristalline

Le silicium cristallise dans un système cubique diamant (Fig. 2.01). Son réseau cristallin se présente sous la forme de deux réseaux cubiques à faces centrées décalés de l'un par rapport à l'autre du quart de la diagonale du cube. Les plans les plus denses sont les plans (111). Chaque atome de silicium est entouré de quatre voisins disposés aux sommets d'un tétraèdre régulier. Les quatre doublets d'électrons liant chaque atome avec ses voisins assure la cohésion du cristal. Il s'agit de doublets covalents qui expliquent la faible conductivité électrique du silicium pur. Dans cette structure, seuls les défauts donnent au silicium ses propriétés de semiconducteur. Lorsque la température augmente, l'agitation thermique améliore la conductivité du silicium (Fig. 2.02).

Le silicium utilisé pour l'industrie électronique ou photovoltaïque est dopé par addition d'éléments du groupe III ou du groupe V. Les éléments du groupe III, typiquement le bore, comportent seulement trois électrons sur la couche périphérique. A température ambiante, ces impuretés ionisées créent des porteurs libres : les trous. Le matériau est de type P. Les éléments du groupe V (le phosphore par exemple) ont cinq électrons sur la couche périphérique. Le matériau dopé est de type N, les porteurs libres créés étant des électrons.

### 2.1.2 Défauts cristallins

Les défauts cristallins sont définis comme des perturbations du réseau cristallin régulier. Habituellement, le silicium se présente sous trois formes :

- le silicium monocristallin, matériau parfait du point de vue cristallographique.
- le polycristallin, constitué d'un agglomérat de cristaux nommés grains. Chaque grain présente les caractéristiques d'un monocristal et se distingue de ses voisins par son orientation cristalline. L'interface délimitant les grains est appelée joint de grain.
- l'amorphe qui n'a pas de périodicité cristalline à grande échelle.

Dans le cadre de cette étude, nous portons notre intérêt sur le matériau polycristallin. La communauté photovoltaïque a défini le terme de silicium multicristallin. Il s'agit d'un matériau polycristallin dont chacun des grains a une taille au moins de l'ordre du millimètre, par opposition au polycristal dont les grains ont des tailles voisines du micron.

Les dislocations sont des défauts linéaires qui perturbent la périodicité du réseau. Elles résultent d'un glissement partiel du réseau.

Le joint de grain est une zone de défauts de l'ordre de cinq distances atomiques. Il est constitué de dislocations (Fig. 2.03).

Un plan de macle est un plan de noeuds de coïncidence de deux cristaux [1]. La structure diamant se macle suivant des plans de type (111) ou (112) (Fig. 2.04).

Les atomes d'impureté ségrègent sur certains défauts comme les joints de grain. Ils ont alors une activité électrique de pièges à porteurs libres. Les macles, qui ont un caractère parfait, n'attirent pas les impuretés.

### 2.1.3 Etat liquide et solidification

Il a été montré pour le germanium [2] que le nombre de proches voisins à l'état liquide (8) est plus élevé qu'à l'état solide (4). Il est alors comparable à celui des métaux (10).



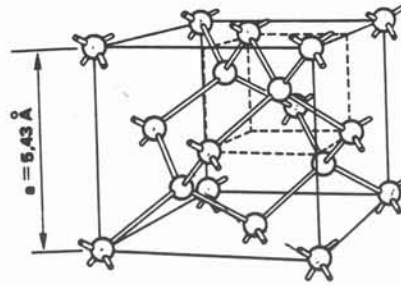


Fig.2.01 : structure cristallographique du silicium

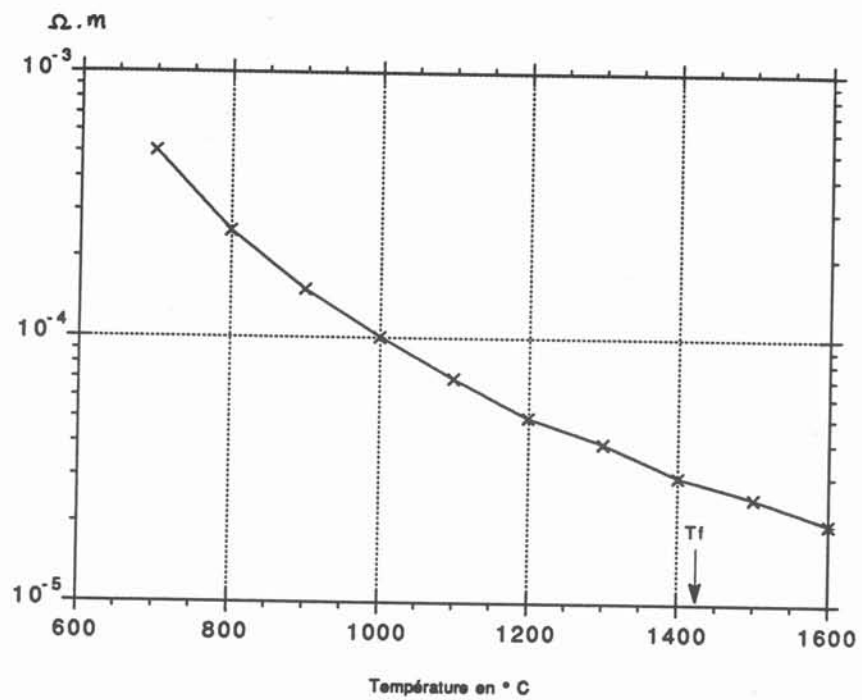


Fig.2.02 : variation de la résistivité électrique avec la température

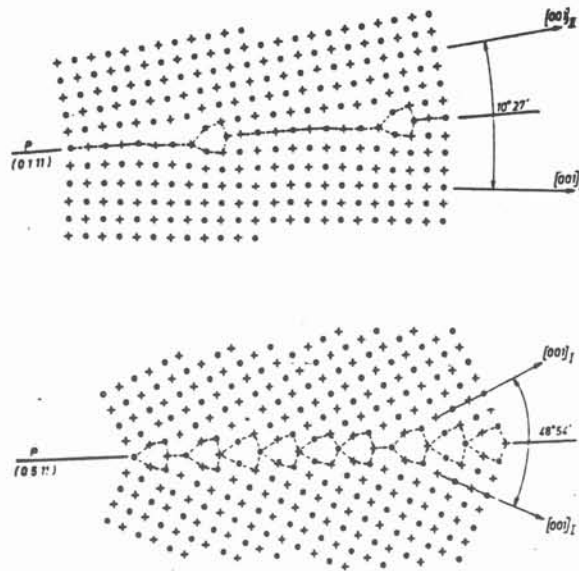


Fig.2.03 : Structure calculée pour un joint de flexion symétrique autour de  $\langle 100 \rangle$  dans l'aluminium. En haut, faible désorientation,. En bas, forte désorientation d'après BISCONDI

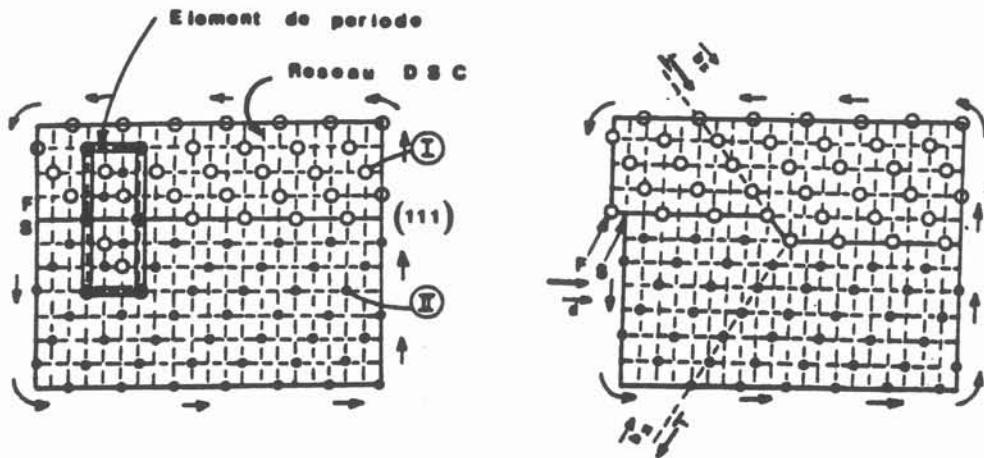


Fig.2.04 : Macles (111) dans un cristal cfc. Le plan de figure est le plan (111), commun aux deux cristaux.

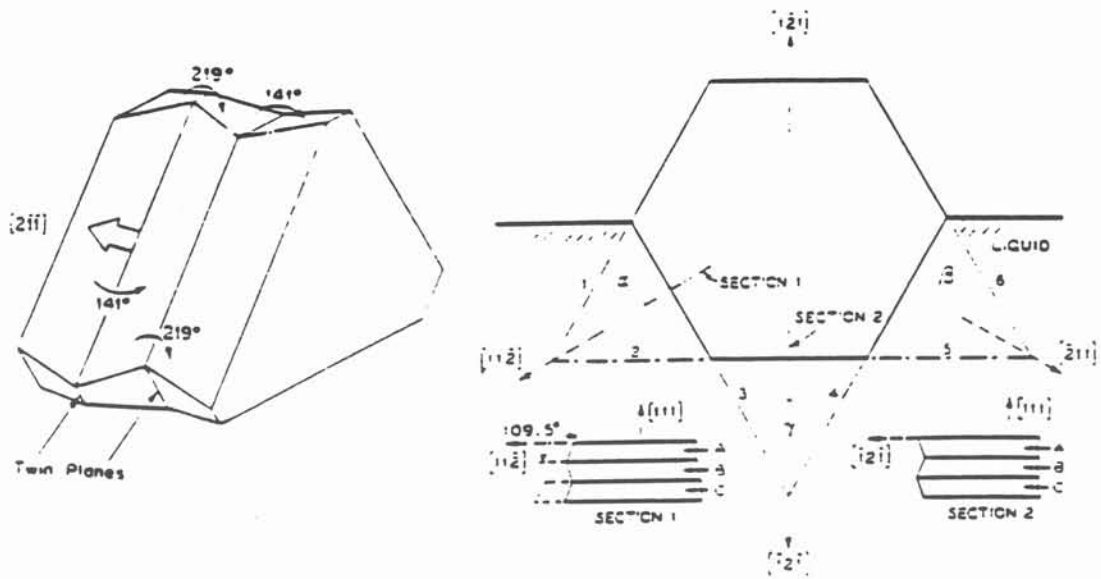


Fig.2.05 : Cristal comprenant deux plans de macle (111).



Fig.2.06 : Structure dendritique typique du silicium d'après Raanes. Les branches sont produites par l'empilement de plaquettes triangulaires

Le silicium a une dilatation au changement de phase ( $\Delta V/V$ ) du même signe et du même ordre de grandeur que le germanium, son comportement est donc identique. Les électrons des couches externes se trouvent à l'état de gaz délocalisé et la conductivité électrique augmente.

Il existe plusieurs mécanismes de croissance du silicium cristallin à partir du bain fondu. Dans les conditions habituelles, l'interface est facétée. La thermodynamique de l'interface (Jackson) relie la rugosité à l'entropie de fusion  $\Delta S$ . Celle du silicium est double de celle des métaux. Dans les mêmes conditions d'élaboration, le silicium aura une interface facétée alors que les métaux ont une interface rugueuse. La fixation des atomes est alors difficile car ils se fixent sur des marches. Aussi la croissance est favorisée par la présence de défauts qui créent des marches. Les dislocations coin créent des marches immédiatement saturées et les dislocations vis des marches insaturables. Les paires de macles créent un sillon (Fig. 2.05) où les atomes s'attachent facilement. La croissance est alors rapide [1]. Une image suggestive de ce type de croissance est donné par Raanes et al [3] qui montrent que la croissance par macle peut créer une arborescence (Fig. 2.06). Cette structure dendritique est constituée d'une succession de plaquettes qui s'étendent latéralement.

## 2.2 Cellule solaire

Une cellule solaire permet grâce à l'effet photovoltaïque de convertir l'énergie du rayonnement solaire en électricité. Les cellules photovoltaïques destinées aux applications terrestres sont fabriquées à partir d'un substrat de silicium multicristallin sur lequel une jonction PN est réalisée par diffusion.

Les paramètres propres à la structure et capables d'influencer le rendement de conversion photovoltaïque sont :

- la structure de croissance : la taille de grain et les joints de grain,
- les défauts cristallins : densité de dislocation, d'impuretés,
- la densité de porteurs libre et leur durée de vie. Cette dernière dépend à la fois

de la densité de porteurs et de la taille des grains. Le dopage étant la source des porteurs libres, son homogénéité le long du matériau est un facteur important.

### 2.2.1 Fonctionnement d'une cellule solaire polycristalline

Le matériau constituant le substrat est dopé avec du bore, La couche superficielle du matériau est fortement dopée avec du phosphore, ce qui produit un matériau de type  $N^+$ . A l'interface entre les deux zones, le gradient de concentration en porteurs libres est à l'origine d'un courant de diffusion [7].

Les atomes ionisés laissés de part et d'autre de l'interface créent une zone déplétée de porteurs et produisent un champ électrique. Les photons du rayonnement incident sont absorbés suivant une loi exponentielle. Si les photons ont une énergie suffisante, ils libèrent une paire électron-trou. Les porteurs libres minoritaires vont se déplacer jusqu'à la jonction (courant de diffusion) où ils seront entraînés par le champ électrique, puis rejoindre les contacts de collection avant de se recombiner. Le libre parcours moyen de ces porteurs (donc leur durée de vie) est un facteur majeur dans la création du courant car ce dernier dépend de l'arrivée des porteurs à la jonction.

Dans une structure multicristalline, l'orientation des joints de grains est déterminante. Le trajet des porteurs libres est limité à l'intérieur du grain par les barrières de potentiel considérables que représentent les joints de grain (Fig. 2.07). La zone déplétée formée

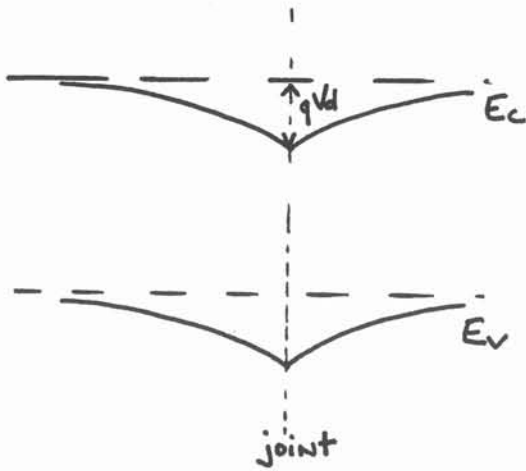


Fig.2.07 : schéma de bande à proximité d'une dislocation.

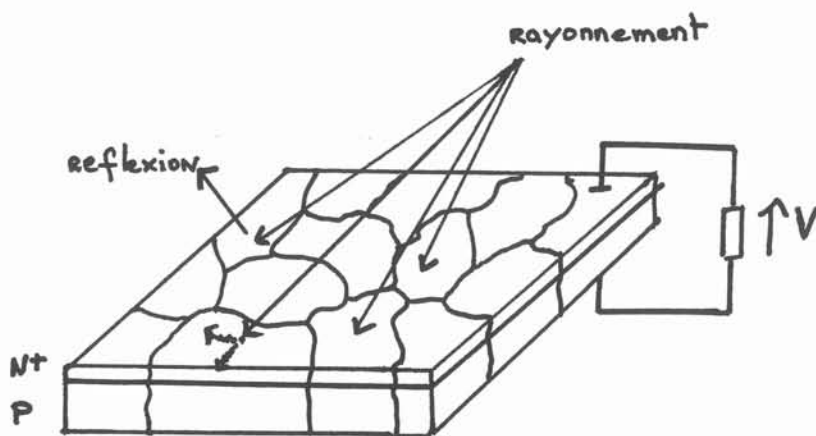


Fig.2.08 : cellule photovoltaïque polycristalline

aux alentours du joint de grain a une largeur qui dépend de la quantité d'impuretés piégées à leur niveau. Cette zone quasiment neutre est un lieu où la recombinaison des porteurs est fortement probable. De ce fait, tout joint de grain parallèle à la jonction bloque les porteurs en cours de chemin (Fig. 2.08). Toute la surface de la cellule comportant à quelque endroit que ce soit dans son épaisseur un joint de grain parallèle à la jonction restera inactive du point de vu électrique. La structure colonnaire orientée perpendiculairement à la plaquette permet de limiter la quantité de joints de grains parallèles à la surface.

Les joints de grains perpendiculaires à la jonction délimitent la petite cellule photovoltaïque que constitue chaque grain, assurant une isolation électrique efficace d'un grain à l'autre. La cellule solaire multicristalline est constituée d'un ensemble de cellules montées en parallèles grâce aux contacts métalliques. Pour pouvoir collecter les porteurs il est nécessaire de déposer les contacts métalliques sur chaque grain sans pour autant obstruer la surface d'éclairement.

### **2.2.2 Impuretés**

Les impuretés sont des éléments indésirables présents dans le réseau. Elles sont souvent localisées aux joint de grains. Les coefficients de ségrégation des impuretés et dopants dans le silicium sont de 0,8 pour le bore, 0,35 pour le phosphore et 1,25 pour l'oxygène.

## **2.3 Techniques d'élaboration du silicium polycristallin**

Les techniques classiques d'élaboration de silicium polycristallin composent deux familles : l'élaboration sous la forme d'un ruban et l'élaboration en lingots. Nous n'évoquerons pas ici la croissance en couches minces.

### **2.3.1 Elaboration de rubans**

Les premières expérimentations en laboratoire de ces techniques d'élaboration datent d'une trentaine d'années [4]. Elles utilisent un creuset chaud contenant le silicium fondu.

La méthode EFG (Edge defined, Film fed Growth) est schématisée Fig. 2.09. Le silicium fondu monte par capillarité entre deux parois parallèles espacées de la largeur du ruban. Un germe monocristallin vient mouiller la partie émergente du silicium et le ruban est tiré vers le haut. Cette technique permet d'obtenir une structure de grains colonnaires assez gros.

D'autres techniques (RAD : Ribbon against Drop, HRG horizontal Ribbon growth...) (Fig. 2.10) consistent à entraîner le silicium liquide sur un support. Le support peut se déplacer horizontalement ou verticalement. Le support est ensuite selon les méthodes dissout, décollé par contrainte thermique ou encore conservé pour servir de grille.

Ces techniques très en vogue il y a quelques années ne permettent pas d'obtenir des couches planes. La structure cristalline est, de plus, souvent très fine.

### **2.3.2 Moulage dans des creusets réfractaires**

Ces techniques sont industrialisées par les fabricants de cellules solaires multicristallines. Il en existe principalement trois.

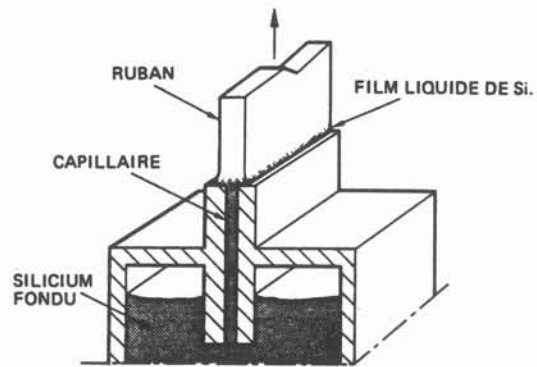


Fig.2.09 : technique EFG : Edge-defined, Film-fed Growth

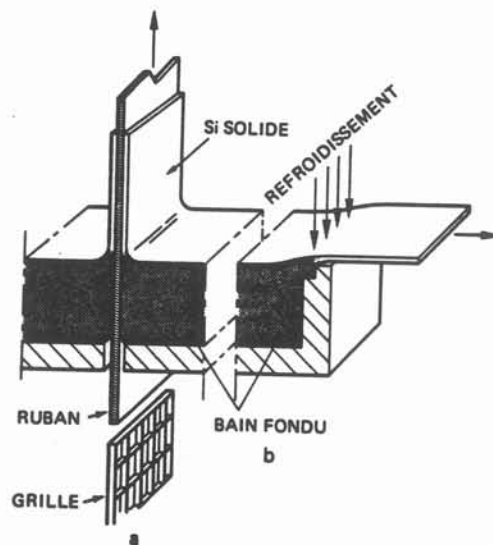


Fig.2.10 : technique de tirage de ruban sur support.

a) par tirage vertical

b) par tirage horizontal

SILSO / 36/ (WACKER)

- (1) hublot d'observation
- (2) sas de rechargement
- (3) inducteur
- (4) creuset en graphite
- (5) creuset en quartz
- (6) bain de silicium
- (7) moule
- (8) isolation thermique
- (10) élément chauffant

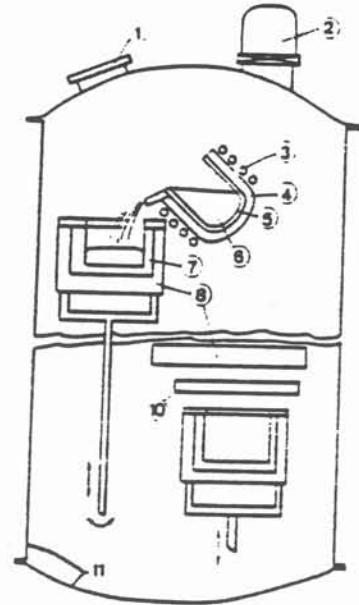


Fig.2.11 : four d'élaboration des lingots de Silso.

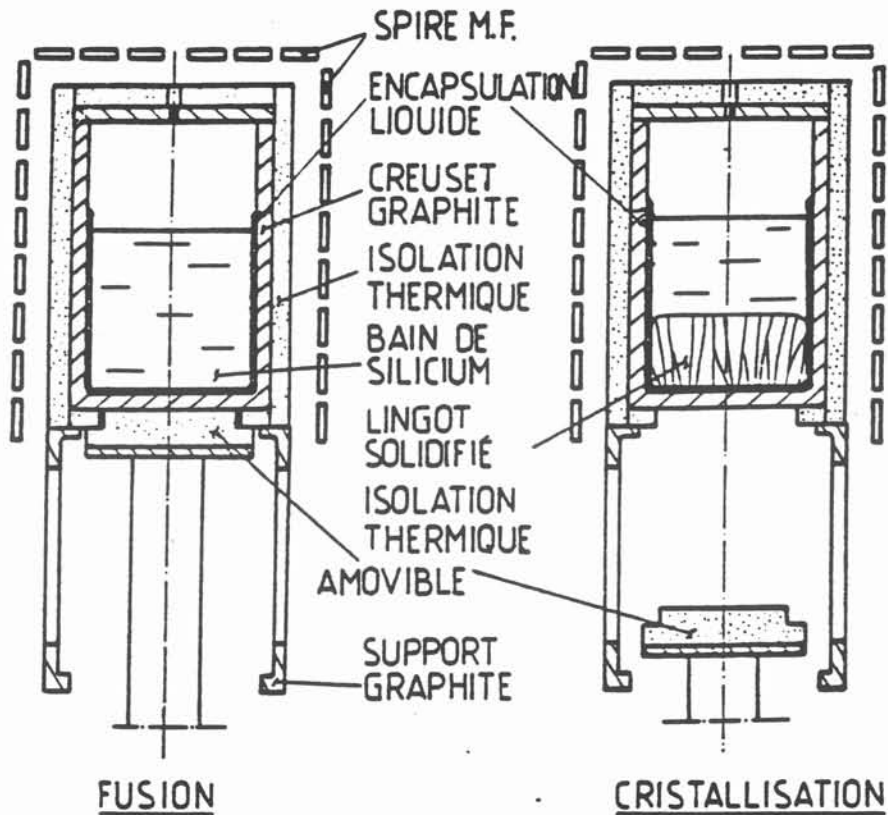


Fig.2.12 : méthode de cristallisation du Polix.



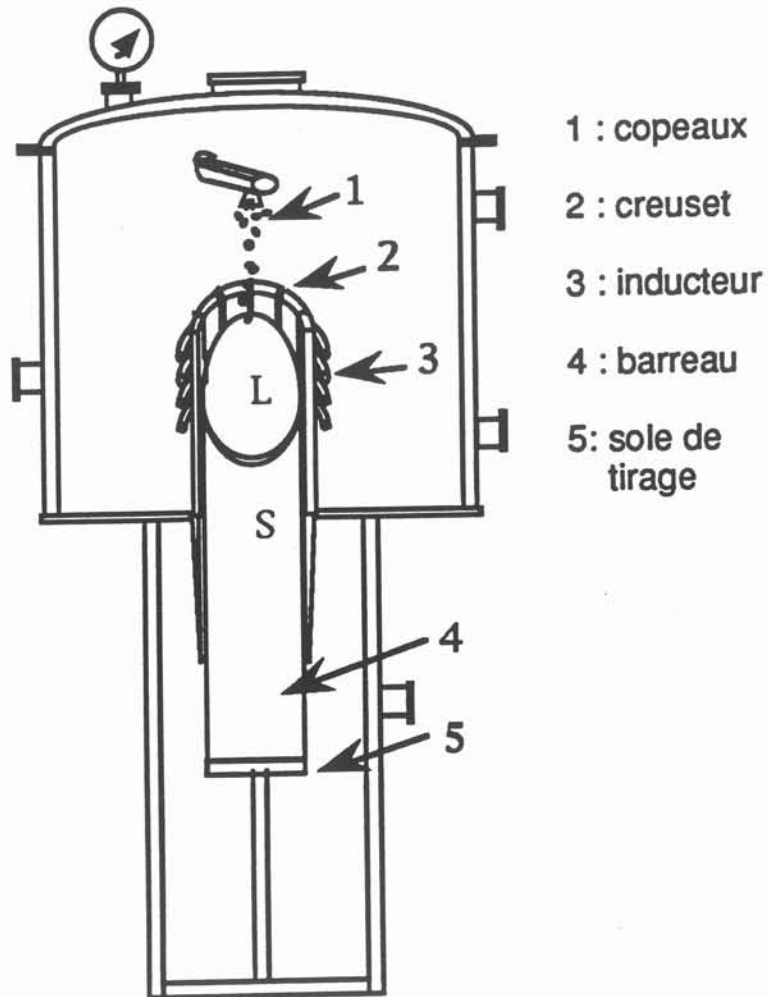


Fig.2.13 : Représentation schématique d'une installation d'élaboration en creuset froid inductif.

Le procédé Silso (Fig.2.11) est industrialisé par la société Wacker. Le silicium est fondu dans un creuset de quartz chauffé par induction. Il est ensuite versé dans un moule de graphite dans lequel il se solidifie. La structure obtenue comporte des grains colonnaires relativement fins et courbés.

Le procédé Crystallox consiste à fondre le silicium dans un creuset de quartz revêtu de nitrure de silicium. La solidification dirigée s'effectue dans le creuset qui s'effrite lors du refroidissement. Le démoulage n'est donc pas nécessaire mais le creuset est perdu. L'avantage principal de cette méthode réside dans la limitation de la pollution de la charge.

Le procédé Polix est utilisé par la société Photowatt (Fig. 2.12). Le silicium est fondu dans un creuset de graphite chauffé par induction. La solidification dirigée a lieu dans le creuset. L'isolation amovible du fond permet en contrôlant la vitesse de cristallisation d'obtenir de gros cristaux colonnaires. Un laitier placé dans le moule avant la fusion permet, outre le démoulage du lingot, de limiter la pollution du lingot par le carbone.

Ces techniques sont maintenant bien maîtrisées. L'optimisation des cycles de production révèlent les limitations de ces procédés.

- Les creusets polluent le matériau, ce qui réduit sa qualité.
- Les creusets sont consommables et entrent pour une grande part dans le prix de revient.
- La productivité est limitée par la durée des cycles d'élaboration. L'extrapolation en taille est difficile à réaliser étant donnée l'importance des conditions de refroidissement du silicium. L'extrapolation se fait sur la section, pas sur la hauteur.

## 2.3 Technologie du creuset froid inductif

### 2.3.1 Principe du creuset froid inductif

Un inducteur, parcouru par un courant alternatif sinusoïdal de pulsation  $\omega$  crée un champ magnétique alternatif dans lequel est placé le creuset (Fig. 2.13).

Dans les procédés classiques de fusion par induction, le creuset réfractaire est chauffé par l'induction et la charge est fondue par conduction. Dans les procédés de fusion en creuset froid, le creuset est sectorisé, chacun des secteurs est refroidi par une circulation interne d'eau. Le matériau utilisé pour sa construction, généralement du cuivre, est bon conducteur de la chaleur et de l'électricité. Sous l'action du champ magnétique, des courants induits se développent dans une zone superficielle du cuivre dont l'épaisseur  $\delta$ , nommée épaisseur de peau électromagnétique, dépend de la conductivité électrique du matériau et de la fréquence du courant :

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu \sigma \omega}} \quad \text{avec } \omega = 2 \pi f$$

L'épaisseur de peau électromagnétique est en première approximation l'épaisseur sur laquelle diffuse le champ magnétique.

La sectorisation permet aux courants induits de se refermer sur la surface interne du creuset : ainsi le champ magnétique n'est pas écarté (Fig. 2.14). Des courants induits se développent alors dans l'épaisseur de peau électromagnétique du matériau

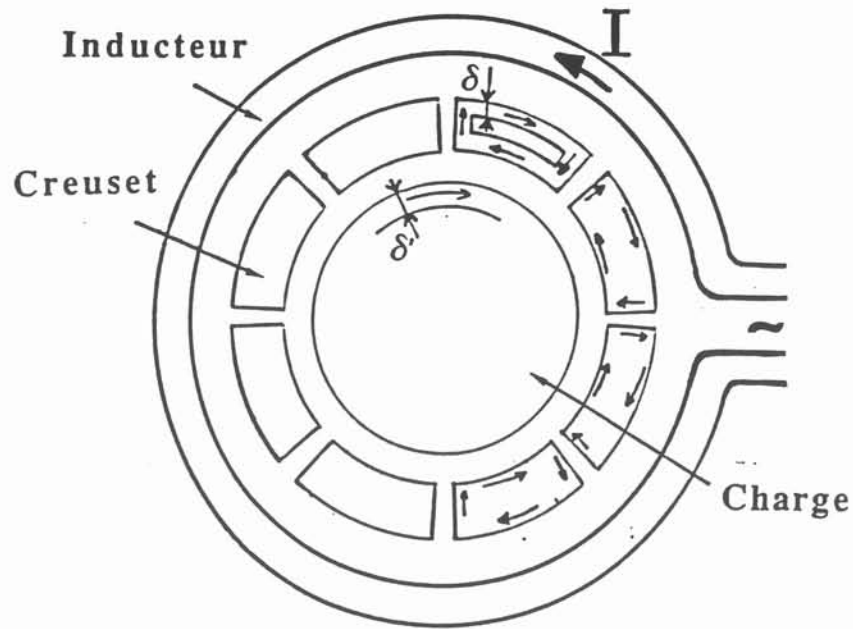


Fig. 2.14 : Circulation des courants induits dans les éléments

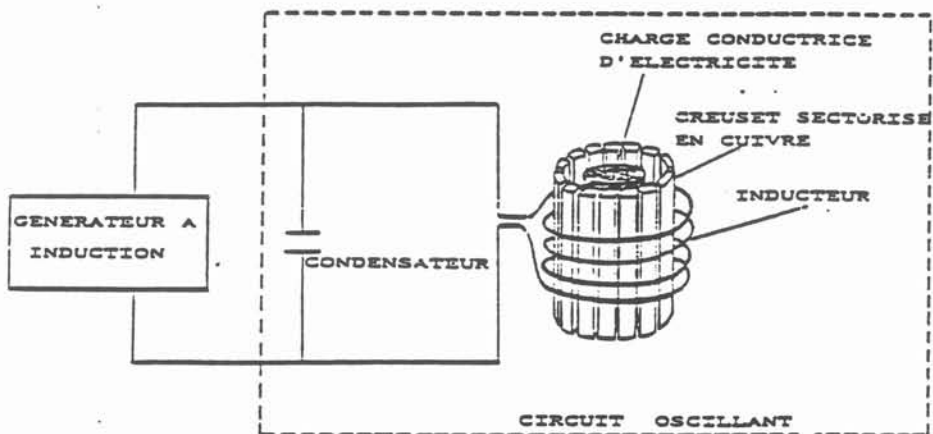


Fig. 2.15 : Schéma électrique de l'installation

Si le matériau est faiblement conducteur (cas des oxydes ou des semi-conducteurs à température ambiante), ou la fréquence inadaptée, alors l'épaisseur de peau électromagnétique sera comparable aux dimensions de la charge ( $\delta > R$ ). Les densités de courants induits dans le matériau n'auront pas d'effet et la charge sera "transparente" au champ magnétique.

Si le matériau est conducteur de l'électricité et la fréquence adaptée à l'effet recherché dans le matériau ( $\delta \ll R$  pour la fusion), alors les densités de courants induits concentrées en périphérie de la charge auront deux effets :

- un effet thermique : chauffage et fusion de la charge par effet Joule,

- un effet mécanique. Ses deux manifestations sont issues de la création par interaction des courants induits et du champ magnétique de forces de Laplace-Lorentz. Ces forces produisent un effet de répulsion et un effet de brassage du bain.

La répulsion électromagnétique confine la charge liquide dans le creuset, déformant la surface libre en dôme. Le confinement réduit le contact charge-creuset. En cas de contact, le matériau se solidifie et n'est pas contaminé par le creuset et l'usure de ce dernier est limitée.

Le brassage électromagnétique accélère les transferts, en particulier l'homogénéisation du bain fondu à la fois en température et en composition.

Le creuset, l'inducteur et la charge sont placés dans une enceinte pour l'élaboration en atmosphère contrôlée. Un apport en matière à refondre est réalisé par un distributeur en haut du creuset pendant qu'en bas un système de tirage extrait le barreau qui se solidifie en sortant de la zone d'action de l'inducteur.

### 2.3.2 Système électrique équivalent

La partie active de l'installation est présentée Fig. 2.15. L'ensemble inducteur, creuset, charge est monté en parallèle sur un coffret de capacités, le tout formant un circuit R,L,C. Le circuit RLC est relié à un générateur apériodique par l'intermédiaire d'un transformateur. Le système fonctionne à la résonance définie par :

$$LC \omega^2 = 1$$

La fréquence de résonance du circuit actif est ajustable :

- en modifiant la valeur de capacité du coffret. On obtient une gamme discrète de fréquences,

- en modifiant la valeur de l'inductance totale du circuit. Elle dépend fortement de la géométrie de l'inducteur et des autres éléments, mais aussi des inductances parasites dues aux amenées de courant et aux capacités.

### 2.3.3 Application de l'élaboration en creuset froid inductif au silicium

Reboux et Blieck (1966) sont parmi les premiers à réaliser la fusion du silicium en creuset froid. Peu d'expériences de croissances cristalline ont suivi ces fusions et aucune publication n'a été retrouvée. Un brevet français a été déposé sur "*l'élaboration de monocristaux et de matériaux conducteurs*".

Fig. 2.16 : Tirage de monocristaux  
d'après Wenckus et Menashi

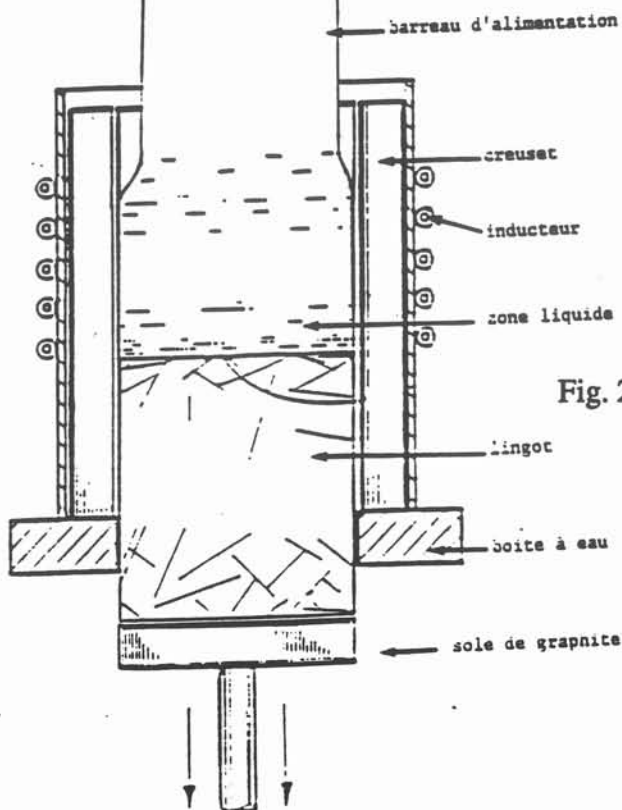
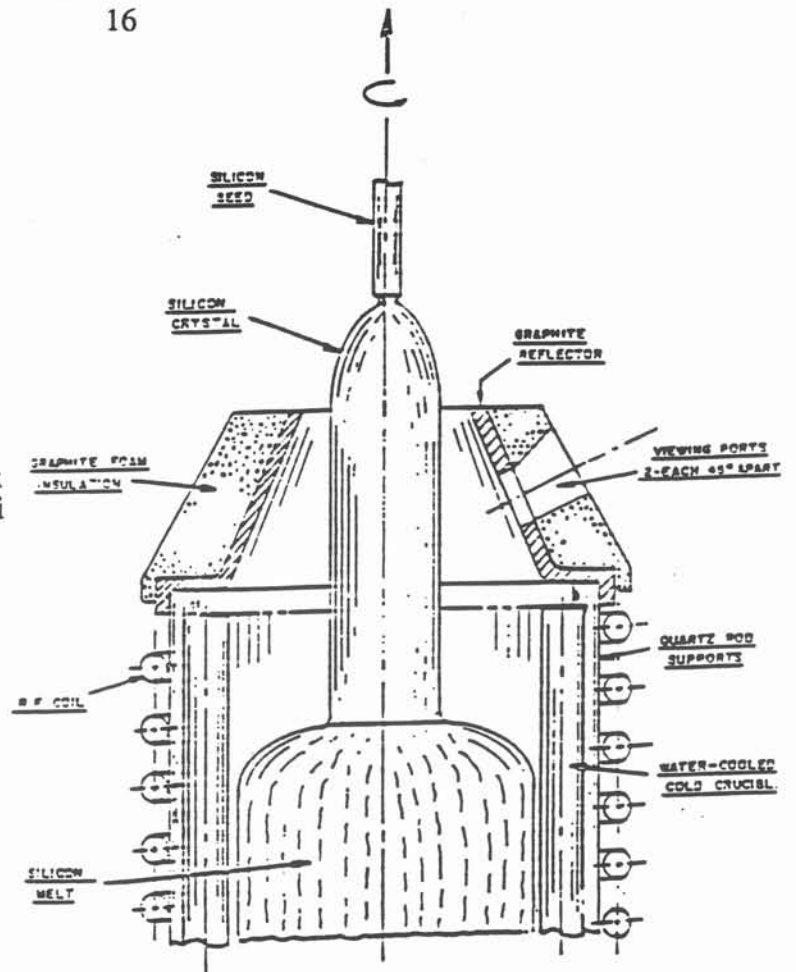


Fig. 2.14 : Tirage de silicium polycristallin en  
creuset froid d'après Ciszek

La Ceres corp. a financé deux programmes (en 1977 et 1980) ayant respectivement comme objectif *"d'étudier l'adaptation de la technologie creuset froid à la fusion et la recristallisation du silicium de haute pureté"* et *"d'établir la faisabilité d'une production en creuset froid de monocristaux de silicium contenant une très faible quantité d'impuretés d'oxygène"*. Ces programmes ont été confiés à messieurs Wenckus et Menashi [9] qui avaient auparavant étudié et développé une installation du type creuset froid.

Le dispositif expérimental qu'ils ont employé (Fig. 2.16) est constitué d'un creuset droit (assemblage de tubes de cuivre) de 73 mm de diamètre. Un barreau de silicium polycristallin introduit par le fond du creuset est préchauffé par rayonnement pour assurer le couplage avec le champ magnétique. Un germe monocristallin préchauffé lui aussi est trempé dans le bain liquide pour initier le tirage Czochralski. Les paramètres de fonctionnement sont :

$$f = 250 \text{ kHz} ; P = 50-100 \text{ kW} ; U_{\text{tirage}} = 2,5 \text{ cm/h} ; \phi_{\text{max}} = 40 \text{ mm}.$$

Les analyses de teneur en impuretés ont prouvé que les barreaux tirés en creuset droit contiennent moins (ou au pire autant) d'impuretés que les barreaux d'alimentation. Seule la concentration en carbone est accrue car le système de préchauffage du germe (cône de graphite chaud) reste en position au dessus du bain pendant toute l'opération de tirage.

Deux brevets ont été déposés en relation avec ces projets. Le premier concerne le système creuset froid utilisé et le second le procédé et l'appareillage de production des semiconducteurs.

Ciszek [10], après s'être notamment intéressé à la solidification du silicium en creuset de graphite, a étudié l'élaboration du silicium en creuset froid. Sa recherche, financée par le Solar Energy Research Institute, s'est appuyée sur les travaux de Wenckus et Menashi. Ciszek a essayé d'explorer toutes les possibilités offertes par cette technique :

- la solidification directionnelle,
- le tirage Czochralski,
- le tirage de feuilles,
- le tirage en continu de lingots.

Les trois premières techniques utilisent un creuset de lévitation. Le creuset droit de tirage comporte 16 secteurs et a une section carrée de 26mm x 26mm (Fig. 2.17). L'inducteur est constitué de cinq spires disposées sur deux couches. Le préchauffage est assuré par une sole de graphite sur laquelle reposent les 12 g de silicium constituant la charge initiale. Les paramètres de préchauffage sont :  $f = 464 \text{ kHz}$  et  $P = 6,8 \text{ kW}$ . Le couplage intervient au bout de 7 mn.

En fonctionnement l'alimentation est effectuée par un barreau introduit par la partie supérieure du creuset et qui est mis en contact avec le dôme de liquide. Les paramètres de fonctionnement sont alors :

$$f = 464 \text{ kHz} ; P = 15 \text{ kW} ; U_{\text{alimentation}} = 240 \text{ g/h} ; U_{\text{tirage}} = 2,5 \text{ mm/mn}.$$

Des lingots de section pratiquement carrée de 25mm x 25mm et de 170mm de longueur sont fabriqués.

Dans le brevet qu'il a déposé en 1985, Ciszek explique que la grosseur des grains du matériau est rendue maximale par le confinement électromagnétique. L'absence de contact empêche la nucléation à partir des parois latérales, celle-ci n'a alors lieu qu'à partir de la sole. Apparemment, il ne s'est pas préoccupé de l'orientation des grains et il utilise le liquide de refroidissement circulant dans le creuset comme système

d'évacuation de la chaleur rayonnée par le lingot.

Aucune publication sur des résultats d'analyse chimique, des précisions sur la structure et la qualité du matériau n'a été trouvée. Seul un article de 1986 consacré à l'évolution de la concentration d'éléments dopants dans le silicium aborde ces sujets. Un modèle a permis de déterminer l'évolution de la concentration de divers éléments au cours de la solidification pour plusieurs techniques. Ce modèle semble bien adapté à la fusion de zone et Ciszek l'a étendu à la croissance Czochralski en creuset froid dans le cas où le bain n'est pas alimenté. Il considère qu'il s'agit également d'une bonne approximation pour la solidification dirigée en creuset froid.

Depuis 1988, OSAKA TITANIUM (K. Kaneko et al.) [11] a entrepris d'adapter la technologie creuset froid couramment utilisée pour le titane à l'élaboration de silicium photovoltaïque. Leurs travaux, encore au stade de la recherche, leur ont permis de tirer des lingots de section carrée de  $220 \times 220 \text{ mm}^2$ .

Un four est placé à la sortie du creuset pour que le refroidissement du lingot puisse être contrôlé. Ce contrôle thermique permet d'éviter que le matériau ne se fissure. Les lingots obtenus ont un très mauvais état de surface (coulures) et un écroûtage d'un demi centimètre est nécessaire. La structure du matériau est colonnaire : la solidification commence à partir des parois et les grains sont fins (de 1 à 3 mm de diamètre au bord et 3 à 5 mm au centre). Les cellules solaires fabriquées à partir de ce matériau semblent être de qualité voisine de celles qui sont issues de lingots moulés. Les rendements atteignent 13 % et la longueur de diffusion en dehors des bords de la cellule est de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$ .

## **Chapitre 3**

### **Application de la technologie du creuset froid inductif à l'élaboration de silicium multicristallin**





### 3.1 Problèmes posés par le silicium

Le creuset froid inductif est un procédé d'induction directe dans le matériau. Le choix de la fréquence d'élaboration dépend de la résistivité électrique de la charge (de quelques dizaines de kilohertz pour les métaux, à quelques centaines de kilohertz pour les verres ou les oxydes avec des dimensions de creuset adaptées).

Le silicium est un semiconducteur. Isolant à température ambiante, il développe de très faibles densités de courants induits. Lorsque la température s'élève, sa résistivité diminue.

A la température de fusion, la résistivité du silicium sera mille fois inférieure à celle du solide froid et d'un ordre de grandeur comparable à celle des métaux. Il développe alors des courants induits d'intensité suffisante à l'entretien de la fusion.

La forte évolution de la conductivité électrique rend délicat le choix de la fréquence d'élaboration. Nous choisissons d'utiliser un moyen de chauffage auxiliaire jusqu'à une température où l'induction prend le relais, un peu avant la fusion du matériau. La fréquence utilisée sera celle qui est la mieux adaptée à la charge liquide.

Le silicium se dilate lors de la solidification. L'augmentation en volume lors du changement d'état est de l'ordre de 10%. Le solide se contracte ensuite en refroidissant.

L'un des principaux problèmes étudiés en creuset chaud consiste à adapter les coefficients de dilatation du creuset et du silicium afin de ne pas contraindre la charge.

Le refroidissement interne des secteurs du creuset froid supprime toute dilatation puisque la température maximale des secteurs à proximité de la charge liquide est de l'ordre de 200 à 300°C. Le creuset froid adapté au silicium doit tenir compte de sa dilatation lors du changement d'état, non plus par la nature du matériau de construction, mais par sa géométrie.

Le silicium est très sensible aux contraintes thermiques. Il se fissure facilement sous l'action d'un champ de température inhomogène.

Le principe même du procédé creuset froid inductif implique la juxtaposition du matériau venant de se solidifier et du creuset refroidi : le champ de température est loin d'être homogène.

L'amorce du matériau à fondre en creuset froid est constituée d'une billette du même matériau, usinée à la section du creuset et vissée sur le système mécanique de tirage. Le silicium est fragile et s'usine très difficilement.

La solidification en creuset froid est basée sur une nucléation de grains fins. La croissance a lieu à partir des parois du creuset froid perpendiculairement aux lignes de flux de chaleur. Les fronts de solidification en creuset froid sont très creux, à concavité orientée vers le liquide. La structure de grain habituellement recherchée est équiaxe à grains fins dans le but d'obtenir des matériaux à propriétés isotropes.

Le silicium photovoltaïque a une structure colonnaire à gros grains. Il est nécessaire de minimiser le nombre de joints de grain perpendiculaires à l'axe de tirage pour qu'ensuite, dans la cellule, les porteurs ne s'arrêtent pas à ces obstacles.

### 3.2 Etude préalable du tirage de silicium en creuset froid

L'étude de faisabilité consiste à montrer que, malgré les problèmes posés par le matériau, l'élaboration de silicium photovoltaïque en creuset froid inductif est possible. Cette étude a été réalisée sur une installation traditionnelle (Fig.3.01) en creuset cylindrique à section circulaire de diamètre 100 mm comportant 16 secteurs. Chaque phase de l'élaboration a été étudiée spécifiquement.

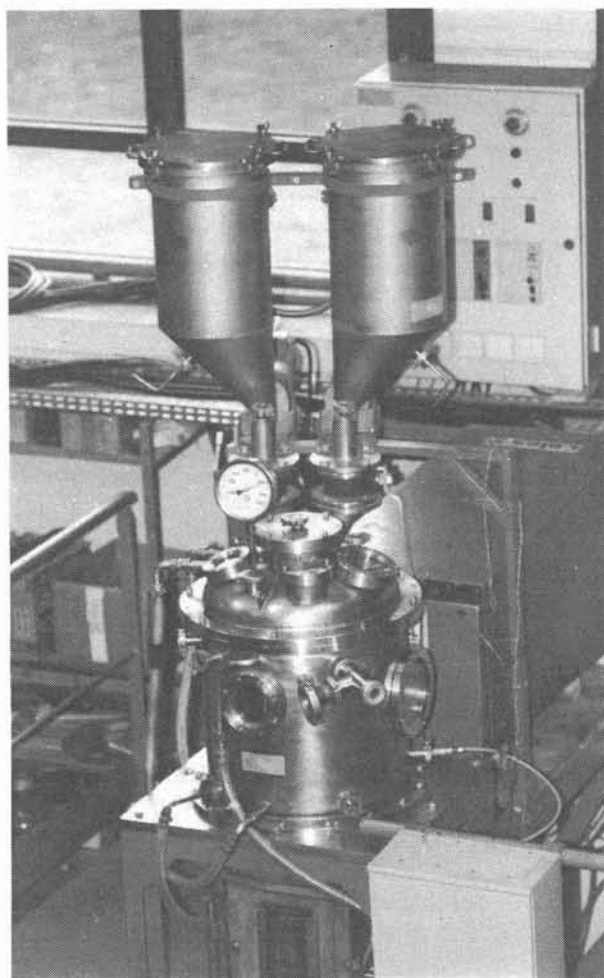


Fig. 3.01 : Photo de l'installation d'élaboration de billettes en creuset froid inductif

### 3.2.1 Préchauffage du silicium

Dans une gamme de moyenne fréquence (5 à 30 kHz), la variation de l'épaisseur de peau en fonction de la température montre que la puissance transmise à la charge ne devient efficace que vers 800 à 1000°C. Pratiquement, jusqu'à ces températures et pour un couple fréquence-diamètre du creuset de notre gamme, le matériau est transparent au champ magnétique. Il ne peut pas chauffer par induction. A partir de 800 à 1000°C, l'induction devient "active". Deux types de préchauffage ont été étudiés : la sole chaude et le suscepteur rayonnant.

Les avantages de ces deux moyens de préchauffage par rapport à d'autres (micro-ondes, lampes diverses, plasmas, faisceaux d'électrons...) sont doubles :

- ils utilisent l'inducteur prévu pour la fusion comme source de puissance. De ce fait ils sont simples à mettre en oeuvre et leur prix de revient est faible comparé à des systèmes demandant l'apport de sources différentes (micro-ondes).
- l'utilisation de l'induction offre la souplesse d'utilisation nécessaire au contrôle de la température de préchauffage.

Pourtant l'inconvénient majeur de ces deux solutions reste la pollution du silicium liquide soit par contact direct dans le cas de la sole chaude, soit par l'atmosphère dans le cas du suscepteur rayonnant. De ce fait le matériau choisi doit être, en plus de ses bonnes propriétés de conduction et de rayonnement, composé avec des éléments relativement bien tolérés dans les photopiles. Nous avons choisi le carbone dont les concentrations maximales acceptables sont de l'ordre de  $10^{16}$  atomes/cm<sup>3</sup>.

#### 3.2.1.1 Préchauffage par sole chaude

La sole chaude de graphite est placée dans le creuset au niveau de l'inducteur (figure 3.02). La sole chauffe par induction, elle transmet la chaleur par conduction-rayonnement aux morceaux de silicium posés dessus et qui fondent aisément. Le couplage du silicium est mis en évidence par la diminution du courant anode de près de 10% visualisable sur l'affichage du générateur. En effet, la résistivité du graphite n'évolue pratiquement pas entre l'ambiante et 3000°C. La sole chaude ne peut pas être responsable d'une variation d'impédance. Lorsque le silicium commence à coupler, l'impédance équivalente au circuit oscillant augmente et, à tension constante, le courant diminue. La variation de la fréquence peut également mettre en évidence le couplage du silicium mais cet effet est moins net.

Ce moyen de préchauffage est confortable du point de vue de l'utilisation. Néanmoins, la réaction qui se produit à l'interface graphite - silicium pose plusieurs problèmes :

- Elle produit du carbure de silicium qui ne permet pas de séparer le lingot de la sole au niveau de l'interface.
- Elle pollue le bain. Le bain liquide est alors riche en carbone. Lors du cycle de solidification, un apport en matériau propre est effectué pendant que la billette est tirée. Le bain s'appauvrit donc progressivement en carbone et la concentration diminue avec la cote. Une partie importante de la billette sera inutilisable.
- La sole est plus chaude que le matériau. Le refroidissement dû aux parois du creuset n'en est que plus important et les contraintes thermiques qui en résultent néfastes.

#### 3.2.1.2 Préchauffage par suscepteur rayonnant

Un suscepteur de graphite amovible a été placé au dessus du creuset. Le creuset contient une amorce de silicium. Les faces supérieure et latérales du suscepteur sont calorifugées afin de diminuer les pertes dans l'enceinte (Fig.3.03). La surface émissive est située à quelques centimètres de l'amorce.

Le suscepteur de graphite, chauffé par effet Joule, chauffe à son tour le silicium par rayonnement. Le suscepteur supprime la visibilité, aussi le couplage du silicium est mis en évidence par la variation du courant anode. Lorsqu'un volume de liquide suffisant est formé la puissance dégagée dans le silicium permet d'auto-entretenir la fusion. Le suscepteur est alors escamoté et la fusion se poursuit sans le chauffage annexe.

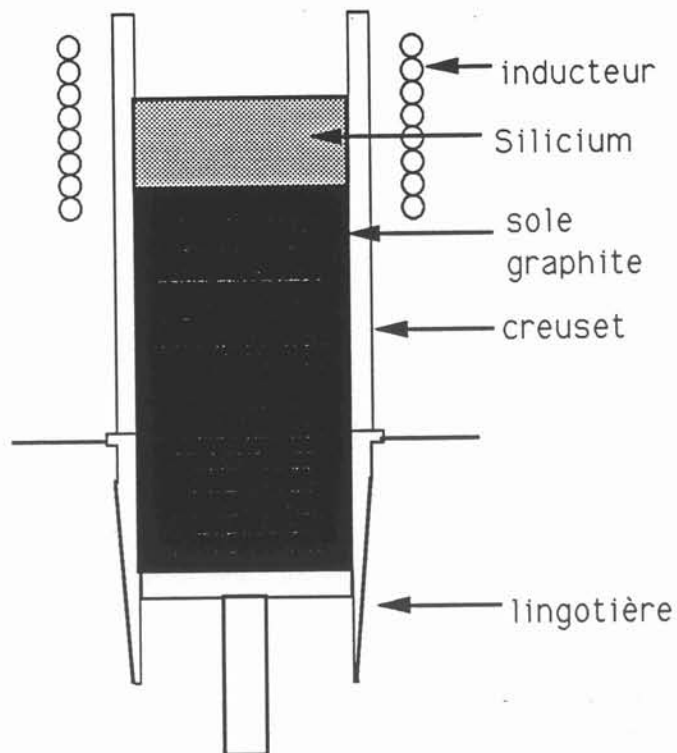


Fig. 3.02 : Système de préchauffage par sole chaude

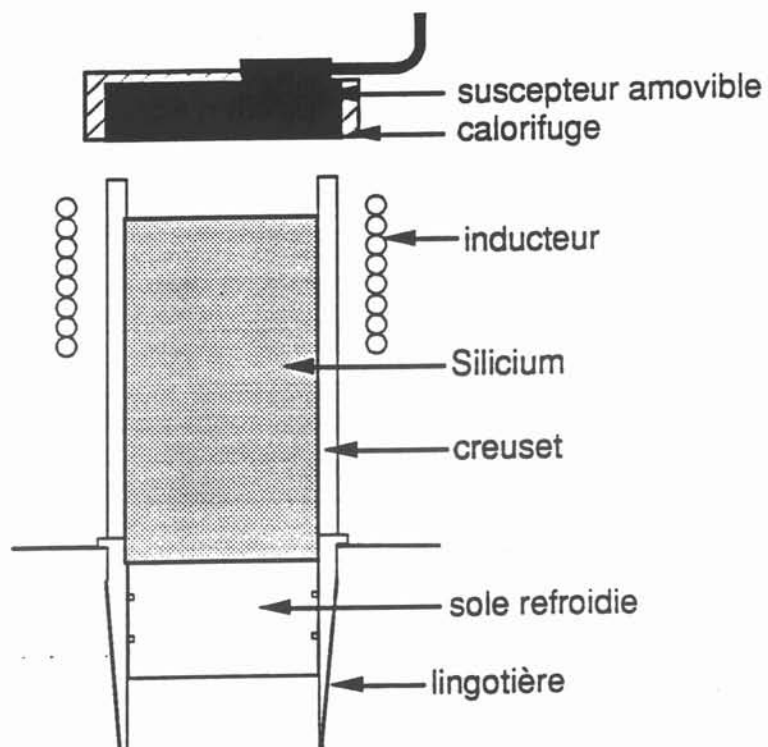


Fig. 3.03 : Préchauffage par susceptor rayonnant amovible

Avec ce moyen de préchauffage, le circuit actif passe par trois états d'impédance successifs, chacun de ces états étant caractéristique des éléments :

- suscepteur + charge isolante transparente,
- suscepteur + charge conductrice,
- charge conductrice.

A chaque fois que l'on passe d'un état à l'autre, le courant anode diminue.

Si l'on s'appuie sur la loi d'Ohm :

$$U=ZI$$

La tension  $U$  est fixée par le manipulateur. Le courant est inversement proportionnel à l'impédance équivalente au circuit oscillant vu du primaire (générateur). Cette impédance est définie par :

$$Z = Z'k_{tam}^2 \quad \text{et} \quad Z' = L/RC$$

où :

$L$  est l'inductance totale du circuit oscillant,

$R$  est la résistance totale du circuit oscillant,

$C$  est la valeur de capacité du coffret,

$k_{tam}$  est le rapport du transformateur d'adaptation.

Lorsque le silicium commence à coupler,  $R$  diminue et  $L$  augmente, l'impédance va donc augmenter et le courant anode diminuer. Lorsque le suscepteur est retiré, le rapport  $L/R$  augmente encore sous la forte modification de la résistance équivalente. Les mesures de décrement logarithmique (annexe 1) effectués sur l'installation à froid avec et sans le suscepteur mettent en évidence cette variation :

pour $C = 20 \mu F$	avec le suscepteur :	sans le suscepteur :
	$f = 12,7 \text{ kHz}$	$f = 12,6 \text{ kHz}$
	$L = 7,63 \mu H$	$L = 7,85 \mu H$
	$R = 41,12 \text{ m}\Omega$	$R = 36,07 \text{ m}\Omega$
	$Z = 9,27 \Omega$	$Z = 10,88 \Omega$

Dans l'enceinte que nous utilisons, la place disponible ne permet pas de soustraire totalement le suscepteur devenu inutile à l'influence du champ magnétique. Sa présence modifie la répartition du champ magnétique et le dôme est désaxé dans le creuset.

### 3.2.2 Fusion et alimentation

La forme caractéristique de la surface libre air/liquide résulte de l'équilibre des pressions qui s'exercent sur le liquide. Pour des matériaux de faible densité comme l'aluminium, la forme du dôme est fortement influencée par la fréquence [14].

A faible fréquence ( $f < 10 \text{ kHz}$  pour un creuset de diamètre 10 cm), le dôme comporte des pétales bien découpés alors qu'à plus haute fréquence, le dôme s'arrondit et retrouve sa forme hémisphérique. Le silicium, matériau de densité et de tension superficielle comparable à l'aluminium (Tableau 3.1) réagit lui aussi à la fréquence. Aux plus faibles fréquences, le dôme est constitué de quatre ou six branches. Il est très instable. Lorsque le volume du liquide augmente, le dôme reprend une forme traditionnelle.

propriété	Al	Si	Ti
température de fusion (°C)	660	1418	1672
densité (kg/m <sup>3</sup> ) T <sub>amb</sub> T <sub>f</sub> >T <sub>f</sub>	2700 2542 2390	2330 2286 2525	4507  4110
conductibilité thermique (J/kg°K) T <sub>amb</sub> T <sub>f</sub>	238	138 32	219
chaleur spécifique (J/kg)	917	729	532
chaleur latente (J/kg)	401900	140200	365000
tension superficielle (N/m)	0,865	0,735	1,65
résistivité électrique (μΩ cm) T <sub>amb</sub> T <sub>f</sub>	2,67 25	10 <sup>4</sup> 75	39 400
viscosité cinématique (m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ) T <sub>f</sub>	1,9 10 <sup>-6</sup>	0,38 10 <sup>-6</sup>	

Tableau 3.1 : Propriétés physiques de l'aluminium, du silicium et du titane d'après les techniques de l'ingénieur et le Smithells



La matière à fondre se présente sous une forme morcelée de plusieurs granulométries :

- charge de gros morceaux de l'ordre du centimètre,
- charge de fins morceaux allongés de l'ordre de quelques millimètres,
- déchets de plaquette de 200  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et de surface très variable.

Le silicium solide ne fond pas par effet Joule, la fusion de la matière d'apport s'effectue grâce à l'apport de chaleur du bain. La fusion est d'autant plus rapide que la surface d'échange morceaux/liquide est grande.

Les copeaux sont contenus dans deux grands réservoirs d'une capacité de 24 l placés sous atmosphère contrôlée (Fig. 3.04). Une vis sans fin apporte le matériau jusqu'à une goulotte vibrante venant distribuer les morceaux dans le creuset. La présence de deux réservoirs pouvant être isolés de l'enceinte par une vanne étanche permet de recharger en cours d'élaboration.

Les morceaux de silicium sont plus légers que le liquide. Ils tombent en surface du dôme (Fig. 3.05). Les plus gros morceaux glissent vers le bord du dôme où ils fondent. Les plus petits fondent à l'endroit où le distributeur les a projeté. Dans des conditions normales d'élaboration, aucun morceau infondu n'est retrouvé en surface des billettes.

La charge de grosse granulométrie est mieux adaptée aux fonctionnements à forts débits d'alimentation (grandes vitesses ou sections importantes) avec des puissances injectées importantes. A faible puissance, cette charge forme rapidement une croûte en surface. Une alimentation en régime impulsif est nécessaire pour permettre à cette croûte de se résorber au fur et à mesure.

La charge de faible granulométrie est très bien adaptée à l'élaboration en creuset froid. Un débit régulier est facilement ajusté pour éviter l'accumulation des morceaux en surface du dôme. La charge est suffisamment divisée pour permettre une alimentation continue aux plus faibles vitesses de tirage.

Le déchet de plaquettes est une charge intéressante du point de vue du recyclage des produits brisés dans la chaîne de production. Mais cette charge est constituée de morceaux de tailles inégales allant de la brisure très fine au quart de plaquette. Il apparaît essentiel d'uniformiser la distribution en taille en brisant les plus gros morceaux qui peuvent obstruer le système de distribution. L'avantage de ce type de charge réside dans la surface d'échange qu'elle offre et sa rapidité d'incorporation au liquide. De plus elle est déjà correctement dopée. Par contre elle permet difficilement de régler des débits constants aux faibles vitesses de tirage ou avec des creusets de petite section. C'est la charge que nous avons le plus couramment employée.

### 3.2.3 Tirage

En tirage en creuset froid, les amorces sont constituées d'un pied du matériau à élaborer vissé sur le système de tirage. Le silicium ne pouvant être taraudé, nous avons envisagé d'utiliser divers usinages pour accrocher un pied de silicium monocristallin au système de tirage.

Le premier dispositif est réalisé sur le principe d'une amorce clavetée sur la sole de tirage (Fig. 3.06). Cette amorce n'a pas permis de tirer de billettes. En effet le jeu entre le creuset et l'amorce laisse le silicium liquide s'écouler partiellement. Les coulûres se dilatent en refroidissant et bloquent la translation du pied. L'effort de tirage nécessaire au déblocage du pied est alors supérieur à la limite de rupture de l'amorce qui se clive à partir des logements des clavettes. En réduisant le jeu entre l'amorce et le creuset par un feutre de graphite, le tirage peut être commencé, mais l'amorce se fracture en cours d'essai.

Nous avons envisagé de coller l'amorce de silicium sur une rondelle de graphite (Fig. 3.07). La rondelle de graphite est accrochée dans la sole de tirage qui oppose une barrière au champ magnétique. Ainsi le graphite chauffe peu par effet Joule. Les colles utilisées étaient prévues pour un emploi à haute température. Des thermocouples mesuraient l'évolution de la température au niveau du joint de colle (Fig 3.08).

Aucune des colles utilisées n'a permis de tirer une billette.

- Les colles ayant les plus faibles températures d'utilisation se dégradent rapidement.



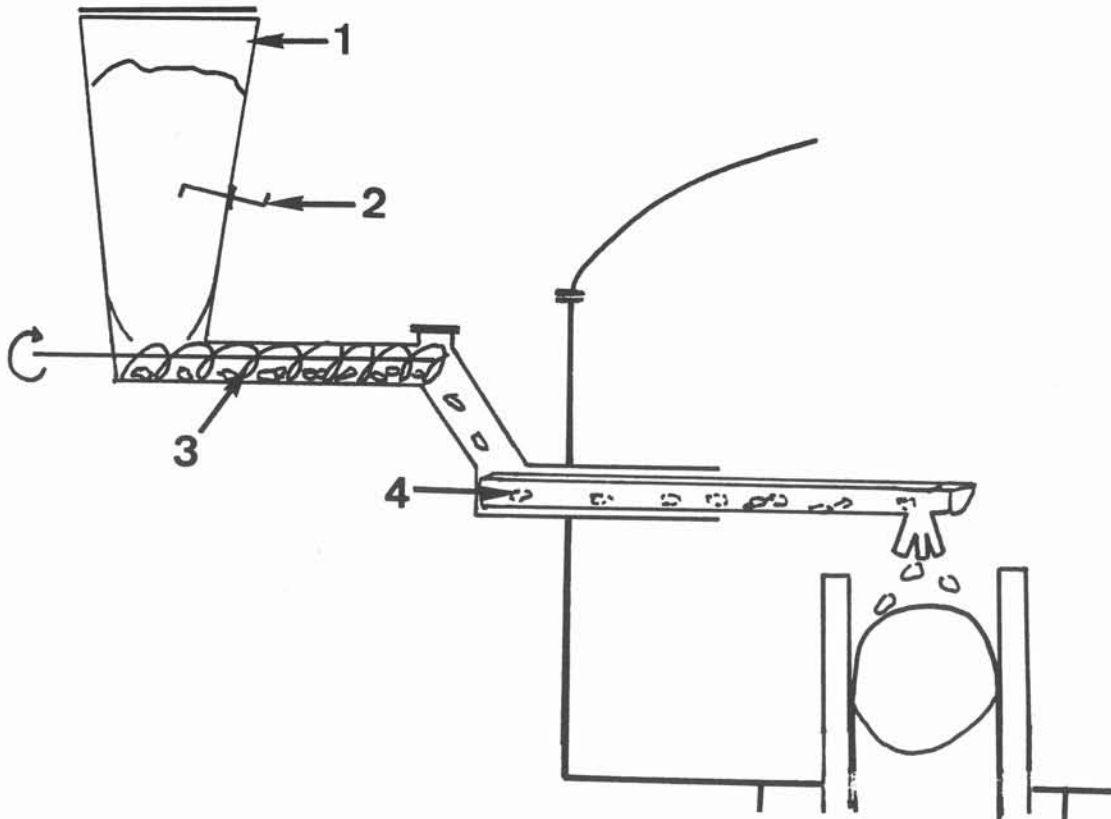


Fig. 3.04 : dispositif d'alimentation en matière à fondre

- 1 : réservoir de matière
- 2 : tige d'agitation
- 3 : vis sans fin
- 4 : lamelle vibrante

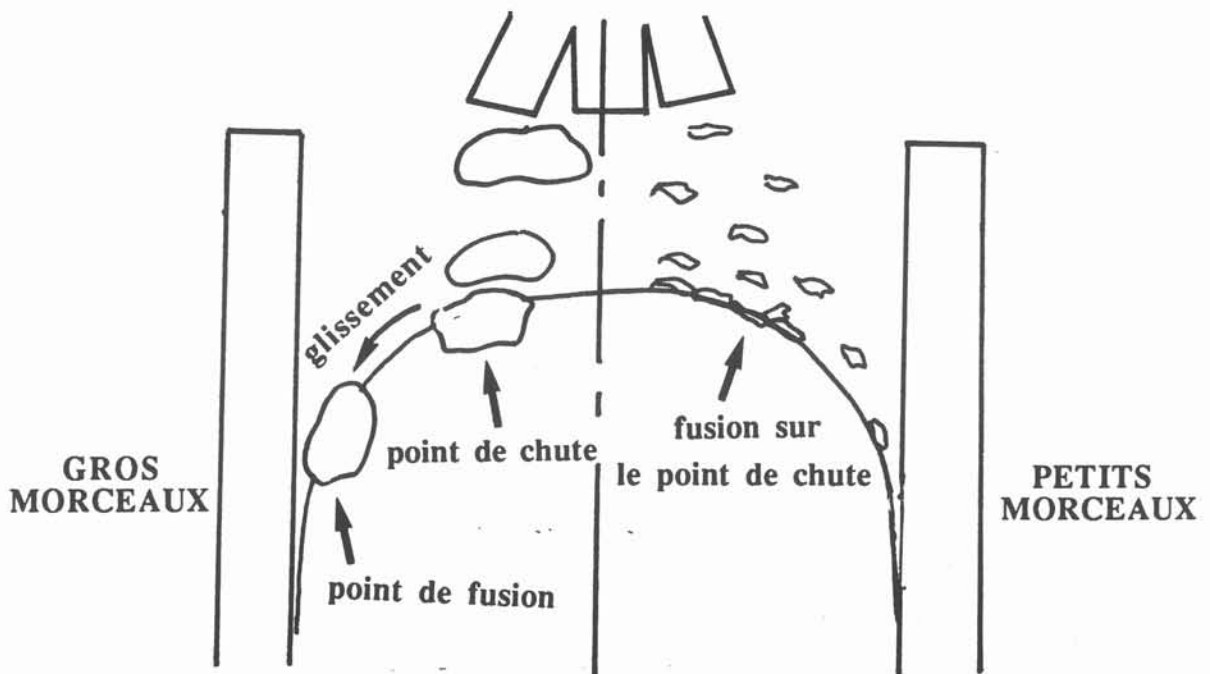


Fig. 3.05 : fusion des copeaux sur le dôme

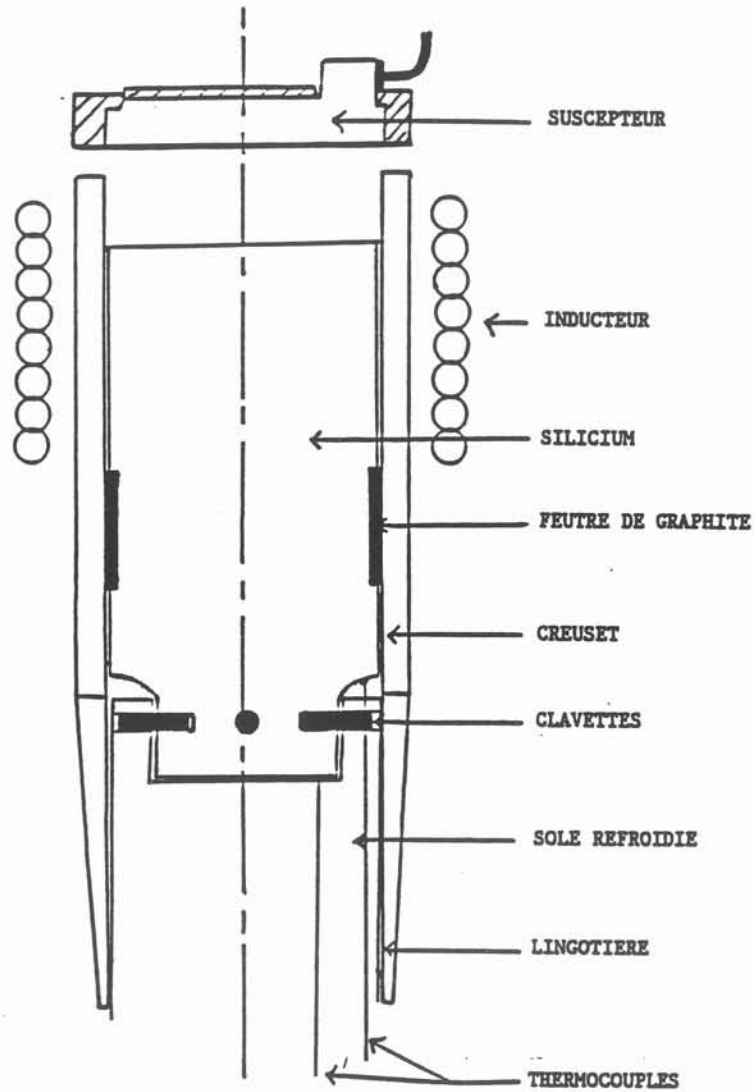


Fig. 3.06 : Dispositif d'essai avec une amorce de silicium clavetée. Le feutre obstrue le jeu entre le creuset et l'amorce.

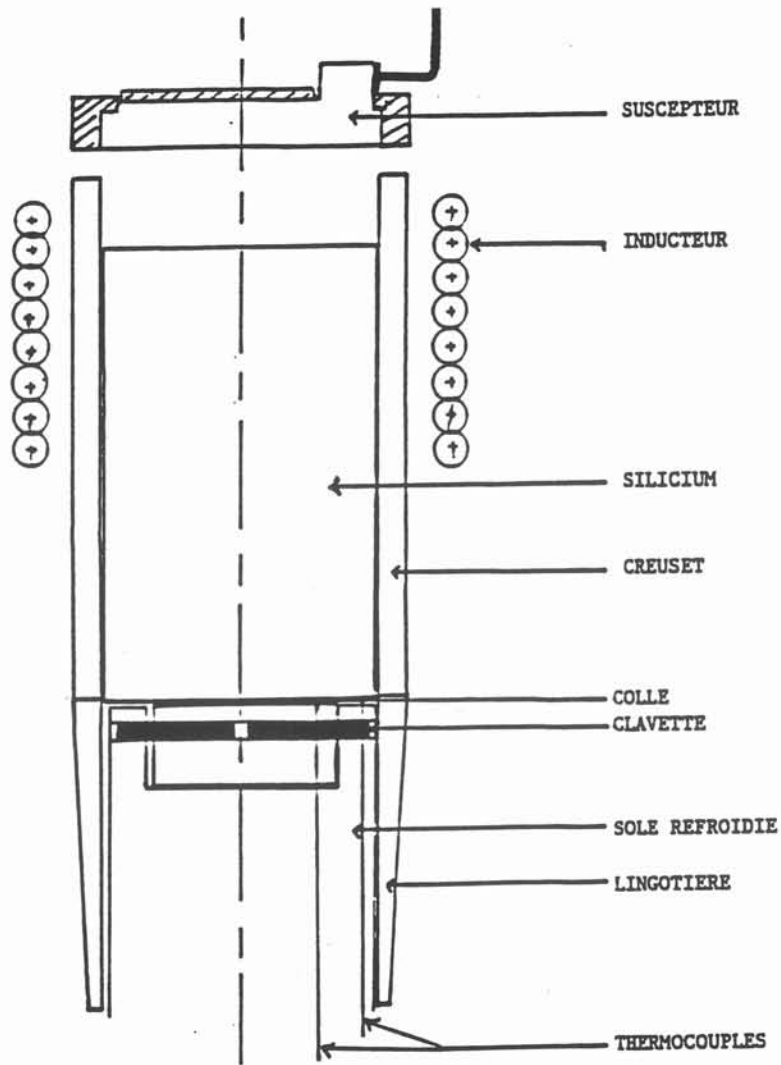


Fig. 3.07 : Dispositif d'essai avec une amorce de silicium collée sur une rondelle de graphite.

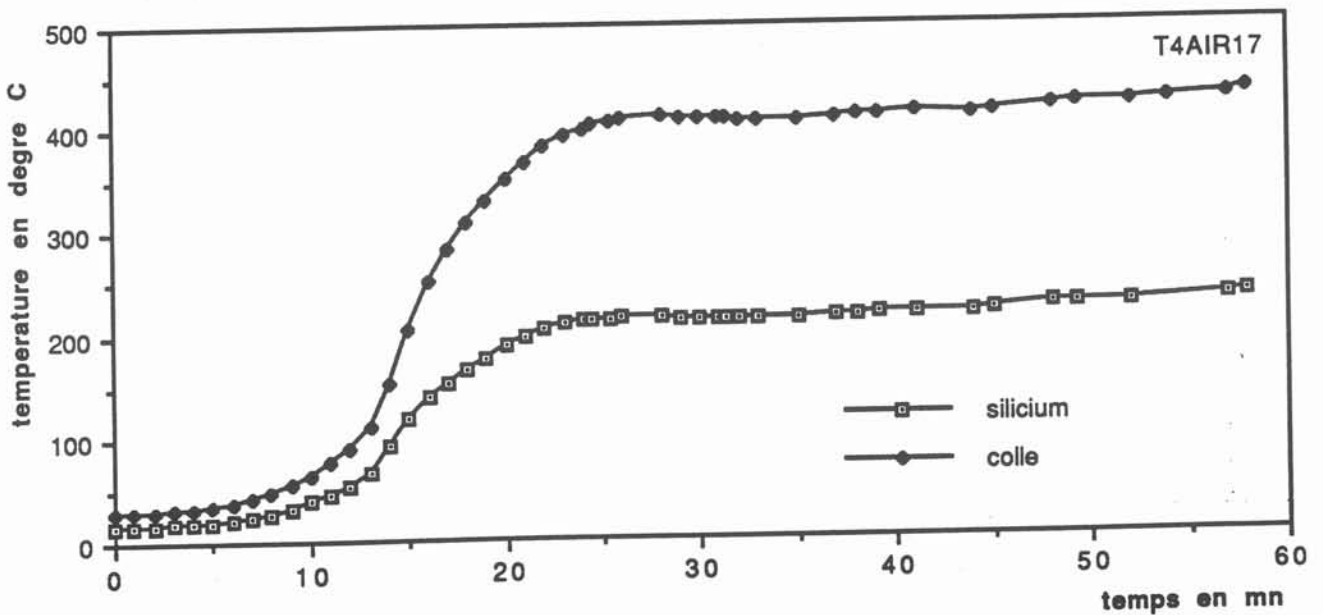


Fig. 3.08 : Mesure de la température en cours d'essai au niveau du joint de colle et du bas du silicium.

- Les colles ayant une température d'utilisation de l'ordre de 1500 °C sont mal adaptées au collage de silicium sur du graphite. Le joint n'adhère pas à l'un des deux matériaux ou il se cisaille lors du tirage.

Nous avons entrepris de fondre partiellement le silicium sur un support de graphite afin de former une interface très solide en carbure de silicium. Malgré les précautions prises lors du cycle de chauffage, les contraintes thermiques subies par le silicium ont conduit à la fissuration de l'amorce avant que l'extrémité ne soit refondue.

Le dernier dispositif repose sur l'utilisation du graphite comme pied de départ (dispositif de la sole chaude Fig.3.02). Le silicium est entièrement refondu sur le graphite puis solidifié lors du tirage en sortant de la zone d'action de l'inducteur. La nuance de graphite doit être soigneusement choisie de manière à garantir une bonne résistance mécanique et une porosité minimale. Le silicium peut en effet s'introduire dans un graphite poreux et faire éclater le pied en se solidifiant. Ce dispositif permet de tirer des billettes, mais il pollue les premiers centimètres élaborés.

### 3.2.4 Conclusion

La méthode de préchauffage par rayonnement est retenue. L'utilisation de la source de puissance existante et le bon contrôle de la température de la source par l'induction sont des atouts précieux. Cette méthode est de plus moins polluante que la sole chaude.

Pourtant la sole chaude est la solution aux problèmes d'initiation du tirage. Nous proposons d'utiliser la sole chaude lors de la première fusion pour créer une amorce longue de silicium. Cette amorce sera ensuite utilisée pour les élaborations. La partie supérieure la moins polluée sera refondue par rayonnement pour le démarrage de chaque cycle. La billette sera tronçonnée au niveau de la zone de refusion, et l'amorce sera ensuite réutilisée. Il est ainsi possible d'espérer diminuer la concentration en carbone provenant du pied initial de graphite.

Cette étude préalable a permis de confirmer qu'il était possible d'élaborer du silicium polycristallin en creuset froid. Ils nous ont appris à connaître les réactions du matériau. Un dispositif expérimental adapté à l'objectif a ainsi pu être conçu.

## 3.3 Elaboration de billettes de silicium multicristallin en creuset froid inductif

Cette partie est intégrée au volume confidentiel du mémoire de thèse.



## **Chapitre 4**

### **Structure du matériau en relation avec les paramètres expérimentaux**



## 4.1 Structure de solidification

### 4.1.1 Grains de solidification

Les billettes élaborées en creuset froid ont une structure de grains colonnaires. Trois zones de grains peuvent être distinguées : une zone de peau, une zone de transition et une zone de coeur (Fig. 4.01 à 4.04).

Dans la zone de peau, les grains croissent perpendiculairement à la paroi du creuset. Les grains sont très fins, la dimension caractéristique sur une section perpendiculaire à l'axe de croissance est inférieure au millimètre. Cette zone s'étend sur un dixième du rayon en moyenne.

Dans la zone de transition, les grains sont plus gros et leur axe de croissance est désorienté par rapport à l'axe de tirage. Cette zone s'étend sur 2 à 4 dixièmes du rayon de la billette.

Dans la zone de coeur, les grains sont orientés suivant l'axe de tirage ou forment un angle de moins de  $10^\circ$  avec ce dernier. C'est dans cette zone que les grains sont les plus gros. Son rayon est de l'ordre de 5 à 7 dixièmes du rayon de la billette.

La largeur et la proportion des zones de solidification les unes par rapport aux autres dépend des conditions d'élaboration de la billette (tableau 4.1). Lorsque le manchon de détensionnement est utilisé, la zone de peau s'élargit et passe de 6 mm en moyenne à 8 mm de large, aux dépens de la zone de transition. La zone de coeur reste de largeur constante.

Tableau 4.1 : répartition des zones de solidification dans certains échantillons  
ces mesures sont subjectives et reposent sur l'appréciation de l'observateur

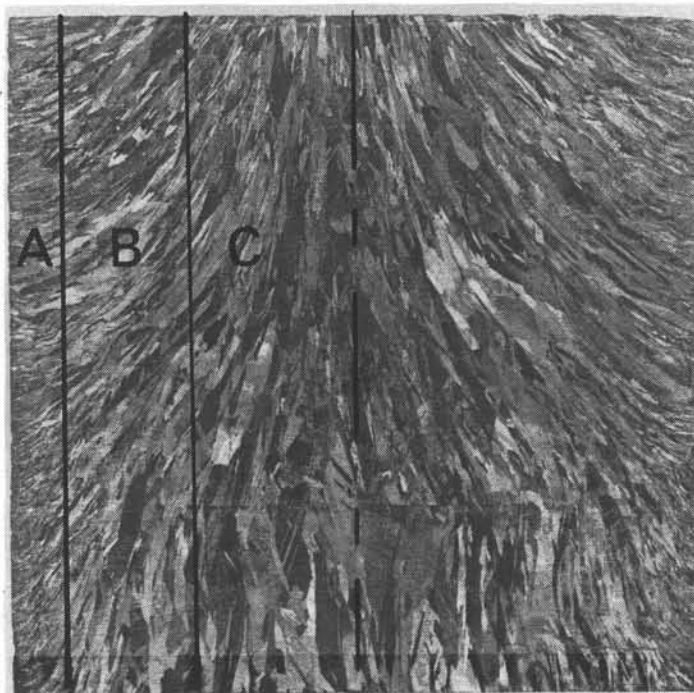
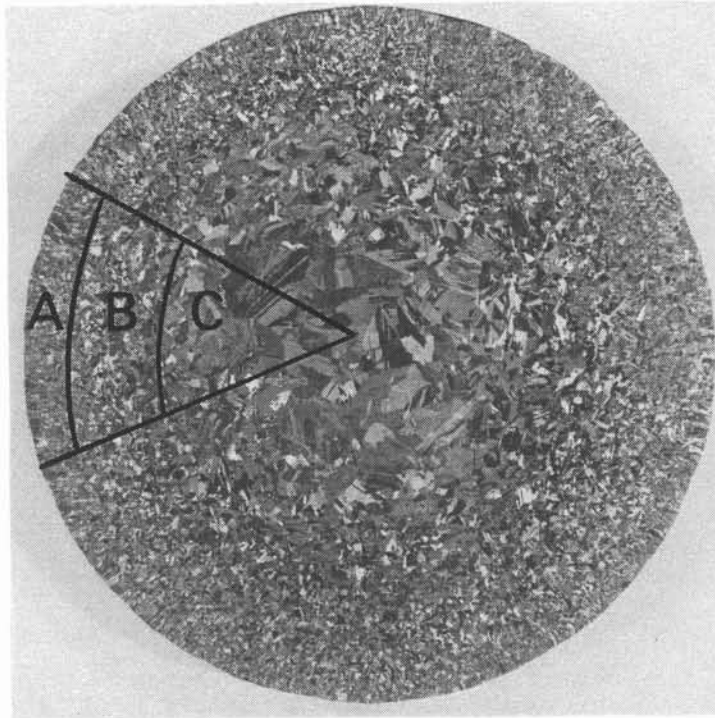
billette	zone de peau (mm)			zone de transition (mm)			zone de coeur (mm)		
	largeur de zone	taille de grain bas	taille de grain haut	largeur de zone	taille de grain bas	taille de grain haut	largeur de zone	taille de grain bas	taille de grain haut
CD17	6	0,1 -0,5	idem	15-20	1,5	2	25-30	2-3	3-5
CD18	5	0,1	idem	15-20	2	2	25-30	2-4	3-7
CD19	7	<1	idem	10-15	2	2	30-35	4	4-8
CDF20	8	<1	idem	12-17	1-2	idem	25-30	2-4	idem
CDF21	7	<0,5	idem	15	1	idem	30	2-4	idem
CDF24	8,5	<1	idem	15	1-2	idem	30	3-4	idem
C3	2-3	0,1	idem	10	1-2	idem	15-18	2-3	idem
C4	3	<0,2	idem	8-9	<1	.	15-19	2-3	.
B5	4-5	0,2	idem	8-10	<1	1-2	17-18	2	idem

En creuset de section carrée 60 mm x 60 mm, on observe une structure légèrement plus fine qu'en creuset de section circulaire 102 mm. Compte tenu des faibles dimensions du creuset, la proportion de zone de coeur par rapport aux autres est plus faible. Ceci traduit l'importance que prend le refroidissement par les parois du creuset.

### 4.1.2 Calcul analytique de l'épaisseur de la zone de peau

La zone de peau se constitue pendant le temps de transit de la billette à proximité du creuset. Entre le noeud triple et le bas du creuset, les échanges thermiques s'effectuent essentiellement





1cm

Fig.4.01 : Coupes transversales et longitudinales d'une billette diamètre 102 mm élaborée sans le manchon (référence CD17).  
Zones de solidification :  
A : zone de peau  
B : zone de transition  
C : zone de cœur

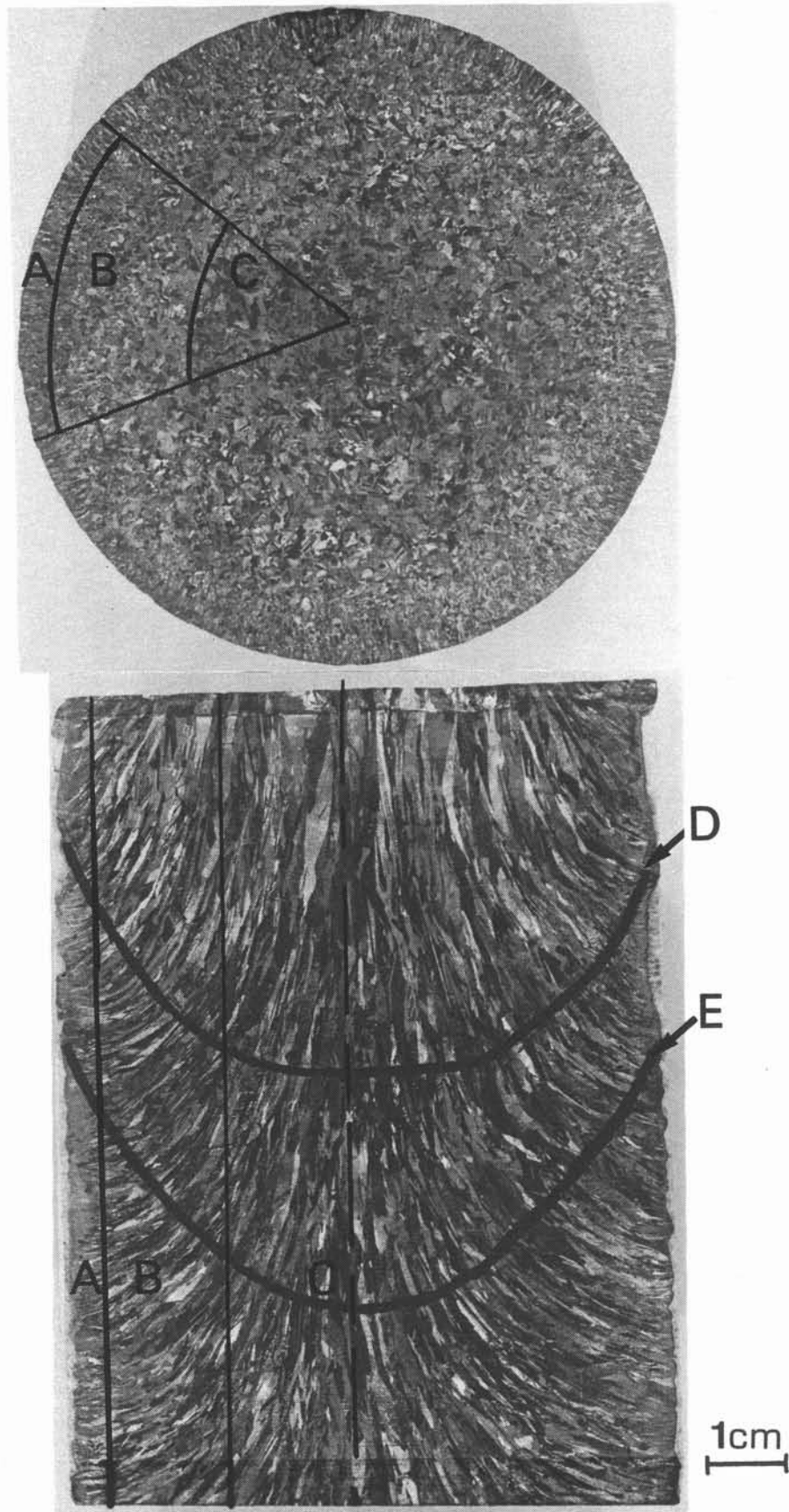


Fig.4.02 : Coupes transversales et longitudinales d'une billette diamètre 102 mm élaborée avec le manchon (référence CD24).

Zones de solidification :

- A : zone de peau
- B : zone de transition
- C : zone de cœur

Front de solidification :

- D : tracé perpendiculaire à l'axe de croissance des grains
- E : enveloppe déterminée par un marquage résistant à l'antimoine

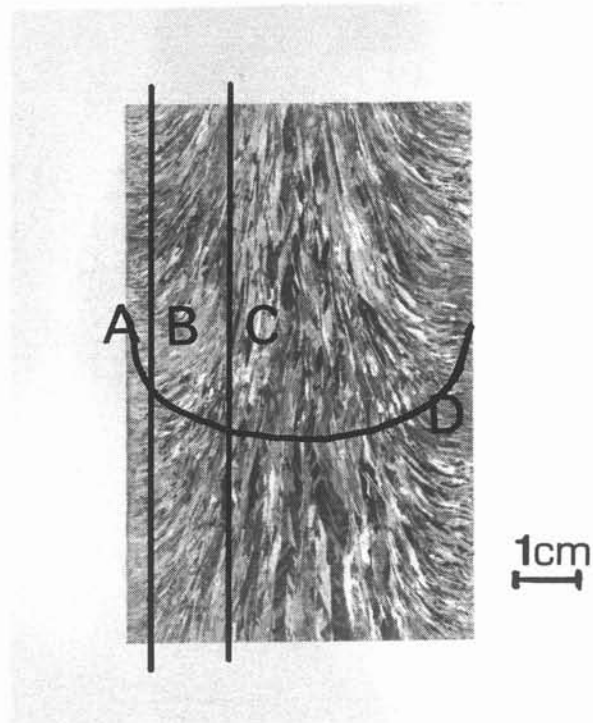
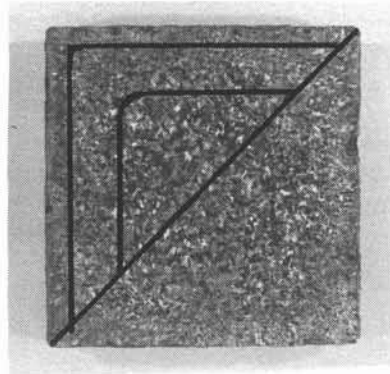


Fig.4.03 : Coupes transversales et longitudinales d'une billette de section carrée élaborée avec le manchon (référence C3)

Zones de solidification :

A : zone de peau

B : zone de transition

C : zone de cœur

Front de solidification :

D : tracé perpendiculaire à l'axe de croissance des grains

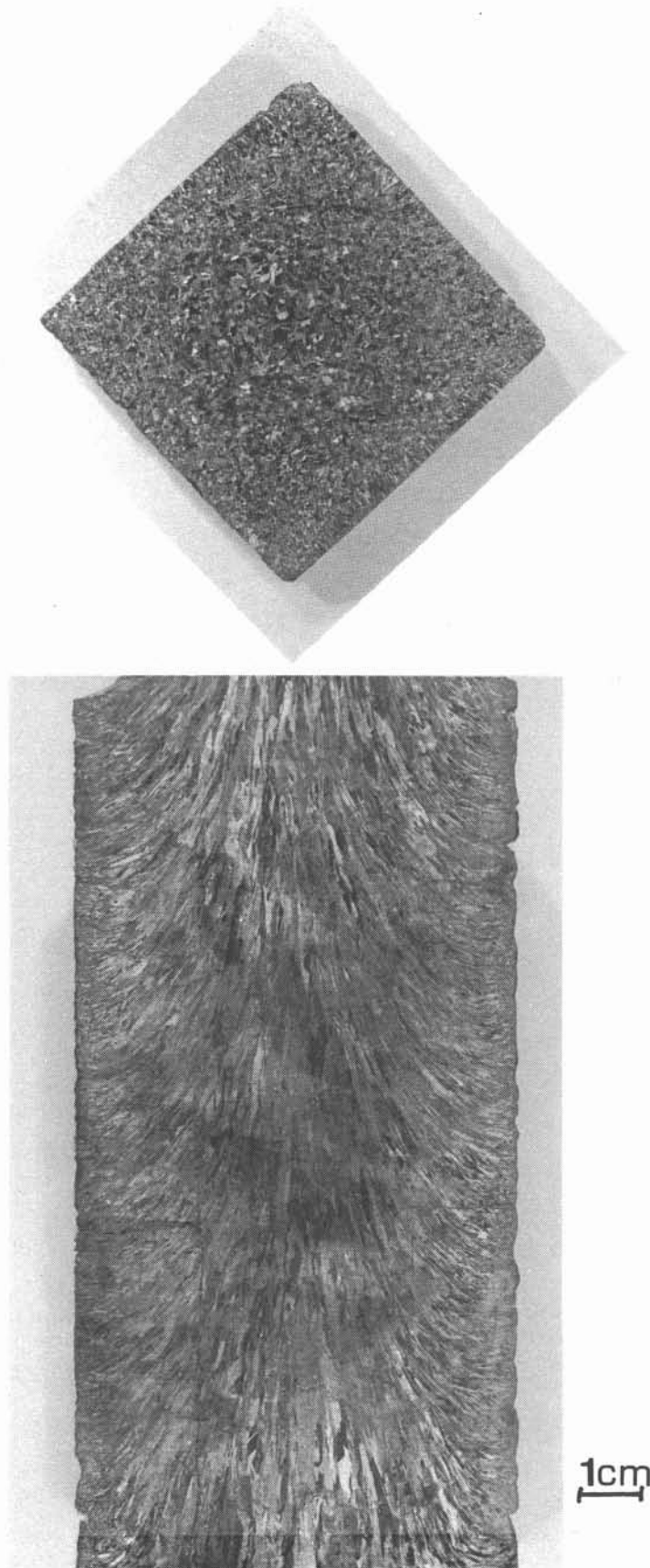


Fig.4.04 : Coupes transversales et longitudinales suivant la diagonale d'une billette de section carrée élaborée avec le manchon (référence B5)

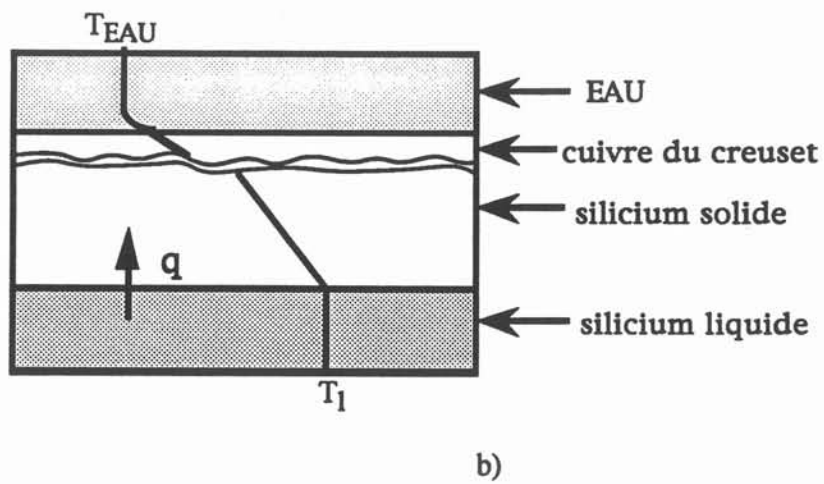
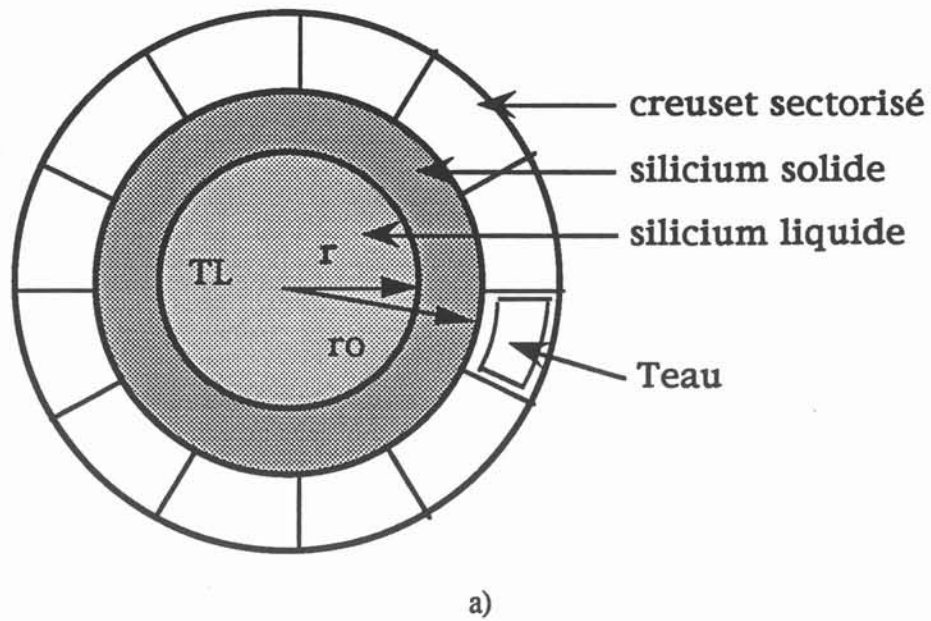


Fig. 4.05 : Schématisation des échanges thermiques dans les éléments  
 a) coupe transversale du dispositif  
 b) évolution de la température dans les différents milieux

radialement. On peut alors estimer l'épaisseur de la couche solide en fonction du temps, c'est à dire en fonction de la distance au noeud triple et de la vitesse de tirage. Le modèle de London et Seban [30] établi pour calculer la vitesse de la formation de la glace dans un cylindre est adaptable au creuset froid.

Les hypothèses du modèle sont :

- le creuset est à l'origine rempli de silicium liquide de température uniforme  $T_1 = T_f$ ,
  - les échanges de chaleur s'effectuent uniquement radialement,
  - les propriétés physiques et le coefficient d'échange silicium/creuset sont constants.
- Les transferts dans le solide s'effectuent par conduction. Les échanges entre le solide et le creuset sont modélisés par un coefficient d'échange convectif global  $h_{cr}$  (Fig.4.05). Ce coefficient d'échange prend en compte :
- les échanges par rayonnement convection dans l'argon entre le solide et la paroi du creuset,
  - la conduction dans le cuivre du creuset,
  - la convection dans l'eau du creuset.

Lors de la solidification progressive du silicium, le flux thermique s'exprime sous la forme :

$$q = \frac{1}{R_{Si} + R_h} (T_1 - T_{eau}) \quad (4.01)$$

avec 
$$R_{Si} = \frac{1}{2\pi k_{Si}} \ln \frac{r_o}{r} \quad (4.02)$$

$$R_h = \frac{1}{2\pi r_o h_{cr}} \quad (4.03)$$

Le flux de chaleur contribue à l'évacuation de la chaleur latente de solidification. Si la température du bain reste homogène, l'équation de l'équilibre thermique au front s'écrit :

$$q = - 2\pi \rho L_f \frac{dr}{dt} \quad (4.04)$$

Le terme  $2\pi \rho \frac{dr}{dt} l_f$  représente la fraction volumique de solide formé pendant l'intervalle de temps  $dt$ .

soit : 
$$- 2\pi \rho L_f \frac{dr}{dt} = \frac{1}{R_h + R_{Si}} (T_1 - T_{eau}) \quad (4.05)$$

$$= - (T_1 - T_{eau}) \left( \frac{2\pi k_{Si}}{\ln \frac{r_o}{r}} + 2\pi r_o h_{cr} \right)$$

Les échelles caractéristiques de longueur, de temps permettent d'adimensionnaliser  $r$  et  $t$ .

$$r^* = \frac{r}{r_o} \quad t^* = \frac{-(T_1 - T_{eau})k_{Si}}{\rho L_f r_o^2} t \quad Bi = \frac{h_{cr} r_o}{k_{Si}} \quad (4.06)$$

où  $Bi$  est un nombre de Biot.

L'équation adimensionnelle décrivant l'équilibre au front s'écrit :

$$\left( -\log r^* + \frac{1}{Bi} \right) r dr^* = - dt^* \quad (4.07)$$

avec les conditions aux limites :

$$t = 0 \quad r = r_0 \Rightarrow \quad t^* = 0 \quad r^* = 1 \quad (4.08)$$

$$t = t_1 \quad r = r \Rightarrow \quad t^* = t_1^* \quad r^* = r^* \quad (4.09)$$

La solution de l'équation 4.07 est :

$$t^* = \frac{r^{*2}}{2} \log r^* + \left( \frac{1}{2B_i} + \frac{1}{4} \right) (1 - r^{*2}) \quad (4.10)$$

En tirage permanent à la vitesse  $V_t$ , le temps de solidification de la zone de peau s'exprime par

$$t = \frac{z}{V_t}$$

où  $z$  est la longueur du creuset en dessous du noeud triple. L'équation 4.10 peut s'écrire :

$$\frac{z}{V_t} \frac{-(T_l - T_{eau})k_{Si}}{\rho L r_0^2} = \frac{r^{*2}}{2} \log r^* + \left( \frac{1}{2B_i} + \frac{1}{4} \right) (1 - r^{*2}) \quad (4.11)$$

Les paramètres opératoires modifiés d'un essai à l'autre sont  $V_t$ ,  $z$  par l'intermédiaire de la puissance transmise à la charge et  $h_{cr}$  qui intervient dans le nombre de Biot.

La Fig. 4.06 représente l'épaisseur de solide formée en fonction du temps pour plusieurs coefficients d'échange creuset/solide. La vitesse de tirage étant connue pour chaque essai, le temps peut être rapporté à la longueur de creuset sous le noeud triple.

Les valeurs retenues pour tracer ces courbes sont :

$$\rho = 2500 \text{ kg/m}^3 \quad L_f = 1402 \cdot 10^3 \text{ J/kg}$$

$$k = 32 \text{ Wm}^{-1} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1} \quad r_0 = 51 \cdot 10^{-3} \text{ m}$$

$$T_l = 1420^\circ\text{C} \quad T_{eau} = 20^\circ\text{C}$$

et les grandeurs adimensionnelles s'écrivent :

$$r^* = \frac{r}{51 \cdot 10^{-3}} \quad r^* \text{ est caractéristique de la taille de la zone liquide}$$

$$B_i = 1,59 \cdot 10^{-3} h_{cr}$$

$$t^* = 1,53 \cdot 10^{-4} t$$

Dans la position C du creuset, les traces d'oxydes relevées en surface du creuset (cf chap 3) ont permis de localiser le noeud triple à 48 mm du bas du creuset. A la vitesse de 1 mm par minute, le temps de transit du barreau devant le creuset est de 2880 s. Pour  $t = 2880$  s, le pourcentage de solide sur le rayon est :

$h_{cr} = 100 \text{ W/m}^2 \text{ K}$	$1 - r^* \approx 0,68$	soit	$r_{solide} = 4,08 \text{ mm}$
$h_{cr} = 150 \text{ W/m}^2 \text{ K}$	$1 - r^* \approx 0,12$		$r_{solide} = 6,12 \text{ mm}$
$h_{cr} = 200 \text{ W/m}^2 \text{ K}$	$1 - r^* \approx 0,15$		$r_{solide} = 7,65 \text{ mm}$
$h_{cr} = 250 \text{ W/m}^2 \text{ K}$	$1 - r^* \approx 0,2$		$r_{solide} = 10,2 \text{ mm}$

Le rayon de la couche solidifiée en sortie du creuset pour un coefficient d'échange de  $150 \text{ W/m}^2 \text{ } ^\circ\text{K}$  à  $200 \text{ W/m}^2 \text{ K}$  est proche de la largeur de la zone de peau des échantillons élaborés sans le manchon de détentionnement.



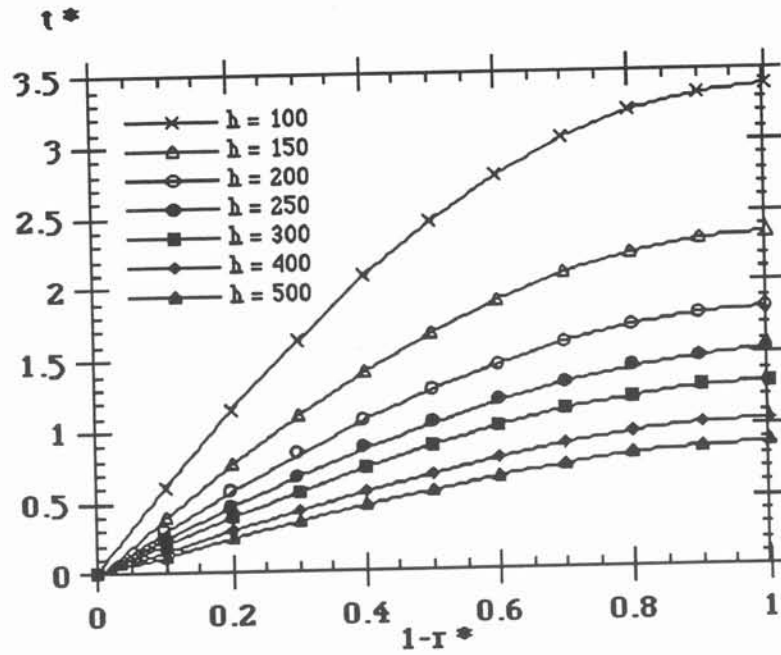


Fig. 4.06 : Tracé du temps de solidification nécessaire pour obtenir une couche solide d'épaisseur  $1 - r^*$

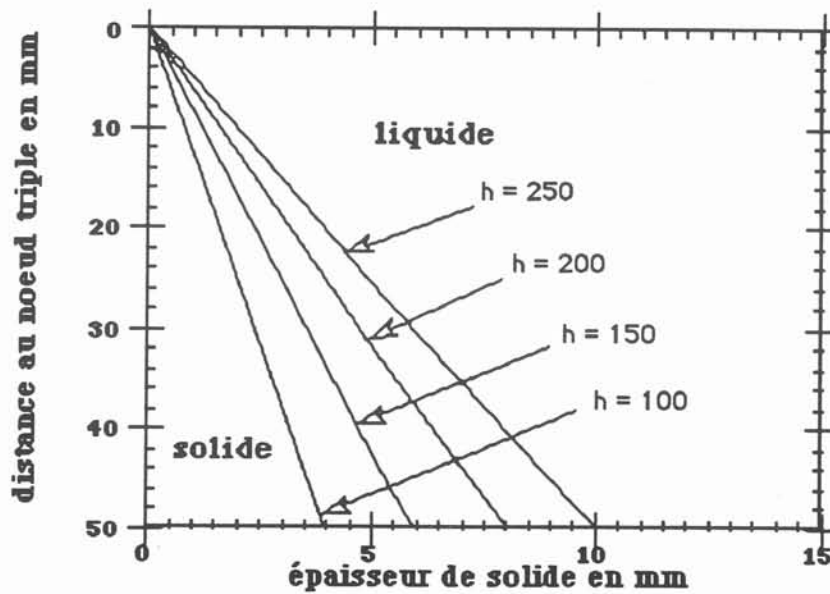


Fig. 4.07 : Tracé de l'épaisseur de solide en fonction de la distance au noeud triple pour une vitesse de tirage de 1 mm/mn



La Fig.4.07 représente l'évolution de la couche solide avec la cote pour 4 valeurs du coefficient d'échange.

Le tableau 4.2 récapitule le calcul de la position du noeud triple pour les épaisseurs de la zone de peau des billettes élaborées dans la position C.

Tableau 4.2 : Calcul de la position du noeud triple à partir de la mesure de la largeur de la zone de peau pour les essais effectués en position C

ESSAI	UI en kW	Vt en mm/mn	épaisseur zone de peau en mm	temps s	Z en mm
CD 17	36	1	6	3078	51,2
CD 18	36	0,85	5	2585	36,6
CD 19	36	0,8	7	3562	47,5
CDF 20	64	0,8	8	4038	53,8
CDF 21	72	0,9	7	3562	53,4
CDF 24	77	1	8,5	4272	71,2

#### 4.1.3 Taille de grain

Les grains des billettes élaborés en creuset froid ont une taille faible (tableau 4.1), surtout par rapport aux grains de quelques centimètres du procédé polix. Sans manchon, la taille de grain dans la zone de coeur varie avec la hauteur dans la billette. Près de la sole chaude, elle est de l'ordre de 2 à 4 mm (Fig. 4.08.B). La taille de grains est comparable dans la zone de transition et dans la zone de coeur. Sur une coupe réalisée dans une zone du barreau où le régime est établi, (Fig. 4.08. A), une inhomogénéité de la taille de grain est constatée. Les grains de la zone de coeur sont plus gros (5 à 7 mm en moyenne) alors que la taille de ceux de la zone de transition n'a pas évolué.

Avec le manchon (Fig. 4.09), la taille de grain ne dépend plus de la cote du prélèvement de l'échantillon dans la billette. Les grains de la zone de transition et de la zone de coeur ont sensiblement la même taille. Tout se passe comme si le régime permanent de solidification était atteint dès les premiers centimètres élaborés.

Dans la gamme de vitesse explorée (0,6 à 1,8 mm/mn) aucune différence notable n'a permis de définir une relation entre la vitesse de tirage et la taille des grains.

La taille de grain dans la zone de coeur semble dépendre de la section du creuset, ou plus exactement de l'importance relative du refroidissement radial apporté par les parois du creuset. En augmentant la taille du creuset, la taille des grains au centre devrait augmenter elle aussi. L'augmentation en section est d'autant plus favorable qu'elle permet de limiter la proportion de zone de transition dans la plaquette.

#### 4.1.4 Forme du front de solidification

Dans le cas des métaux et alliages, les joints de grains se développent parallèlement aux lignes de flux de chaleur. Le front de solidification est une surface orthogonale aux lignes de flux. Elle a été estimée en traçant en tout point la perpendiculaire aux joints de grain (Fig. 4.02, ligne D). La profondeur du front est alors de l'ordre de 0,4 fois le diamètre de la billette.

Un marquage résistif à l'antimoine a été réalisé. La forme du front est détectée par la variation de résistivité au passage de la zone P à la zone N (Fig. 4.02, ligne E). Le front mesuré est plus

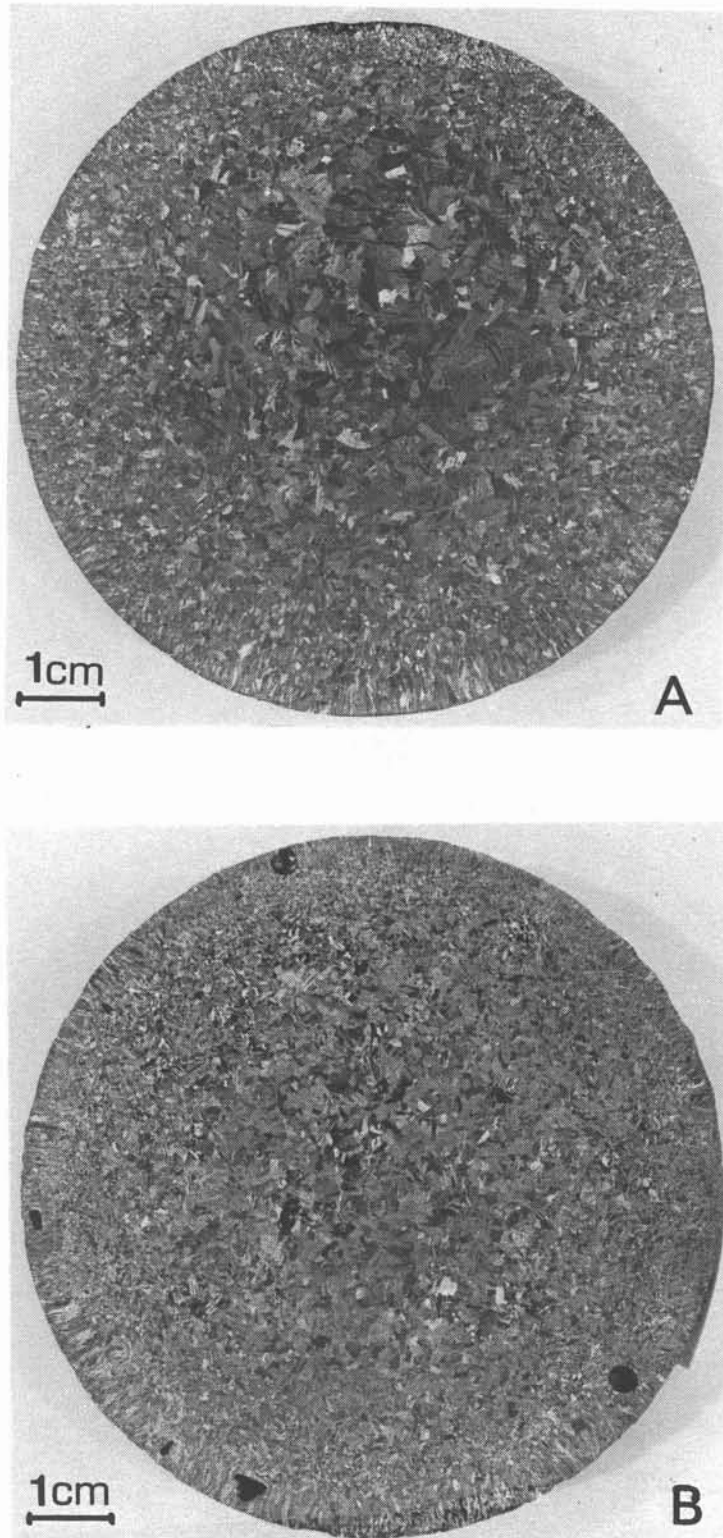


Fig. 4.08 : Coupes transversales d'une billette élaborée sans manchon de détensionnement (référence CD 18)

A) en régime établi, les grains de la zone de coeur sont plus gros.  
B) en bas de la billette, les grains sont fins et de taille homogène.  
Quelques porosités se situent en périphérie du lingot.

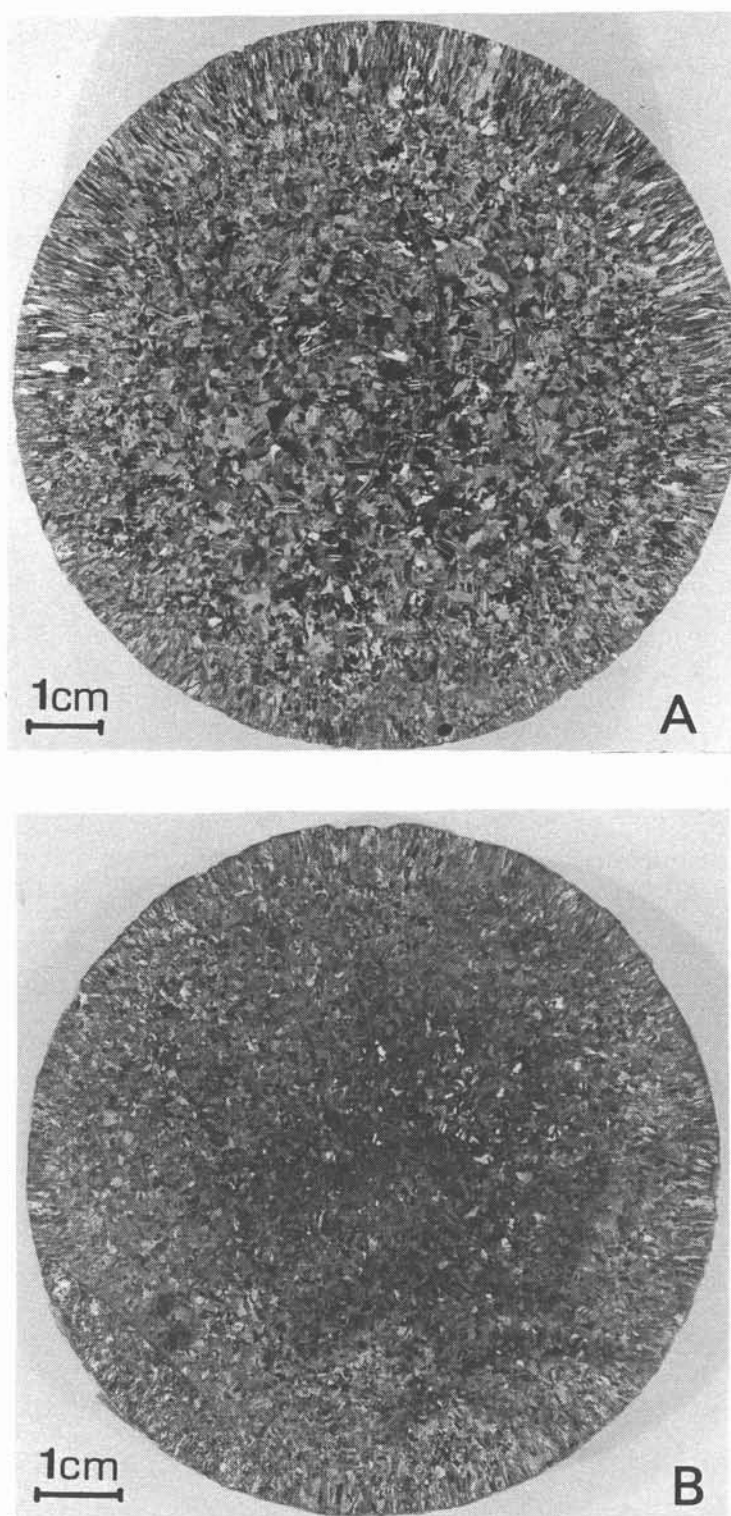


Fig. 4.09 : Coupes transversales d'une billette élaborée avec le manchon de détensionnement  
(référence CDF 24)  
A) en régime établi  
B) en bas de la billette

creux que les fronts estimés, sa courbure dans la zone de coeur est plus importante. Sa profondeur est environ de 0,42 fois le diamètre de la billette. En première approximation, les fronts tracés sont corrects et peuvent être utilisés. Ils évitent le marquage à l'antimoine qui pollue le barreau et empêche une exploitation électrique ultérieure.

#### 4.1.5 Mâcles et défauts

De nombreuses macles sont présentes dans les grains.

Les attaques chimiques révèlent la présence de dislocations. Les premières estimations donnent une densité de l'ordre de quelques  $10^6 \text{ cm}^{-2}$ . Les micrographies laissent apparaître une grande inhomogénéité de répartition. Au bord de l'échantillon, les grains sont entièrement recouverts de figures d'attaque. Au centre, certains grains apparaissent vierges. Il s'agit sans doute d'un effet d'orientation du grain, le plan de coupe ne croisant pas les lignes des dislocations qui s'établissent de préférence suivant des directions (111).

L'oxydation anodique du silicium [15] permet de révéler les changements d'orientation cristallographique par des différences de vitesses d'oxydation. Ces orientations se traduisent par un contraste de couleurs sur les micrographies. Les premiers résultats montrent une large distribution de couleurs à proximité de la paroi. Quelques millimètres plus loin, seules deux ou trois couleurs persistent et une couleur domine largement. Des mesures cristallographiques restent nécessaires pour corréler la couleur et l'indice cristallographique du plan car cette relation dépend de la quantité d'impuretés présentes dans le matériau. Cette attaque permet également de mettre en évidence les plans de macle dans les grains.

#### 4.1.7 Discussion sur la formation de la structure de grain

Les macrographies et les micrographies montrent que la croissance est initiée sur les bords de la billettes, sous l'effet du refroidissement dû au creuset. De multiples grains, très fins, se forment le long de la surface extérieure, juste à l'emplacement de la ligne triple où les phases liquide, solide et gazeuse se rejoignent. Les micrographies obtenues après oxydation anodique montrent que les tous premiers grains sont équiaxes, l'allongement des grains n'est visible qu'à partir de la deuxième couche de grains. Ces grains se développent et grandissent suivant les lignes de flux de chaleur (Fig. 4.10). En cours de croissance, les grains dont l'orientation cristalline est la plus favorable grandissent plus rapidement que les autres et une sélection s'opère. Cette sélection permet l'accroissement de la taille moyenne des grains.

Dans nos conditions d'élaboration, la croissance est facettée. Ce mécanisme est favorisé par les nombreuses dislocations présentes dans le matériau et qui créent des marches d'attachement pour les atomes. Les paires de macles jouent un rôle primordial dans la croissance.

Le niveau d'impuretés dans le silicium est très faible. La surfusion constitutionnelle est négligeable et notre matériau peut être considéré comme un corps pur. La croissance est alors gouvernée par la surfusion thermique.

Walton et Chalmers [16] ont exposé les mécanismes de sélection des grains en croissance colonnaire. Leur étude montre que la sélection opère lorsque la croissance est dendritique. En croissance cellulaire, l'augmentation de la taille de grain est moins sensible. Aucune orientation préférentielle n'est alors remarquée. A l'opposé, en croissance dendritique, l'augmentation de taille des grains est la conséquence d'une désorientation du joint de grain par rapport aux lignes de flux de chaleur. La sélection d'orientation se produit dans les premiers millimètres de la solidification. L'évolution de la distribution des couleurs observée après oxydation anodique confirme cette hypothèse.

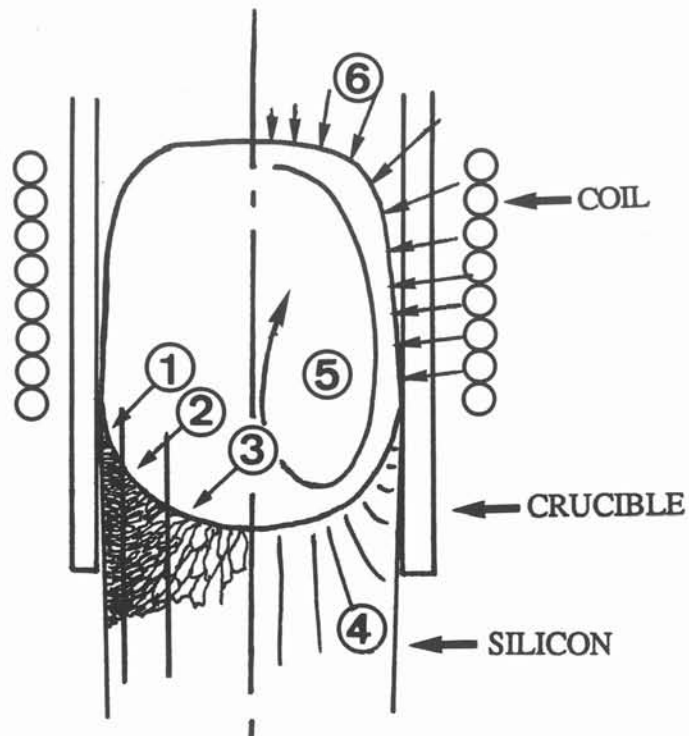


Fig. 4.10 : Schématisation de la structure de grain d'une billette.

A gauche : structure de grain

1 - zone de peau

2 - zone de transition

3 - zone de coeur

A droite :

4 - lignes de flux

5 - mouvement du bain

6 - forces de Laplace Lorentz



Les micrographies de la zone de peau montrent qu'elle est formée de cristaux équiaxes sur la première couche. Il y a donc nucléation, ce qui signifie que le liquide a été refroidi jusqu'à atteindre une surfusion suffisante pour permettre la nucléation. Walton et Chalmers se réfèrent aux mesures de Cech et Turnbull donnant  $48^{\circ}\text{C}$  pour l'aluminium. Les cristaux formés sont donc dans une surfusion importante d'origine thermique et non solutale, qui permet la croissance. Ils sont dans des conditions de croissance libre, et non en croissance contrainte dans laquelle la vitesse est imposée ainsi que le gradient thermique. La croissance colonnaire n'est pas une croissance contrainte, la surfusion est possible.

La vitesse de croissance est une fonction croissante de la surfusion. Il s'agit de la vitesse de déplacement de l'interface solide-liquide suivant une direction normale à l'échelle locale. Mais le front est dendritique. Les dendrites dont l'axe de croissance est orienté suivant les lignes de flux seront plus loin que les dendrites progressant dans une direction différente. La chaleur latente dégagée par les dendrites bien orientées va alors ralentir les autres en réduisant la surfusion en arrière de leur pointe. Le développement latéral des dendrites bien orientées se fera alors librement, et finira par éliminer les dendrites désorientées.

La croissance dendritique est le terme générique désignant une croissance en forme d'arborescence. La structure cubique diamant peut se macler suivant les plans (111) ou (112), mais les premiers sont favorisés énergétiquement. Dans ce cas, la direction de croissance est de type  $\langle 112 \rangle$ . Mais les macles de plan (111) sont particulièrement stables. Raanes [3] ont montré comment des arborescences cristallines de silicium peuvent se former. Ces arborescences sont construites à partir de plaquettes comportant trois parties cristallines ou plus placées deux à deux en position de macle avec la même direction de plan (111). La fixation le long du sillon formé en bout du plan de macle étant facile, la plaquette croît dans la direction  $\langle 112 \rangle$  et prend une forme triangulaire. Les plaquettes ainsi formées s'empilent pour former les branches de dendrites. Les branches latérales forment des angles de  $60^{\circ}$  ou  $120^{\circ}$  avec l'axe primaire car elles se développent également suivant des directions de type (112). En effet, les trois directions (112) présentes dans le plan (111) forment entre elles des angles de  $60^{\circ}$ . Ces formes dendritiques sont par exemple observables sur la surface supérieure des lingots Polix.

Lorsque l'arborescence complète est formée, il arrive que des microporosités se créent à l'embranchement des différents axes de croissance de la dendrite. Dans notre matériau, ces porosités peuvent agir comme des sources de dislocation et expliquer les fortes densités révélées par les attaques chimiques.

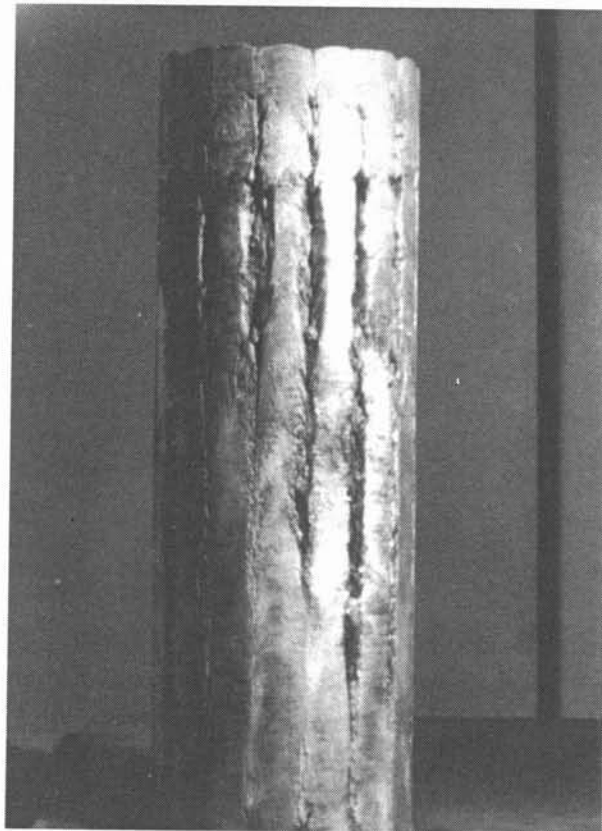
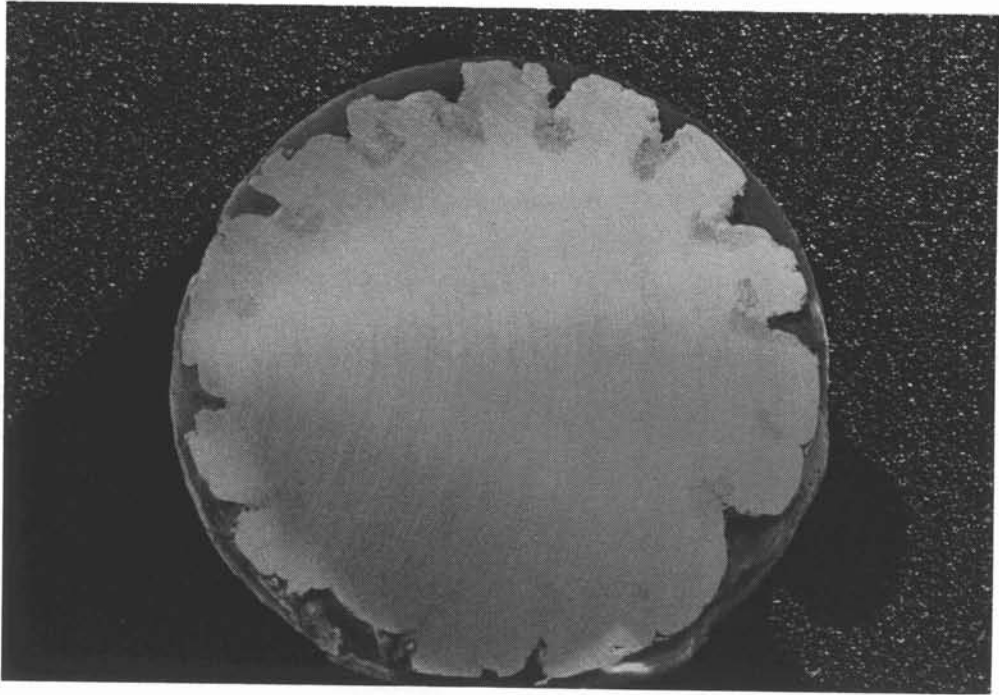


Fig 4.11 : Billettes d'aluminium élaborées à faible fréquence

## 4.2 Aspect extérieur des billettes

L'état de surface du bloc et sa régularité conditionne les pertes de matière dues à l'écroûtage. Ces pertes doivent bien entendu être minimisées, d'où l'importance de l'état de surface des billettes.

Les billettes élaborées en creuset froid inductif ont une surface rugueuse. Des marques correspondant aux fentes de creuset sont visibles en surface (Fig. 4.12.a). Ces marques dépendent du gradient de pression appliqué au liquide. Elles peuvent être très profondes pour certains matériaux comme l'aluminium pour lequel elles atteignent un centimètre de profondeur (Fig. 4.11). Dans ce cas, 1/5 de l'épaisseur de la billette doit être écroûté pour donner un lingotin utilisable.

### 4.2.1 observation des produits élaborés

Les marques profondes observées à faible fréquence sur l'aluminium sont la conséquence directe du découpage du dôme en pétales. La profondeur des fentes augmente lorsque le gradient de pression au milieu des fentes augmente, c'est à dire lorsque la masse volumique ou le paramètre d'écran  $R\omega$  diminuent. La profondeur des stries est importante jusqu'à une fréquence de 10 kHz en creuset diamètre 100 mm.

Lorsque la fréquence est faible (de 6 à 20 kHz), on observe un battement du dôme. Le liquide vient se solidifier par vagues contre le creuset. Les essais réalisés sur le titane [2] montrent alors un état de surface très perturbé. Le silicium, de densité voisine de l'aluminium, a un comportement identique à faible fréquence. Les essais à 13 kHz ont mis en évidence le découpage du dôme en pétale lorsque le volume du bain est faible. Les fentes disparaissent lorsque le bain a un volume suffisant. Des billettes sans stries ont été élaborées à cette fréquence.

Nous avons observé la sensibilité de l'état de surface des billettes à la variation des paramètres opératoires et en particulier à la vitesse de tirage, à la puissance et au volume du bain liquide. L'effet de la vitesse de tirage est difficile à observer dans la gamme réduite où nous travaillons (0,6 à 1,5 mm/mm). L'augmentation de la vitesse de tirage semble pourtant se traduire par une amélioration de l'état de surface.

Le volume du bain a une grande influence sur l'état de surface extérieur de la billette.

Lorsque le volume est faible, le dôme ne remplit pas la section du creuset. L'état de surface est rugueux et la solidification s'effectue par vagues (Fig. 4.12.c : lignes notées AA'). Ces vagues ont une fréquence irrégulière qui ne peut être liée ni à la fréquence de battement du dôme, ni au débit de matière d'alimentation. La présence de copeaux infondus en surface est alors classique. La capacité calorifique associée au volume de liquide est faible et les copeaux fondent lentement. Ceux qui tombent à proximité du noeud triple se retrouvent dans le solide avant d'avoir fondu.

Lorsque le volume du bain est maximal, le creuset agit comme un "moule" contre lequel le solide glisse. La surface est plus régulière et aucun infondu n'est visible en surface.

L'effet de la puissance est rapporté à un effet de volume.

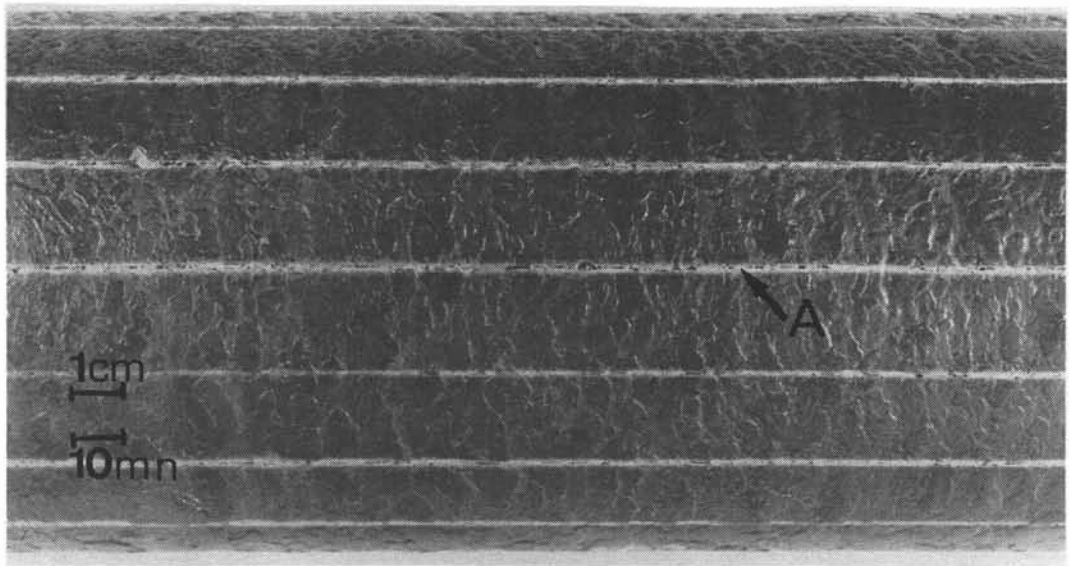
A forte puissance, la pression magnétique est augmentée. Le dôme va s'élever (Fig. 4.14). A faible puissance, le dôme est plus arrondi, il emplit la section du creuset et l'état de surface devient satisfaisant.

Quelques essais ont été réalisés avec un laitier. Le laitier, injecté sous forme de poudre en même temps que les copeaux d'alimentation, recouvre la surface de la billette de manière uniforme (Fig. 4.12.a).

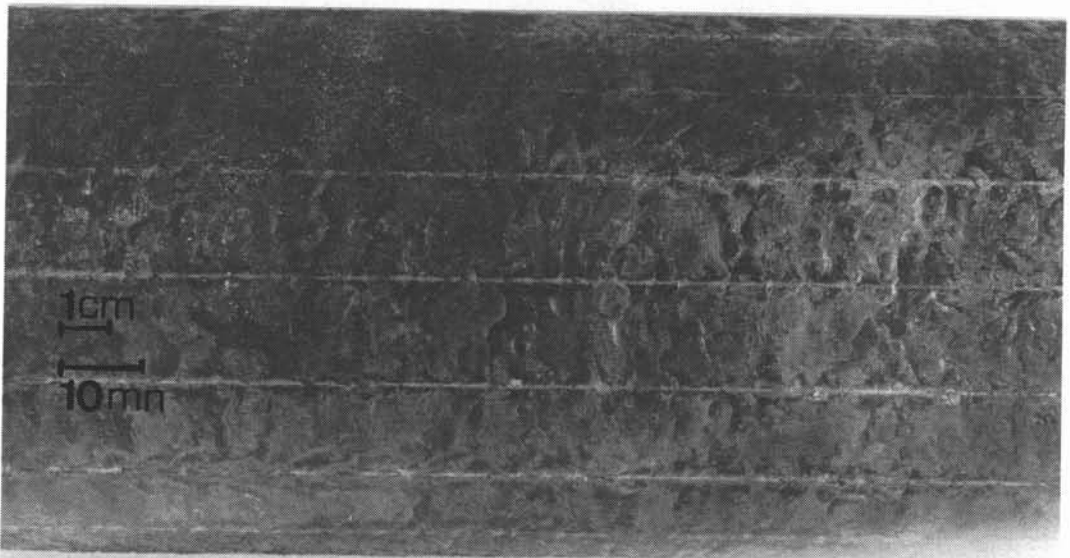
Lorsque le laitier est ôté (Fig. 4.13.a), on découvre un état de surface très mauvais. L'épaisseur de la couche de laitier est très irrégulière. Ceci s'explique aisément par le caractère discret de l'alimentation en laitier.



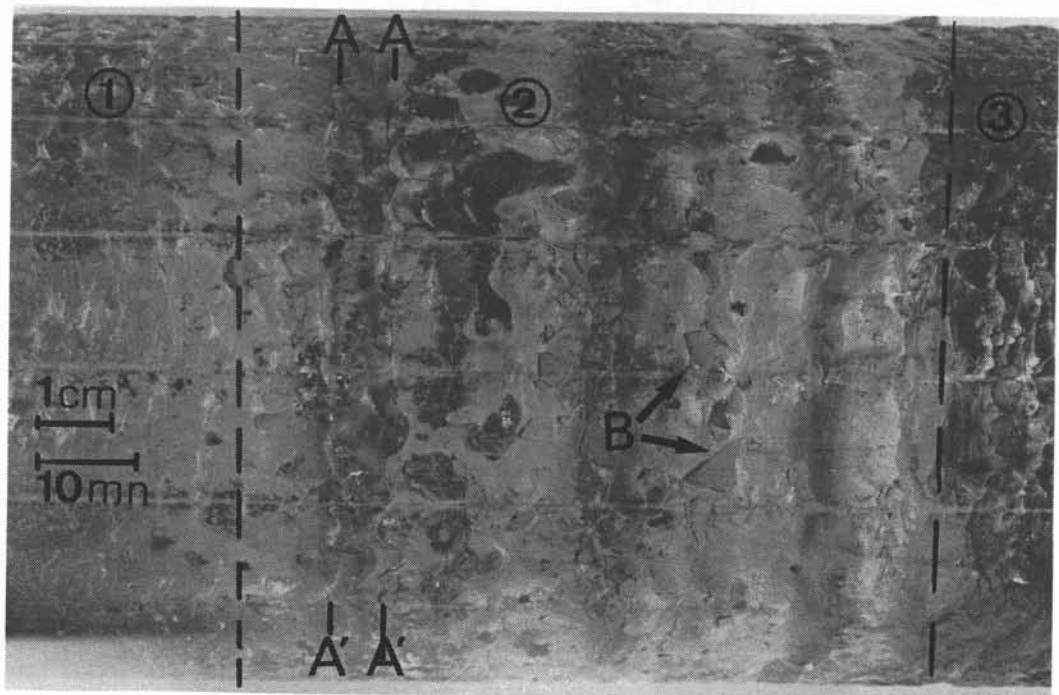
a



b



c



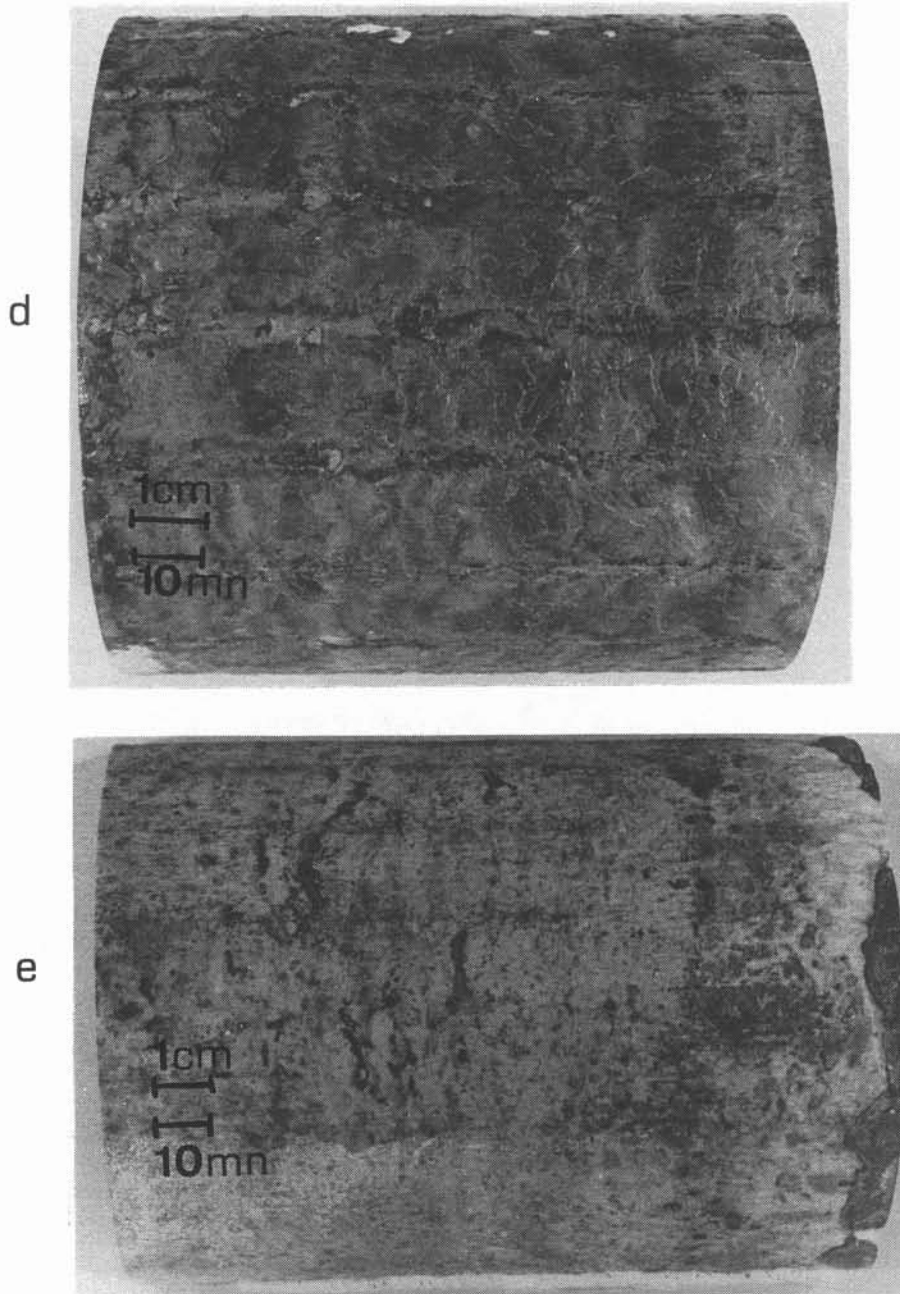


Fig. 4.12 : Etat de surface de l'extérieur des billettes à section circulaire diamètre 102 mm

- a) billette de référence élaborée à 1 mm/mn dans les conditions normales de fonctionnement (référence CDF 20).
- b) Echantillon
- c) Effet du changement de volume de liquide sur l'état de surface extérieur (référence **CDF 16**)  
 lignes AA' : vagues de solidification  
 B : copeaux infondus  
 zones 1 et 3 : zones de fonctionnement à volume de liquide normal  
 zone 2 : zone de fonctionnement à volume de liquide réduit
- d) Billette élaborée à faible vitesse de tirage (référence **DN 10**)
- e) Billette élaborée avec un laitier. Le laitier couvre bien la surface du lingot (référence CDF 24)

Pour les billettes de section carrée, il se pose un problème supplémentaire, celui de la qualité des arrêtes.

Les essais effectués montrent que la qualité des arrêtes dépend principalement de la forme du dôme. Lorsque le volume de liquide est maximal, le dôme s'inscrit dans la section carrée et les arrêtes sont de bonne qualité. Lorsque le volume de liquide est plus faible, le dôme garde une forme hémisphérique et les arrêtes de la billette sont irrégulières montrant un découpage qui laisse supposer une solidification par vague dans les angles.

Lorsque l'inducteur est décentré par rapport à l'axe du creuset, la qualité des arrêtes varie d'un angle à l'autre (Fig. 4.12.repère B). Dans ce cas, la dissymétrie du champ magnétique ne permet pas d'obtenir un dôme symétrique (Fig. 4.14). Cet état ne peut pas être corrigé en augmentant le volume de liquide car alors le dôme vient se coller sur les secteurs du côté noté 1 avant que la forme du dôme du côté noté 2 ne s'améliore. Cette dissymétrie se retrouve aussi au niveau de la macrostructure, l'axe de symétrie des lignes de flux est décentré dans le billette.

#### 4.2.1 Hypothèses sur la formation des vagues de solidification

Les mécanismes de formation des vagues et des stries observés sur les produits issus de la coulée continue ont été décrits par Ackermann [20].

Certaines notions s'appliquent à l'élaboration en creuset froid inductif si l'on prend en compte dans les équations d'équilibre l'effet de la pression magnétique.

Deux mécanismes peuvent expliquer la rugosité des billettes élaborées en creuset froid :

- la formation de stries par déformation mécanique du ménisque solide
- la formation de stries par mouvement ondulatoire du liquide.

Si l'on considère le voisinage du noeud triple, l'équilibre des phases liquide, gazeuse et solide détermine les interfaces entre les phases. L'état de quasi-équilibre est défini par les forces de répulsion électromagnétique associées à la pression hydrostatique.

L'intensité du refroidissement local en regard du creuset étant importante, une languette de solide se forme et remonte le long du ménisque liquide/gaz.

Le premier mécanisme (Fig. 4.15) a été observé par Thornton sur des coulées d'acier statiques. Dans le cas des alliages, la couche solidifiée comprend une zone mécaniquement faible où liquide et solide se côtoient.

La résistance mécanique de cette zone s'oppose à la pression hydrostatique locale. La couche va se replier vers la paroi du creuset. La profondeur de la strie est déterminée par la longueur sur laquelle la languette se sera propagée avant de fléchir.

Dans ce cas, les facteurs améliorant l'état de surface sont :

- la réduction du temps de résidence du ménisque, soit par augmentation de la vitesse, soit par la diminution de la hauteur du ménisque par l'action d'un gaz oxydant sur la tension de surface

- la réduction du refroidissement local du au creuset. La jonction liquide, solide, gaz est alors située en bas du ménisque et le liquide peut toucher le creuset même si l'angle de mouillabilité est inférieur à l'angle d'équilibre. Dans ce cas, la marque finale est un simple pli de la surface.

- l'augmentation de la température du liquide

- l'affaiblissement de la tenue mécanique du ménisque solide par augmentation de l'intervalle de solidification.

Pour un métal suffisamment pur, l'angle de mouillabilité est faible. Dans ce cas, la strie se forme par débordement du liquide et non par déformation du ménisque solide.

Dans le cadre de l'élaboration en creuset froid, l'état de surface est améliorable par augmentation de la vitesse de tirage ou par l'utilisation de gaz peu conducteurs, isolant le creuset du liquide.

Ce deuxième mécanisme (Fig. 4.16) est dû à un mouvement ondulatoire du liquide comme on en rencontre en creuset froid. Lorsque le liquide déborde sur le ménisque solide, le matériau

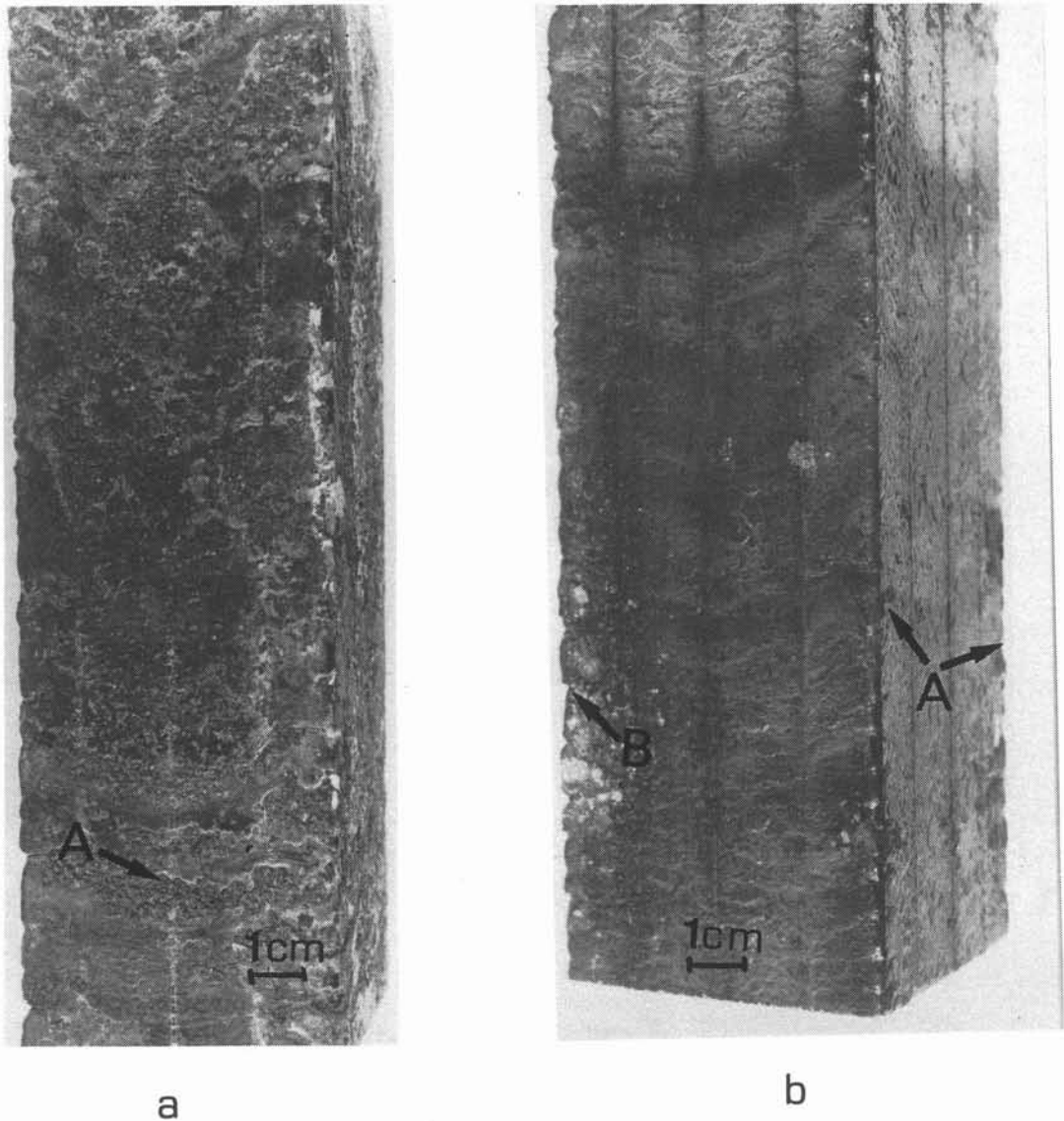


Fig. 4. 13: Etat de surface de l'extérieur de billettes de section carrée 60 mm x 60 mm

a) Billette élaborée avec un laitier.(référence C4) La surface est irrégulière.  
A : zones à état de surface granuleux

b) Billette élaborée sans laitier (référence C3).  
1 : arrêtes régulières  
2 : arrête très irrégulière : le découpage de l'angle laisse suspecter une solidification par vagues.

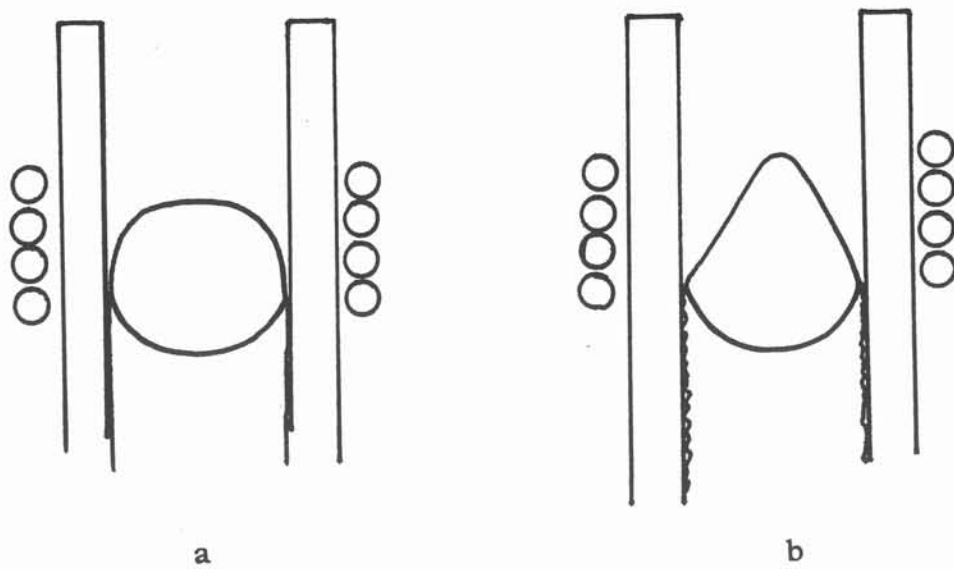


Fig. 4 14 : Evolution de la forme du dôme avec la puissance à volume de liquide constant.  
 a) faible puissance  
 b) forte puissance

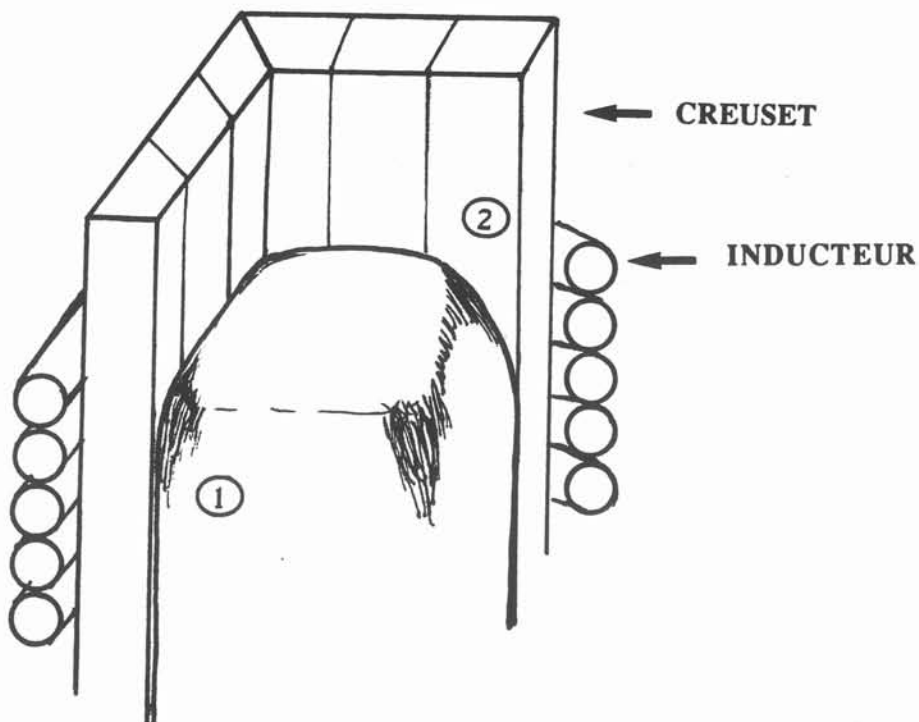


Fig. 4.15 : Effet de la dissymétrie de l'inducteur sur la forme du dôme en section carrée  
 1 : la forme optimale pour le tirage est obtenue  
 2 : le dôme conserve une forme arrondie et reste décollé du creuset



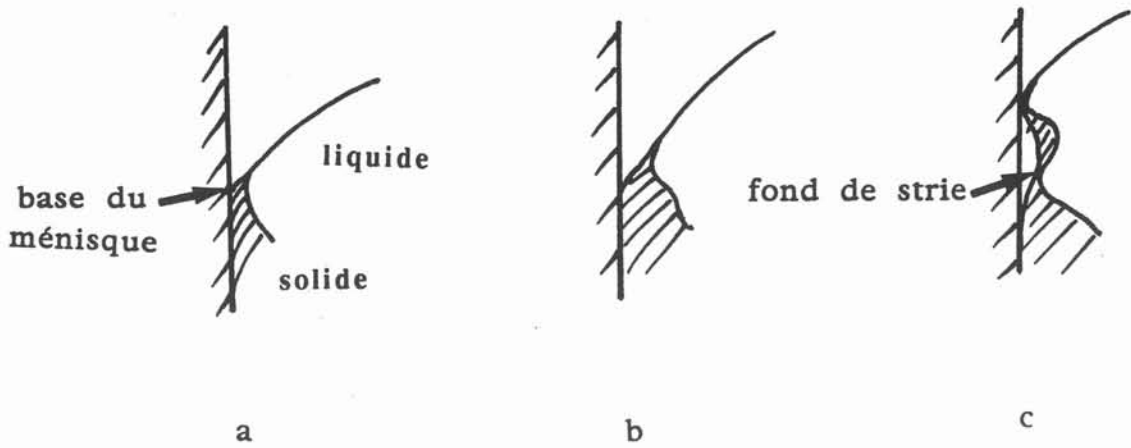


Fig. 4.16 : Formation des stries par déformation mécanique du ménisque solide

- a) base du ménisque solide
- b) propagation du ménisque par solidification de la surface du liquide
- c) fléchissement de la languette solide et création d'une nouvelle base de ménisque

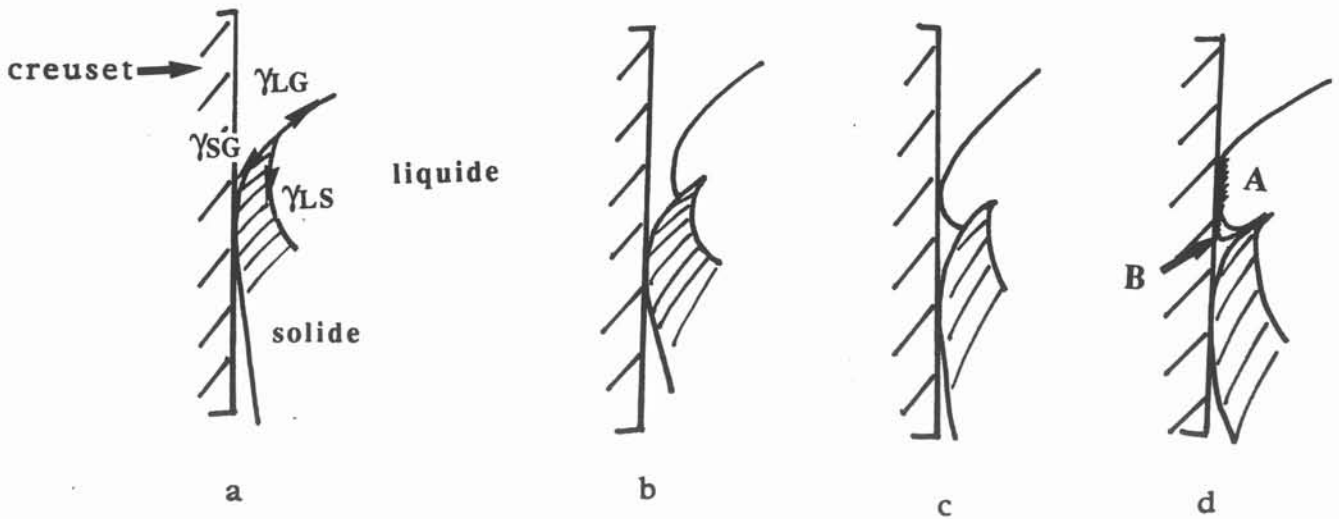


Fig. 4. 17: Formation du relief de surface par débordement du liquide sur le solide

- a) solidification du ménisque
- b) débordement du liquide
- c) arrêt du débordement
- d) formation du relief :
  - A : solidification de la vague
  - B : remplissage du fond de strie

vient se solidifier contre la paroi du moule et le nouveau ménisque solide se développe à partir de la paroi lorsque la vague reflue.

Si, lors du débordement de la vague, un point d'accrochage du matériau se développe en surface du creuset alors que le barreau continue d'être extrait, la strie se transforme en un déchirement visible. Ce déchirement correspond à l'ouverture de la strie par le tirage de la billette et est observé sur des billettes de titane.

## 4.3 Fissures

### 4.3.1 Classification des fissures observées

Les fissures observées sur les billettes peuvent être rangées en quatre classes :

#### 1) les fissures débouchant en surface de la billette.

Ces fissures sont révélées par ressuage avant découpe de la billette (Fig. 4.18). Elles s'étendent sur toute la partie de la billette correspondant au régime permanent. L'intersection de la surface de fissuration et de la surface de la billette est souvent une ligne parallèle à l'axe du tirage ou un arc de cercle orthogonal à l'axe de tirage. Ces fissures débouchantes traduisent vraisemblablement un état de contrainte intense près de la surface de la billette pendant le refroidissement consécutif à la solidification.

#### 2) Les fissures de fin de solidification.

Ces fissures débouchent en surface et s'étendent à partir du haut de la billette sur une longueur équivalente à un diamètre. La surface de fissure a une morphologie analogue à celle des fissures débouchantes du régime permanent. Leur origine est aisée à comprendre. Lors de la fin de l'élaboration, l'alimentation en copeaux est arrêtée pendant que le système de tirage continue à extraire le barreau de la zone d'action de l'inducteur. La poche de liquide s'épuise progressivement et la quantité de chaleur injectée par effet joule diminue. De ce fait, le refroidissement de la surface libre liquide/air peut être suffisant pour solidifier la surface du dôme en emprisonnant un cœur de liquide. En se solidifiant le cœur de la billette va se dilater et provoquer la fissuration de la croûte superficielle.

#### 3) les fissures internes.

Les fissures non débouchantes sont mises en évidence lors du découpage de la billette. Elles sont présentes dans la zone de cœur ou de transition de la billette. L'intersection de la surface de fissure avec des coupes transversales ou longitudinales montre que leur forme est celle d'une surface cylindrique dont les génératrices sont parallèles à l'axe de la billette (Fig. 4.19). Les bords de la surface de fissuration se développent en plans. L'absence de facettes montre que la surface de fissure ne suit pas les joints de grains : la fissure est de type intragranulaire. Cette observation laisse penser que la contrainte thermique à l'origine de la fissuration est considérable puisque le chemin de propagation énergétiquement le moins coûteux consisterait à suivre les joints de grains, zones où les liaisons du réseau sont perturbées.

#### 4) les fissures de découpage

Les fissures dites de découpage sont produites lors du sciage de la billette, lorsque les contraintes résiduelles dans le matériau sont importantes. De ce fait, les paramètres de découpe de la billette sont délicats à régler.

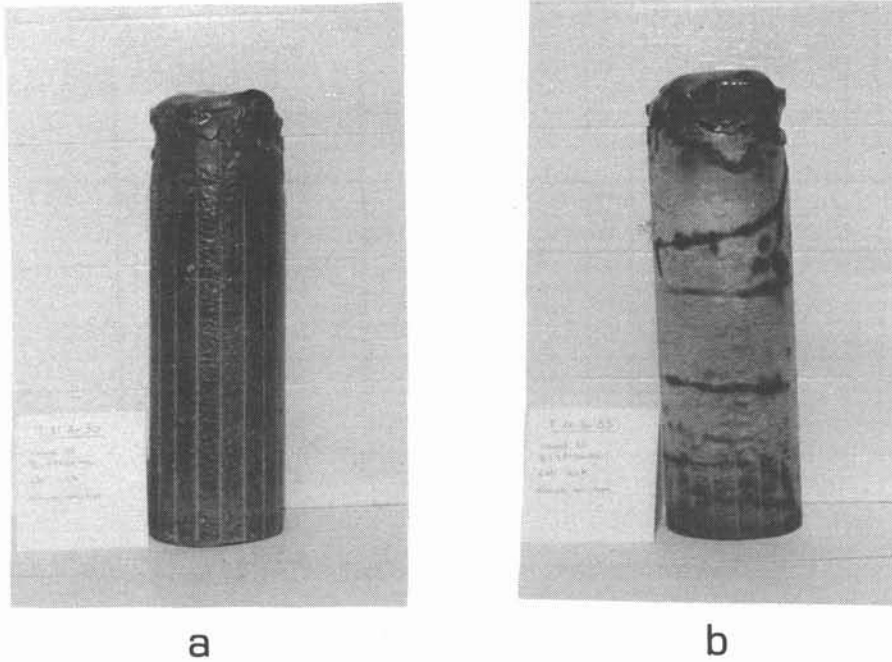


Fig. 4.18 : Fissures débouchantes révélées par ressuage  
 a) lingot avant ressuage  
 b) révélation des fissures par ressuage

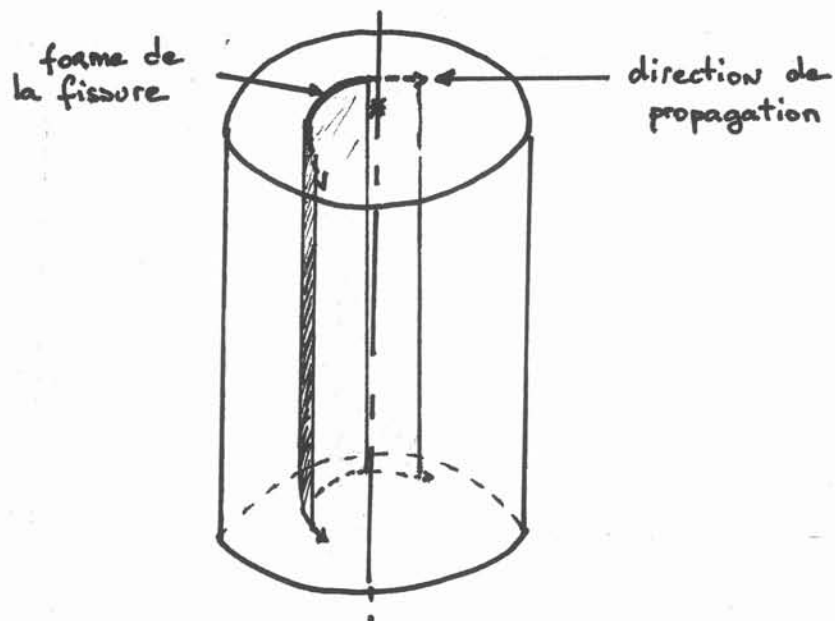


Fig. 4.19 : Géométrie courante d'une surface de fissure non débouchante dans une billette



Le tableau 4.3 récapitule l'état de fissuration des différentes billettes découpées.

billette	fissures débouchantes	fissures internes	fissures d'arrêt	fissures de découpe
CD17	OUI	OUI	NON	OUI
CD18	NON	OUI	OUI	OUI
CD20	NON	OUI	OUI	OUI
CD21	NON	NON	NON	OUI
CD24	NON	NON	NON	OUI
C3	NON	NON	NON	NON
C4	NON	OUI		OUI
B5	NON	OUI	NON	OUI
B9	NON	NON		NON

Tableau 4.3: Localisation des fissures dans les références découpés.  
les conditions d'élaboration sont rappelées dans les tableaux 3.1 et 3.2

#### 4.3.2 Importance du champ de température sur l'état de la billette

Le tableau 4.3 montre que l'état de la billette dépend beaucoup du champ de température à la sortie du creuset froid. En particulier la présence du manchon résistif s'avère bénéfique, la distribution de température dans le manchon joue un grand rôle :

- pour des températures en entrée de four manchon supérieures à 800°C, les fissures débouchantes sont supprimées.
- pour des températures en entrée de four de 900 à 1000°C, les fissures internes sont supprimées. Pourtant le niveau de contrainte reste élevé et des fissures sont générées dans les étapes de découpage.
- pour des températures en entrée de four de l'ordre de 1200°C ou supérieures, le risque d'écoulement du liquide hors du creuset est important et les essais arrivent rarement à terme.

Les mêmes constatations ont été effectuées sur les barreaux élaborés en creuset de section carrée (essais récapitulés dans le tableau 3.2).

L'optimisation de la position du creuset par rapport à l'inducteur a permis de rapprocher le front de solidification du bas du creuset. Dans les meilleurs cas, les fissures débouchantes détectées par ressuage ont été supprimées, mais des fissures internes apparaissent lors de la découpe des billettes.

#### 4.3.3 Notions sur la relation contrainte/dislocation

Le champ de température non uniforme de la billette est à l'origine de dilatations différentielles qui créent un champ de contraintes thermoélastiques. La contraction thermique ne crée pas de défauts si elle n'est pas contrainte ce qui explique qu'une interface convexe soit moins propice à la génération de dislocations.

De nombreux auteurs essaient de corréler ce champ de contrainte à la génération, à la multiplication et au glissement des dislocations. Mais une étude rigoureuse du problème demande d'associer les équations constitutives macroscopiques qui décrivent les contraintes plastiques aux modèles phénoménologiques microscopiques sur le comportement des dislocations. Plusieurs niveaux d'explication ont été développés :

Tsvinsky [26] a relié la densité de dislocation présente dans un monocristal czochralsky aux paramètres de croissance.

Il a développé un modèle monodimensionnel où seul le gradient axial est considéré en s'appuyant sur les travaux antérieurs de Billig [27] et Indenbom [28] .

La dilatation au changement de phase est négligée car en présence d'une surface libre, le changement de volume s'effectue au dépend de la surface libre.

La distorsion du réseau cristallin engendrée par le champ de température crée une contrainte dont le maximum est déterminé par

$$T_n = \frac{1}{2} G \alpha D \nabla T_n$$

G = module de cisaillement  
 $\alpha$  = coef de dilatation suivant r  
D = diamètre du cristal

La relation de Cahn explicite la densité de dislocations dans un plan contraint plastiquement

$$N = \frac{\alpha}{b} \nabla T$$

$\alpha$  = coefficient de dilatation linéaire  
b = vecteur de burgers

La vérification de ce modèle à la croissance du silicium est réalisée à partir de valeurs expérimentales (Osovsky, Neimark...) donnant

- les densités de dislocations en fonction des gradients
- la contrainte critique au delà de laquelle les dislocations se multiplient (CRSS)

Son application à notre cas donne :

$$\text{si } N = 10^4 \text{ cm}^{-2} \quad \text{alors } G_{\text{axial max}} = 118^\circ\text{C/cm}$$

la gamme des gradients explorés en creuset froid correspond à ces valeurs.

Jordan et al [25] considèrent également que les dislocations se multiplient si la contrainte thermoélastique excède le seuil au delà duquel les dislocations glissent dans leur plan de glissement privilégié.

Duzeaux [21] utilise les critères classiques (Tresca) pour déterminer les contraintes critiques de déformation plastique à partir du calcul numérique du champ de température.

Maroudas et Brown [23] font partie des équipes qui, plus récemment, ont utilisé le modèle de Haasen pour relier la déformation plastique aux dislocations. Ce modèle décrit le mouvement et la multiplication des dislocations, en présence d'un champ de contrainte, dans une fine couche proche de l'interface liquide/solide. La génération et l'interaction des dislocations contribuent à créer une contrainte équilibrant la contrainte thermoélastique. Les expériences sur la technique LEC et les calculs de Völkl et Müller utilisant ce modèle font apparaître une bonne corrélation.

#### 4.3.4 De la dislocation à la rupture

Dans un matériau polycristallin, l'amorçage du glissement se fait préférentiellement dans les grains dont les systèmes de glissement ont un facteur de Schmidt voisin de 0,5 puis le glissement apparaît dans les autres grains. Une déformation plastique macroscopique est obtenue par l'activation du glissement d'un ensemble contigu de grain. La contrainte de seuil des polycristaux est donc nécessairement supérieure à celle des monocristaux.

Pour les polycristaux, la limite élastique moyenne tenant compte de l'orientation aléatoire des grains est 1,5 fois plus grande que celle du monocristal.

A haute température et sous contrainte, deux mécanismes antagonistes sont en compétition : le durcissement du matériau par multiplication des dislocations et son "affaiblissement" par disparition des défauts (réarrangement du réseau cristallin).

Le glissement des dislocations est arrêté par des obstacles (joints de grain) et des empilements se forment en amont du défaut. Un empilement important peut provoquer la décohésion du matériau au niveau de la tête de l'empilement (trou physique), et constituer une amorce de fissure.

Ces amorces ou microfissures conduisent à la rupture lorsqu'on applique une contrainte suffisante.

#### 4.4 Caractérisation du matériau creuset froid

Les mesures de caractérisation viennent de commencer. Aussi les résultats présentés dans cette partie ne sont-ils donnés qu'à titre indicatif. Une caractérisation systématique des billettes donnera des résultats plus fiables.

##### 4.4.1 Mesure de longueur de diffusion

###### 4.4.1.1 Principe

A ce stade de la mise au point du procédé, la fabrication de cellules solaires, même de dimensions non normalisées, est très difficile. En effet, les billettes élaborées ont un état de contrainte résiduelle important et le découpage de plaquettes d'épaisseur voisine de 300  $\mu\text{m}$  sans fracture est rare. Aussi le rendement photovoltaïque n'a pu être mesuré qu'une seule fois sur une cellule de dimensions réduites.

La mesure de la longueur de diffusion des porteurs minoritaires sur des blocs a été mise au point sur le polix (brevet Photowatt). Photowatt tente actuellement de corréler cette mesure sur polix et le futur rendement de la cellule.

Le principe de la mesure de longueur de diffusion sur massif consiste à réaliser une diode Schottky avec un électrolyte. La jonction formée est polarisée et la caractéristique  $i = f(v)$  de la diode est tracée à l'obscurité et sous l'éclairement d'un faisceau monochromatique de longueur d'onde fixée.

Le courant de court circuit  $I_{ph}$  généré par l'éclairement est la différence de courant inverse entre la caractéristique sans et avec éclairement. Ce courant est fonction de la réflectivité de la surface, de la longueur de diffusion, de la longueur d'onde du faisceau incident et de la surface de jonction. Aussi quelques précautions sont nécessaires pour obtenir une mesure proportionnelle à la longueur de diffusion.

- une attaque chimique est réalisée avant la mesure pour obtenir une réflectivité de la surface identique sur tous les échantillons.
- le contact arrière ne doit pas être redresseur. Un contact de qualité ohmique est déposé à froid sur la face arrière de telle sorte que la résistance induite soit très faible
- la surface de la diode est constante.

###### 4.4.1.2 Mesures

Deux types de mesures ont été réalisées :

- *une mesure globale sur l'installation Photowatt.* Le diamètre de la diode photoélectrochimique est de 70 mm. De ce fait seules les billettes de diamètre 102 mm peuvent être testées. Les essais ont été réalisés par Monsieur Le Quang Nam.

Des tests préliminaires montrent que le signal est indépendant de l'épaisseur du bloc de silicium. Deux échantillons ont été testés :

- l'échantillon CDF20 non fissuré a donné un signal satisfaisant. L'absence de référence quantitative ne permet pas d'obtenir une valeur de longueur de diffusion mais Monsieur Le Quang Nam estime la longueur de diffusion de l'ordre de 60  $\mu\text{m}$  pour cet échantillon. L'inclinaison des caractéristiques en inverse est caractéristique de la médiocre qualité de l'échantillon : microfissures, défauts.
- l'échantillon CDF21 fissuré donne une caractéristique fuyante inexploitable. La surface de jonction est alors modifiée par la pénétration de l'électrolytique dans la fissure.

- Une mesure locale a été réalisée par monsieur Lincot à l'ENSCP sur l'échantillon C3  
Ce dispositif permet de balayer l'échantillon pour obtenir une cartographie de la qualité du matériau.

Le courant d'une diode sous obscurité s'écrit [Laugier]

$$I_{\text{obs}} = I_0 (e^{qV/mkT} - 1)$$

avec  $n$ , facteur d'idéalité de la diode

Le courant photoélectrique à une longueur d'onde donnée s'exprime par :

$$I_{\text{ph}} = q \Phi_A QE$$

avec  $\Phi_A$  : puissance du flux de lumière, fonction normalisée en air masse 1

$QE$  : probabilité pour qu'un photon d'énergie  $h\nu$  génère un électron

$$QE_{\text{idéal}} = 1 - \frac{e^{-\alpha(l)W}}{1 + \alpha(\lambda)L_D}$$

avec  $\alpha$  coefficient d'absorption fonction de la longueur d'onde

$W$  épaisseur de la zone de charge d'espace. Elle est fonction du dopage et du potentiel  $W \approx 1 \mu\text{m}$

$L_D$  longueur de diffusion des porteurs minoritaires

Si l'on tient compte de la réflectivité de la surface du matériau, il vient

$$QE_{\lambda\text{rel}} = (1 - R_\lambda) QE_{\text{idéal}}$$

$$\text{d'où } I_{\text{ph}\lambda} = q \Phi_A (1 - R_\lambda) \left(1 - \frac{e^{-\alpha(l)W}}{1 + \alpha(\lambda)L_D}\right)$$

Aux faibles longueurs d'onde ( $\alpha$  grand), la paire électron trou est générée proche de la zone de charge d'espace.

La collection des électrons est systématique et  $QE$  est indépendant du phénomène de diffusion.

Aux grandes longueurs d'onde ( $\alpha$  faible), la paire électron trou est générée en volume et la collecte dépend de la diffusion des porteurs minoritaire dans le volume. Si la durée de vie des porteurs minoritaires est faible ( $L_D$  petit), les porteurs ne sont pas collectés.

$$W \ll 1 \text{ et } \alpha_\lambda L_D \ll 1 \quad \text{si} \quad \lambda \text{ est assez grand}$$

$$\text{donc } I_{\text{ph}\lambda} = q \Phi_A (1 - R_\lambda) \alpha_\lambda L_D$$

Si on dispose d'un échantillon de référence de longueur de diffusion connue alors :

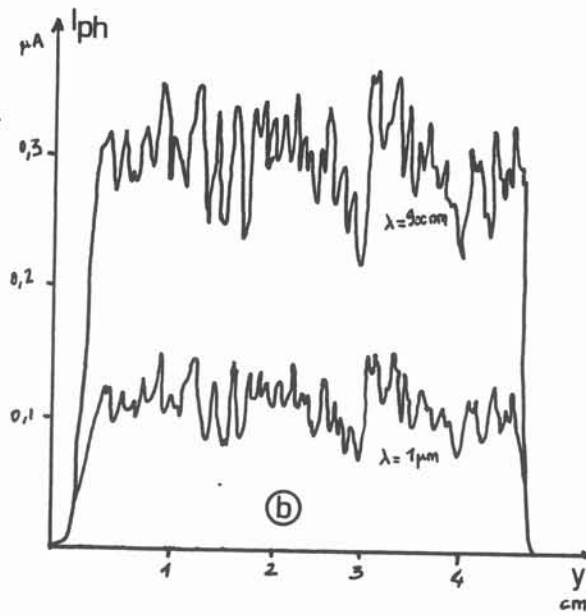
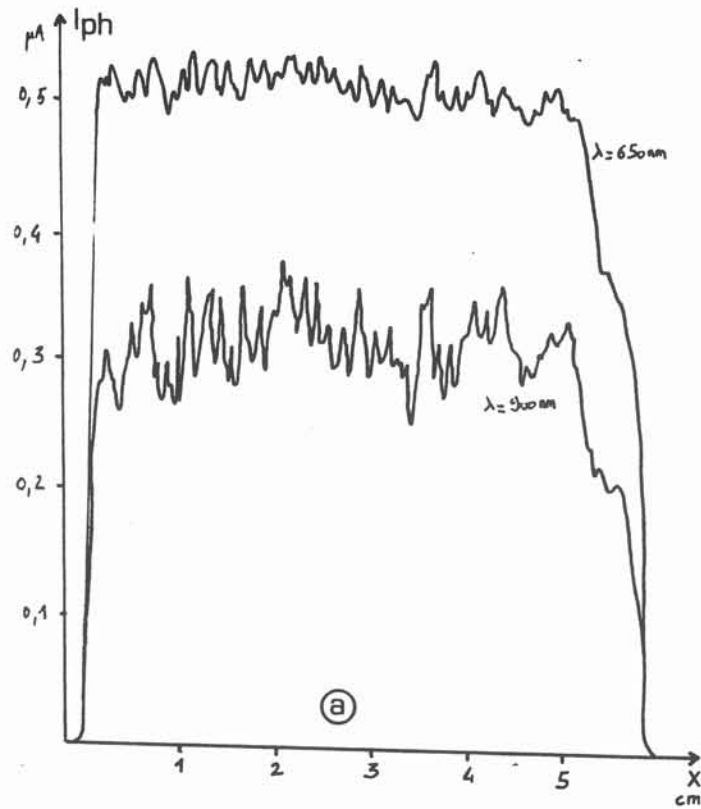


Fig. 4.10 : Mesure du courant photogénéré en fonction de la longueur sur une section transversale de l'échantillon C3.

- a) balayage horizontal
- b) balayage vertical

$$L_D = \frac{I_{ph\lambda}}{I_{ph\lambda_{ref}}} L_{D_{ref}}$$

Le tableau 4.3 montre les résultats obtenus à partir des mesures en traversée de l'échantillon (Fig. 4.19). Les longueurs de diffusion estimées sont le témoin d'une qualité acceptable proche du polix. Il est surtout intéressant de noter que les courbes sont très régulières, les décrochements (tous les 2 mm environ) correspondent au passage des joints de grains où se concentrent les impuretés. Cette tendance, qui devra être confirmée par des mesures plus systématiques, montre l'homogénéité de la qualité du matériau. Les mêmes mesures effectuées sur du polix montrent quant à elles une grande disparité de qualité d'un grain à un autre.

$\lambda$ en nm	C 3	
	$I_{ph}$ $\mu A$	QE
650	0,5	70%
900	0,3	30%
1000	0,12	11%

Tableau 4. 4: Mesure des rendements quantiques QE sur l'échantillon de section carrée C 3.

#### 4.4.1.3 Autre mesures de longueur de diffusion

Des mesures de longueur de diffusion réalisées au laboratoire de photoélectricité des semiconducteurs de l'université Aix - Marseille III sur une diode de type Schottky n'ont pas donnés de résultats supérieurs à 10  $\mu m$ . Le même procédé appliqué au matériau creuset froid d'Osaka Titanium donne des longueurs de diffusion de l'ordre de 50 à 80  $\mu m$  et de 60 à 90  $\mu m$  pour le Polix.

#### 4.4.1.4 conclusion

Les mesures de longueur de diffusion offrent un grand intérêt car elles sont le témoin de la qualité intrinsèque du matériau.

Les rendements de conversion photovoltaïque sont difficiles à relier aux mesures de longueur de diffusion car les étapes du procédé de fabrication de la photopile comme le gettering modifient les qualités primaires du matériau. C'est pourquoi les mesures de longueur de diffusion, beaucoup plus que les mesures de rendement de conversion photovoltaïque, seront un repère de l'évolution de la qualité du matériau creuset froid.

En ce sens, les mesures locales sont primordiales pour tenter de relier la microstructure à la qualité photovoltaïque. Les mesures globales, effectuées sur des surfaces moindres, permettront une première estimation rapide de la qualité des produits, si une référence est déterminée.

#### 4.4.2 Premières analyses de concentration en impuretés

Ces analyses ont été effectuées au laboratoire de photoélectricité des semiconducteurs de l'université Aix - Marseille III. Les résultats nous ont été par communication orale par monsieur Martinuzzi.

Les échantillons ont été attaqués au réactif CP4 puis Sirtl. Les figures d'attaque sont très profondément marquées. Aucune différence n'est relevée entre le matériau de section circulaire et le matériau de section carrée. La densité de dislocation est très forte dans les grains. Dans une cellule solaire, ces dislocations agissent par l'intermédiaire des impuretés qu'elles piègent.



#### 4.4.2.1 Concentration en oxygène

Des mesures de concentration en oxygène et en carbone sont réalisées par absorption infra rouge. Les défauts diffusent la lumière et créent sur le spectre un fond continu qui rend difficile la détection des pics correspondant aux impuretés. Les résultats obtenus sur le matériau élaboré en creuset froid donnent :

matériau polix	$5 \cdot 10^{17}$ atomes/cm <sup>3</sup>
matériau creuset froid	2,3 à $5 \cdot 10^{17}$ atomes/cm <sup>3</sup>

Remarque : le matériau polix est utilisé comme charge de départ pour l'élaboration des billettes en creuset froid.

#### 4.4.2.2 Concentration en carbone

Les concentrations en carbone dans le matériau creuset froid sont identiques à celles du polix.

#### 4.4.2.3 Concentration en cuivre

La mesure de concentration en cuivre dans les échantillons est réalisée par spectroscopie d'absorption atomique. Le cuivre est une impureté nocive mais qui peut interagir avec d'autres défauts.

Les mesures effectuées donnent les résultats suivants :

matériau polix		<0,6 ppm
matériau creuset froid carré :	en périphérie :	0,88 ppm
	au centre :	0,67 ppm
matériau creuset froid circulaire :	en périphérie :	0,61 ppm
	au centre :	0,48 ppm

#### 4.4.2.4 Conclusion

Ces analyses permettent de dégager plusieurs observations .

- Le procédé creuset froid n'introduit pas d'oxygène et peut même en retirer. Le coefficient de ségrégation étant proche de 1, Il est probable que la purification a lieu par évaporation à partir du bain. L'oxygène se retrouve sous la forme d'un oxyde déposé en poudre sur les parois refroidies de l'enceinte.

- La pollution par le cuivre est notable sur les bords des échantillons. Le cuivre diffusant rapidement dans le silicium, cette pollution ne reste pas localisée en surface. La concentration relevée au centre est d'autant plus forte que l'échantillon est petit.

- La présence de nombreuses dislocations nuit à la qualité du matériau. Le contrôle du champ de température n'est pas encore suffisant pour obtenir une qualité donnant des résultats photovoltaïques acceptables.

### 4.5 Conclusion

Les billettes élaborées ont une structure de grains colonnaire. Les grains sont classés en trois zones en fonction de leur taille et de leur orientation, suivent les lignes de flux. La taille moyenne de grain est de l'ordre de quelques millimètres, taille théoriquement suffisante pour réaliser des photopiles. Le front de solidification est pratiquement hémisphérique.

L'observation des macrographies et les micrographies nous ont conduit à envisager un mécanisme de sélection des grains en cours de croissance. Ce mécanisme repose sur les particularités de la croissance dendritique. Dans un corps pur, l'arborescence dendritique est obtenue par une croissance par macle.

L'état de surface des billettes est rugueux, mais les perturbations de la surface sont peu profondes. L'influence du volume du bain sur l'état de surface a été mis en évidence lors de nos essais.

La caractérisation chimique et électrique n'a pu être réalisée au cours de ce travail. Les premiers résultats obtenus montrent pourtant que le matériau comporte de nombreuses dislocations. Cet état explique peut être la contradiction observée sur les mesures de longueur de diffusion. L'analyse chimique réalisée sur deux échantillons est intéressante. Le procédé semble apporter une pollution notable en cuivre mais également une purification en oxygène. Ces résultats restent à confirmer par une étude approfondie.





## **Chapitre 5**

### **Modélisation des phénomènes couplés intervenant dans le procédé**



## 5.1. Modélisation de l'élaboration en creuset froid

### 5.1.1. interaction des phénomènes physiques

Les phénomènes qui interviennent dans le cycle d'élaboration d'un lingot en creuset froid sont, si l'on néglige l'évolution des concentrations :

- l'électromagnétisme à l'origine des densités de puissance Joule et du brassage,
- la thermique avec changement de phase liquide solide dans le barreau,
- l'hydrodynamique qui régit les écoulements turbulents dans le bain liquide.

Ces phénomènes sont liés par des couplages de diverses natures :

- des couplages de termes : les termes d'une équation sont directement issus de la résolution d'une autre équation.
- des couplages de propriétés : les propriétés physiques intervenant dans les équations peuvent dépendre de variables d'état.
- des couplages déterminant des surfaces libres. Le bain de métal liquide est délimité par deux frontières libres : le dôme (interface liquide/argon) et le front de solidification (interface liquide/solide).

La forme du dôme résulte de l'équilibre entre les pressions dues aux forces de Laplace (phénomène électromagnétique), la pesanteur, la tension superficielle (qui peut dépendre de la température) et la pression hydrostatique (phénomène hydrodynamique). Cette frontière libre délimite la géométrie du lingot. La modification de sa forme entraîne une modification de la répartition de l'induction et du champ de vitesse dans le bain.

La forme du front de solidification est déterminée par l'équation de conservation de l'énergie. Elle dépend de la puissance Joule dégagée dans l'épaisseur de peau du matériau (phénomène électromagnétique), de l'effet convectif du brassage (phénomène hydrodynamique) et au tirage.

Le couplage thermique vers magnétique est issu de la variation de la conductivité électrique avec la température qui modifie la diffusion de l'induction.

Dans ces conditions, la modélisation d'un phénomène isolé ne peut permettre d'appréhender la réalité physique. La simulation numérique doit aussi utiliser des résolutions couplées et ceci suivant trois niveaux :

- le couplage fort consiste à résoudre simultanément plusieurs phénomènes,
- le couplage faible consiste à utiliser un algorithme de résolution itérative dont la boucle de calcul réalise une résolution séquentielle de plusieurs phénomènes,
- la résolution séquentielle unique de plusieurs phénomènes.

### 5.1.2. modélisation du creuset froid à Madylam

Le travail de modélisation entrepris à Madylam a comme but de fournir aux chercheurs des outils scientifiques de réflexion sur les phénomènes interagissant dans les systèmes à induction. Les premières études se sont portées sur la modélisation électrique puis électromagnétique de l'élaboration par induction [17]. Il était alors important de prendre en compte l'ensemble des paramètres électriques et la répartition des grandeurs électromagnétiques qui en découle pour guider la conception d'installations prototypes de production industrielle.

La connaissance, aussi parfaite soit-elle, des grandeurs électromagnétiques n'est malheureusement pas suffisante à la conduite du procédé. En effet, les conditions d'élaboration métallurgique sont également conditionnées par les paramètres thermiques et hydrodynamiques. La deuxième génération de logiciels modélisant les procédés d'élaboration par induction sont des modèles utilisant le résultat des calculs électromagnétiques pour des calculs thermiques et/ou hydrodynamique.

Ces logiciels de thermohydrodynamique privilégient chacun un aspect différent du problème

couplé (turbulence, tridimensionnalité, solidification) au détriment des autres. Ces logiciels sont utilisés à la suite du logiciel électromagnétique dans une résolution séquentielle. Ils sont conçus pour l'étude de matériaux conducteurs en fine peau électromagnétique et pour des résistivités variant peu avec la température. Ils ne sont en rien adaptés à des matériaux grande peau comme les verres ou à propriétés à forte variation comme les semiconducteurs.

### 5.1.3. choix des méthodes numériques

Le problème de magnétohydrodynamique que nous étudions est complexe. Traité dans son ensemble, il consiste à déterminer 9 inconnues ( $A_r, A_\theta, A_z, V; U_x, U_y, U_z, P; T$  ou  $H$ ) dont quatre sont des complexes. Une telle résolution ne peut être menée qu'en optimisant la place mémoire nécessaire afin d'utiliser au mieux les capacités des machines. A cette fin, le laboratoire Madylam s'est engagé depuis une dizaine d'années [18] dans la modélisation multiméthodes. Il s'agit d'employer la méthode la mieux adaptée au phénomène à étudier. Dans le cas de problèmes multiphénomènes, un compromis est nécessaire entre l'efficacité des diverses méthodes et l'imprécision due aux interpolations entre les maillages.

Dans notre cas, le phénomène électromagnétique doit être étudié sur un domaine infini et en trois dimensions. Deux méthodes numériques peuvent être utilisées : la méthode des éléments finis (MEF) et la méthode intégrale (MI).\*

La méthode des éléments finis oblige à mailler tout le domaine d'étude, air compris, pour exprimer correctement les conditions aux limites. Elle conduit à des maillages lourds mais à des matrices creuses.

La méthode intégrale retenue par A Gagnoud dans le logiciel Ophélie offre l'avantage de ne nécessiter que la modélisation des éléments électriquement actifs. Elle tient compte de la périodicité en  $\theta$  du creuset. Le nombre d'inconnues est ramené à deux nombres complexes  $J$  et  $V$ . Lorsque la diffusion de l'induction dans un élément est faible, le maillage est réduit à la surface et les grandeurs en volume sont calculées suivant les lois de décroissance exponentielle classiques. Cette méthode réduit considérablement le nombre de mailles et d'inconnues par maille, mais les matrices sont pleines : la résolution est longue.

Les phénomènes thermique et hydrodynamique peuvent être résolus par éléments finis ou par volumes finis.

La méthode des volumes finis, reconnue efficace pour la mécanique des fluides est mal adaptée aux problèmes de géométrie complexe, typiquement le dôme liquide en creuset froid, car elle utilise un maillage curviligne orthogonal.

La méthode des éléments finis permet de mailler facilement les géométries complexes. Elle pose des problèmes de convergence pour les problèmes de mécanique des fluides qui sont fortement non linéaires.

### 5.1.4. Organisation du logiciel MALICE (Modélisation des Aspects Liés à l'Induction dans les Creusets froids d'Elaboration)

Nous avons choisi d'utiliser comme base de notre réflexion le logiciel Nephthys [19]. Ce logiciel, développé par B Maestrali au cours de sa thèse, modélise la magétohydrodynamique en creuset froid pour des alliages bons conducteurs de l'électricité.

Les atouts de ce logiciel de résolution séquentielle magnétique-thermique sont divers :

- il utilise un logiciel électromagnétique (Socrate) largement validé et qui permet dans sa

---

\* la méthode des éléments finis et la méthode intégrale seront désormais représentées par les symboles MEF et MI

dernière version (Ophélie) de calculer les grandeurs électromagnétiques en grande ou/et en fine peau avec une conductivité variable en tout point du maillage.

- la résolution thermohydrodynamique utilise un générateur de résolution d'équations aux dérivées partielles par éléments finis (Flux-Expert, logiciel commercialisé). Cette caractéristique est particulièrement importante car elle nous permet de créer un logiciel multiéquations évolutif.

- la résolution thermohydrodynamique est de type "un domaine". Le phénomène hydraulique est calculé dans tout le lingot, la viscosité devenant infinie lorsque le matériau devient solide. Ceci permet d'obtenir le front de solidification comme un résultat du calcul, or c'est le principal paramètre conditionnant l'orientation de la structure cristalline.

Les particularités de notre problème sont nombreuses.

- puisque la conductibilité électrique varie fortement avec la température, nous devons réaliser un couplage des problèmes électromagnétique et thermohydrodynamique. Ceci veut dire que le calcul électromagnétique ne devra plus être une donnée initiale du problème mais que ce calcul sera refait à chaque itération en fonction de la température calculée.

- le cas des matériaux à grande épaisseur de peau électromagnétique devra pouvoir être pris en compte (cas des oxydes et des verres) ainsi que celui des charges mixtes grande et fine peau (cas des semiconducteurs) (version Ophélie du logiciel électromagnétique).

- les propriétés physiques des matériaux peu conducteurs varient souvent fortement avec la température. Cette particularité associée aux conditions aux limites de tirage et d'alimentation conduit à résoudre un système d'équations éléments finis non linéaire.

- le dégagement de chaleur latente se produit pour les alliages sur un intervalle de températures. Cela a permis à B.Maestrali de modéliser la chaleur latente par une capacité calorifique équivalente. Cette méthode n'est plus valable pour les corps purs ou les eutectiques qui passent de l'état liquide à l'état solide sur une isotherme.

- des problèmes plus complexes peuvent être envisagés (dissolution, ségrégation). Ils nécessitent l'addition d'équations de conservation supplémentaires (concentration par exemple).

Ces considérations nous ont conduit à repenser l'organisation globale du problème et à structurer un nouveau logiciel permettant de résoudre la plupart des systèmes d'équations aux dérivées partielles associé par un couplage étroit aux équations de l'électromagnétisme. Le logiciel Malice est capable de s'adapter aux évolutions futures des deux logiciels dont il est issu. Il conserve la structure de bibliothèque de formulations éléments finis. Les interpolations entre maillage sont réalisés de manière générale pour les fines et grandes peau électromagnétique.

#### 5.1.4.1 Modèle électromagnétique

##### 5.1.4.1.1 modèle physique

les phénomènes électromagnétiques sont décrits par les équations de Maxwell :

$$\text{rot } \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (5.01)$$

$$\text{rot } \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (5.02)$$

$$\text{div } \vec{B} = 0 \quad (5.03)$$

$$\text{div } \vec{D} = q \quad (5.04)$$

et par la loi d'Ohm généralisée  $\vec{J} = \sigma (\vec{E} + \vec{U} \wedge \vec{B})$  (5.05)

dans l'approximation de l'électromagnétisme, on néglige les courants de déplacement  $\partial \vec{D} / \partial t$

L'équation 5.03 implique que l'induction dérive d'un potentiel vecteur :

$$\vec{B} = \text{rot } \vec{A} \quad (5.06)$$

Ainsi le potentiel est défini au gradient près et nécessite le choix d'une jauge.

L'équation 5.02 est la forme généralisée de la relation de Lentz et elle permet d'associer le champ électrique à un potentiel scalaire électrique  $V$  :

$$\vec{E} = - \text{grad} V - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad (5.07)$$

L'utilisation des potentiels dans la loi d'Ohm donne

$$\vec{J} = \sigma \left( \text{grad} V + \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} + \vec{U} \wedge \vec{B} \right) \quad (5.08)$$

L'équation d'Ampère 5.01 implique la conservation des charges électriques exprimée par :

$$\text{div } \vec{J} = 0 \quad (5.09)$$

Dans le cas de matériaux isotropes non saturables ( $\mu = \text{cte}$ ), il est possible de ramener le système formé des équations 5.01, 5.02, 5.05 à une équation unique régissant l'influence du champ de vitesses sur l'induction magnétique :

$$\mu \sigma \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \mu \sigma \text{rot} \left( \vec{U} \wedge \vec{B} \right) + \Delta \vec{B} \quad (5.10)$$

$\uparrow$   
terme de  
convection

$\uparrow$   
terme de  
diffusion

L'influence de chacun des termes est mise en évidence par l'adimensionnalisation de l'équation :

$$R\omega \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \Delta \vec{B} + R_m \text{rot} \left( \vec{U} \wedge \vec{B} \right) \quad (5.11)$$

avec  $R_m = \mu \sigma UL$  nombre de Reynolds magnétique  
 $R\omega = \mu \sigma \omega L^2$  paramètre d'écran

$R_m$  représente l'importance de la convection de l'induction par le champ de vitesse par rapport à la diffusion de l'induction.  $R\omega$  représente les effets de non stationnarité de l'induction par rapport à l'effet de diffusion de l'induction.

Dans les cas usuels d'utilisation du creuset froid, le champ magnétique est lié à une pulsation imposée  $\omega$  et le nombre de Reynolds magnétique est faible devant l'unité. L'équation de l'induction devient alors une équation de diffusion pure :

$$R\omega \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \Delta \vec{B} \quad (5.12)$$

### 5.1.4.1.2 modèle numérique

#### a) les équations

Les variables d'état du problème électromagnétique sont le potentiel vecteur et le potentiel scalaire électrique. Les équations du modèle numérique sont :

$$\text{div } \vec{J} = 0 \quad \text{loi des noeuds} \quad (5.13)$$

$$\oint \vec{\text{grad}} V \, dl = 0 \quad \text{loi des mailles} \quad (5.14)$$

$$\vec{J} = -\sigma \left( \vec{\text{grad}} V + \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \quad \text{loi d'Ohm} \quad (5.15)$$

La relation de Biot et Savart permet d'exprimer le potentiel vecteur créé en un point M par la répartition des courants dans l'ensemble des conducteurs :

$$\vec{A}(M) = \frac{\mu_0}{4\pi} \iiint_V \frac{\vec{J}}{r} \, dv \quad (5.16)$$

où  $\vec{J}$  est la densité de courant dans un élément de volume  $dv$  situé à une distance  $r$  de M.

L'inducteur est parcouru par un courant alternatif sinusoïdal de pulsation  $\omega$ . Les courants induits, le champ magnétique, le potentiel vecteur et l'induction (dans le cas des matériaux linéaires) sont également sinusoïdaux et peuvent s'exprimer sous la forme complexe :

$$\vec{A} = \vec{A}_0 e^{i\omega t} \quad \text{avec } \vec{A}_0 \text{ nombre complexe} \quad (5.17)$$

En conséquence, la dérivée temporelle du potentiel vecteur sera exprimée en notation complexe : \*

$$\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} = i\omega \vec{A} \quad (5.18)$$

Ainsi le problème consiste à déterminer quatre inconnues complexes : les trois composantes de  $\vec{J}$  et le potentiel électrique  $V$ .

#### b) discrétisation et résolution

Seuls les éléments électriquement actifs sont discrétisés. L'inducteur est supposé axisymétrique, ce qui revient à négliger son hélicité. Dans cette hypothèse, les induits à

---

\* A partir de l'équation 5.21, les grandeurs électromagnétiques sont considérées comme des complexes.



symétrie de révolution peuvent être considérés comme axisymétriques et les chemins de courant sont imposés suivant des spires.

Lorsque la profondeur de pénétration du champ magnétique est faible (fine épaisseur de peau), les densités de courant décroissent exponentiellement dans la charge à partir de la surface. Dans ce cas, seule la surface des éléments est discrétisée (Fig. 5.01.a). La trace de ces spires élémentaires dans le plan d'étude  $r, z$  constitue un ensemble de segments élémentaires.

Lorsque la profondeur de pénétration du champ magnétique est comparable à la dimension de la charge (grande épaisseur de peau) la totalité du volume est discrétisée (Fig. 5.01.b). La trace de ces spires élémentaires dans le plan d'étude  $r, z$  constitue un ensemble de surfaces élémentaires.

La densité de courant est considérée constante sur la maille. Elle est calculée au centre par une méthode de collocation.

Le creuset est de géométrie tridimensionnelle, périodique dans la direction azimutale. Ceci permet de ne discrétiser qu'un seul secteur. Les creusets sont construits en matériaux conducteurs de l'électricité et de la chaleur (cuivre). Aux fréquences habituelles de travail (10–50 kHz), la diffusion de l'induction magnétique est faible devant la taille des secteurs.

Un secteur est discrétisé en éléments de courant de direction imposée, composés d'arcs de spires sur les surfaces internes et externes, de segments sur les surfaces latérales et les arêtes (Fig. 5.02). Ces éléments de courant forment un réseau électrique. Sur chaque maille, les inconnues sont au nombre de deux :  $J$  et  $V$ .

La loi d'Ohm s'écrit pour chaque courant élémentaire  $m$  :

$$J_m = -\sigma \frac{\Delta U_m}{\Delta l_m} - i\sigma\omega \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_k J_k \iiint_V \frac{1}{r} dv \quad (5.19)$$

avec :  $\Delta l_m$  = longueur du courant élémentaire  $i$

$\Delta U_m$  = différence de potentiel aux bornes de l'élément de courant.

Les lois des noeuds et les lois des mailles donnent pour chaque élément les conditions suivantes :

- pour les charges : les spires élémentaires sont en court circuit  $\Delta U_m = 0$
- pour l'inducteur :
  - . la somme des courants élémentaires est conservée d'une spire à l'autre et est égale au courant inducteur
  - . les différences de potentiel sont identiques aux bornes de toutes les mailles d'une même spire
  - . la somme des différences de potentiel des spires est égale à la tension imposée aux bornes de l'inducteur
- pour le creuset : la loi des mailles et la loi des noeuds sont appliquées au réseau de courants élémentaires.

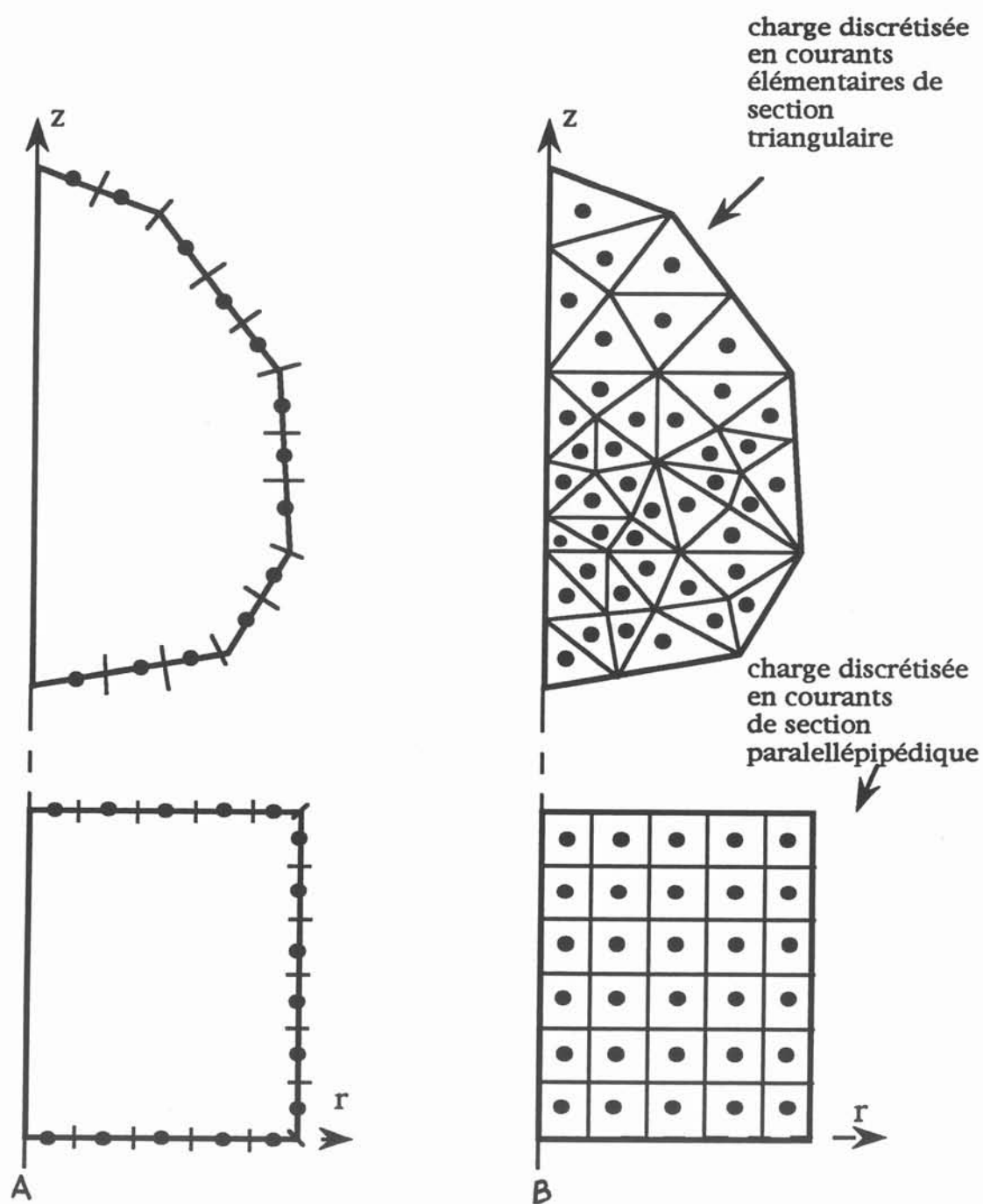


Fig. 5.01 : discrétisation des charges axisymétriques en spires élémentaires de courant  
 A : charges fine peau  
 B : charges grande peau

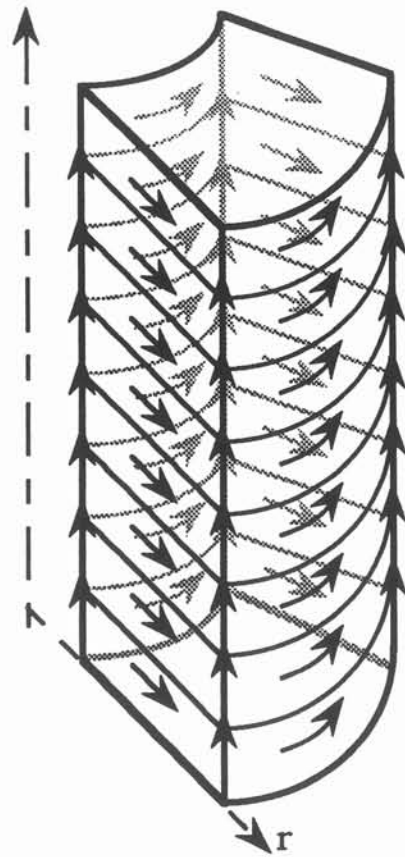


Fig. 5.02 : Trace des courants élémentaires à la surface d'un secteur de creuset

On obtient un système d'équations linéaires. La matrice du système est pleine. La résolution permet d'accéder :

- à la répartition des densité de courant dans tous les éléments de l'installation : l'inducteur, le creuset et les charges
- aux différences de potentiel aux bornes des éléments de courant dans l'inducteur et le creuset.

Une difficulté de la mise en équation réside dans le calcul d'intégrales qui deviennent singulières lorsque  $i = k$ . ( $\iiint_V \frac{1}{r} dv$ , terme de l'équation 5.19).

A partir des densités de courant et du potentiel électrique, toutes les grandeurs électromagnétiques et les paramètres électriques du circuit équivalent peuvent être calculées.

### *c) détermination des termes de couplage*

Les grandeurs sources du couplage avec la thermohydraulique sont les densités de puissance Joule et de forces de Laplace-Lorentz.

La densité de puissance thermique est dissipée par effet Joule dans le matériau. Elle s'exprime :

$$dP_j = \frac{JJ^*}{2\sigma} \quad (5.20)$$

Dans le matériau soumis à un champ magnétique alternatif, les courants induits et l'induction magnétique ont un caractère alternatif. La force de Laplace-Lorentz est également alternative et se compose d'une partie moyenne et d'une partie fluctuante à une pulsation  $2\omega$ .

Dans le cas du creuset froid, les fréquences typiques sont suffisamment élevées pour négliger la partie pulsante des forces électromagnétiques.

La partie moyenne des forces de Laplace-Lorentz s'écrit :

$$F = \frac{1}{2} J \wedge B^* \quad (5.21)$$

### **5.1.4.2 Modélisation des autres phénomènes par la méthode des éléments finis : Flux-Expert**

Flux-Expert est un système qui résout des équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis. Un ensemble de logiciels permet à l'utilisateur de définir, résoudre et exploiter son problème spécifique en choisissant :

- la formulation par éléments finis correspondant à l'équation de son ou ses phénomènes physiques dans la bibliothèque d'équation,
- l'algorithme de résolution du système obtenu dans la base d'algorithmes,
- les lois décrivant les propriétés des matériaux dans la base de données.

Flux-Expert rassemble plusieurs outils de gestion qui permettent d'intervenir à deux niveaux (Fig. 5.03) :

- le niveau générateur : les outils permettent d'insérer de nouvelles formulations (genere), de nouveaux algorithmes ou des propriétés dans la bibliothèque (gnoyau).
  - le niveau utilisateur : les outils permettent de décrire le problème à résoudre : sa géométrie, son maillage, les propriétés physiques (preflu, cvfx2d, prophy).
- Le problème est résolu (solver) puis exploité (xploit).

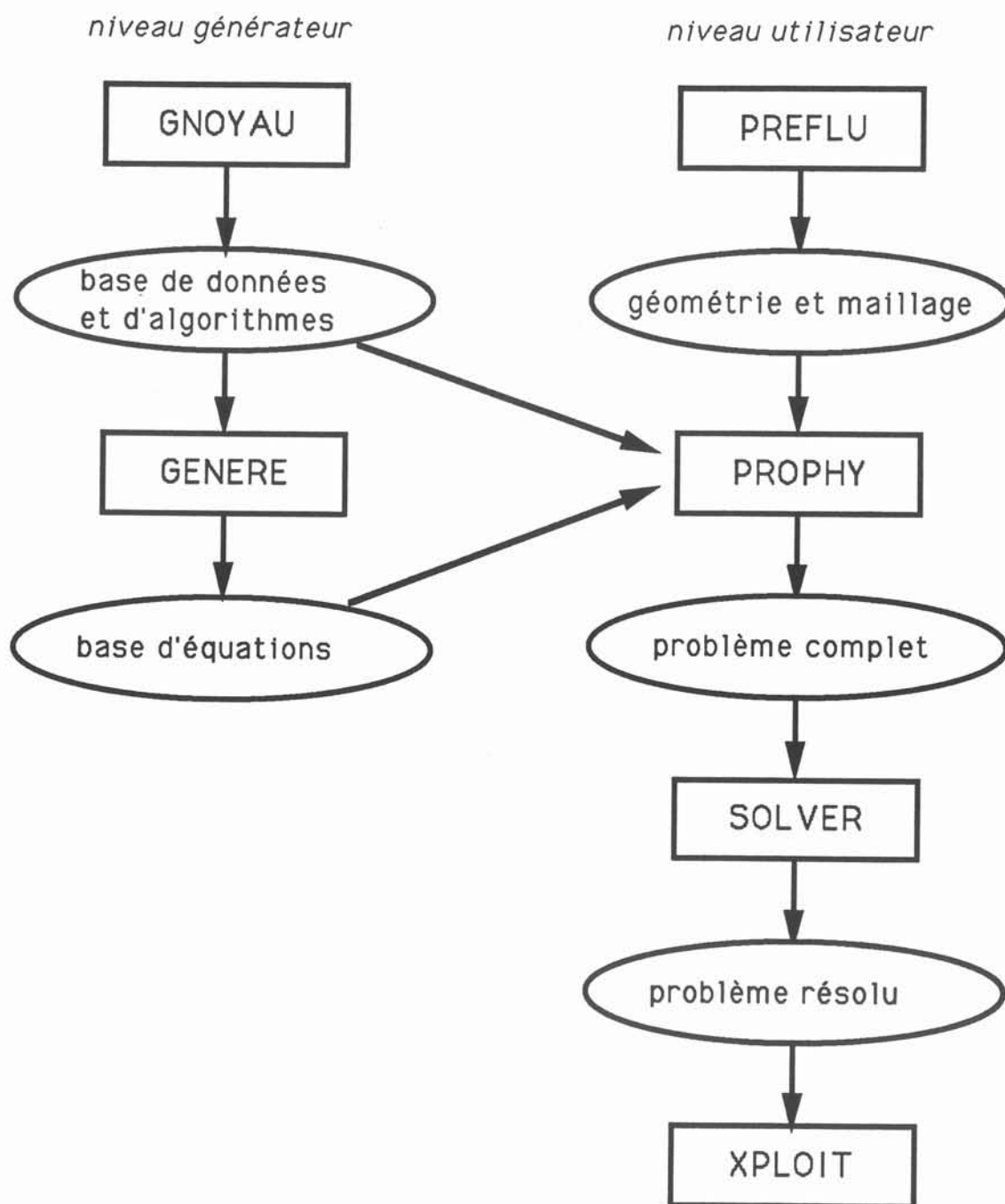


Fig. 5.03 : Organisation du générateur de Flux Expert. Relation avec le module utilisateur.

### 5.1.4.3 Couplage

Les possibilités générales de Flux-Expert, notamment la description de propriétés et d'algorithmes dans des bibliothèques sont exploités. L'architecture du couplage assure la compatibilité avec les versions futures d'Ophélie et de Flux-Expert. Ceci s'est vérifié lors du dernier changement de version commerciale de Flux-Expert (version 1.7 à version 1.8). Le cloisonnement des modules de résolution MI et MEF permet également d'éviter les problèmes dus aux doublets de noms de variables qui sont inévitables entre Ophélie et Flux-Expert.

#### 5.1.4.3.1 Interpolations

L'interface d'interpolation réalise la connexion d'Ophélie (MI) et de Flux-Expert (MEF). Elle transfère les termes de couplage d'un maillage à l'autre.

Les termes de couplage entre les deux méthodes sont définis comme des propriétés. Les modèles affectés à ces propriétés commandent les programmes d'interpolation entre les maillages.

Le problème à résoudre comporte deux étapes :

- la localisation d'un point d'un maillage dans l'autre maillage.
- l'interpolation en un point de la grandeur connue dans une maille.

##### *a) principe de la localisation*

Il s'agit de localiser un point de coordonnées  $X_p, Y_p$  connues dans un maillage. Le maillage est constitué d'un ensemble de surfaces décrites par des noeuds et des polynômes d'interpolation.

L'idée consiste à balayer l'ensemble des éléments de la géométrie pour déterminer dans quel élément se trouve le point.

On effectue d'abord un tri grossier : une zone de voisinage de l'élément courant  $i$  est indéfinie. Elle correspond à une surface double de celle définie par les coordonnées minimum et maximum de l'élément et dans laquelle il est centré (Fig. 5.04).

Si le point  $(X_p, Y_p)$  est hors de la zone de voisinage (cas du point noté A), on passe à l'élément suivant du maillage.

Si le point  $(X_p, Y_p)$  se trouve dans la zone de voisinage (cas des points notés B et C), on effectue un tri fin.

Pour s'affranchir de la forme des éléments qui peuvent être quadratiques, on transforme les coordonnées des points pour passer dans le repère local grâce aux polynômes d'interpolation  $\alpha$  liées aux éléments (Fig. 5.05).

$$X_p = \sum_k \alpha_k (U_p, V_p) X_k \quad \text{avec } k = \text{noeuds de l'élément}$$

$$Y_p = \sum_k \alpha_k (U_p, V_p) Y_k \quad \begin{array}{l} U_p, V_p = \text{coordonnées du point} \\ \text{dans le repère local} \end{array}$$

Les inconnues sont  $U_p$  et  $V_p$ . Leur détermination demande la résolution d'un système linéaire.

Si le point  $(U_p, V_p)$  est situé dans la maille de référence ( $U_p$  et  $V_p$  compris entre -1 et 1) alors le point P de coordonnées  $X_p, Y_p$  appartient à la maille courante  $i$  (cas du point noté C).

Si le point  $(U_p, V_p)$  est situé hors de la maille de référence, alors on passe à l'élément suivant du maillage (Fig. 5.06).

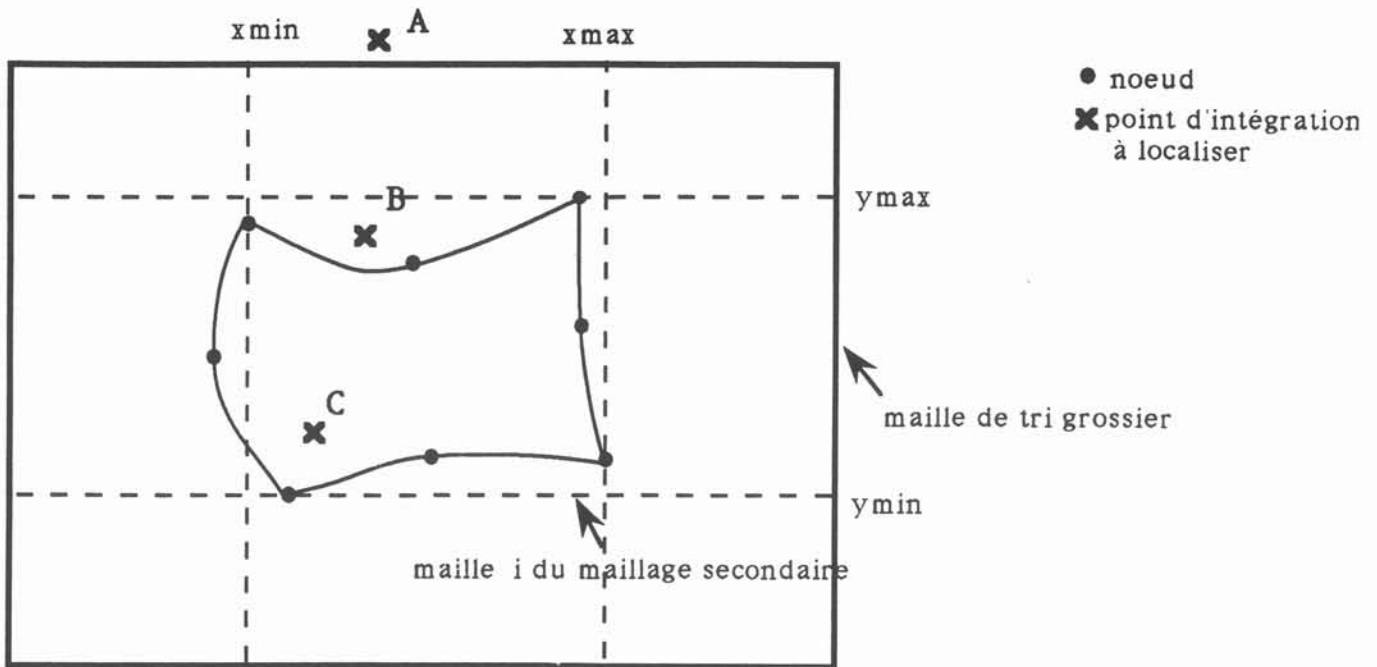


Fig. 5.04 : définition de la zone de voisinage pour le tri grossier

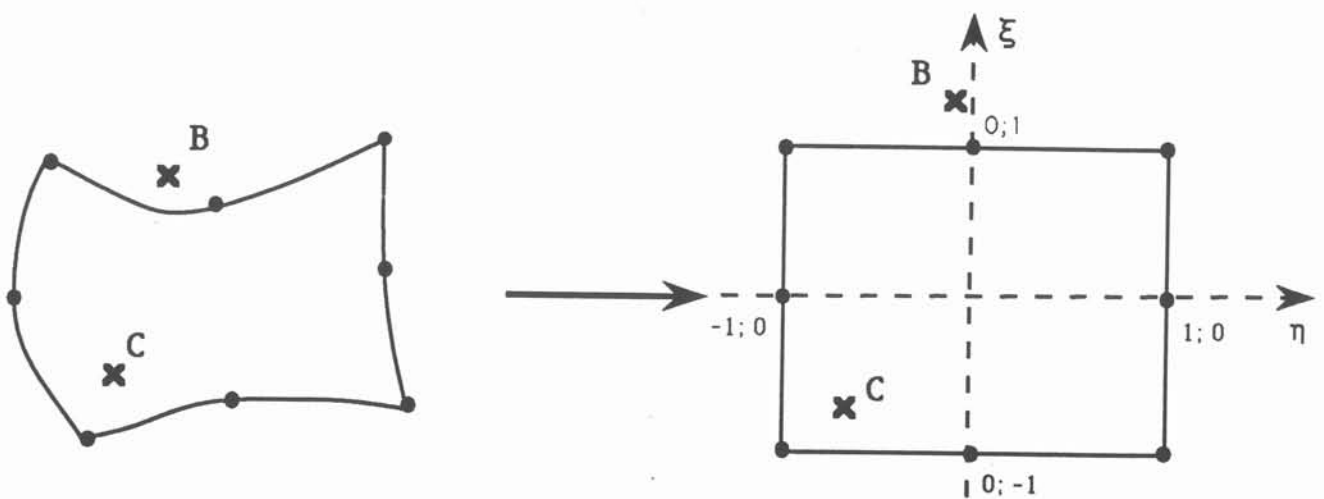


Fig. 5.05 : transformation des coordonnées globales du point à localiser en coordonnées locales.

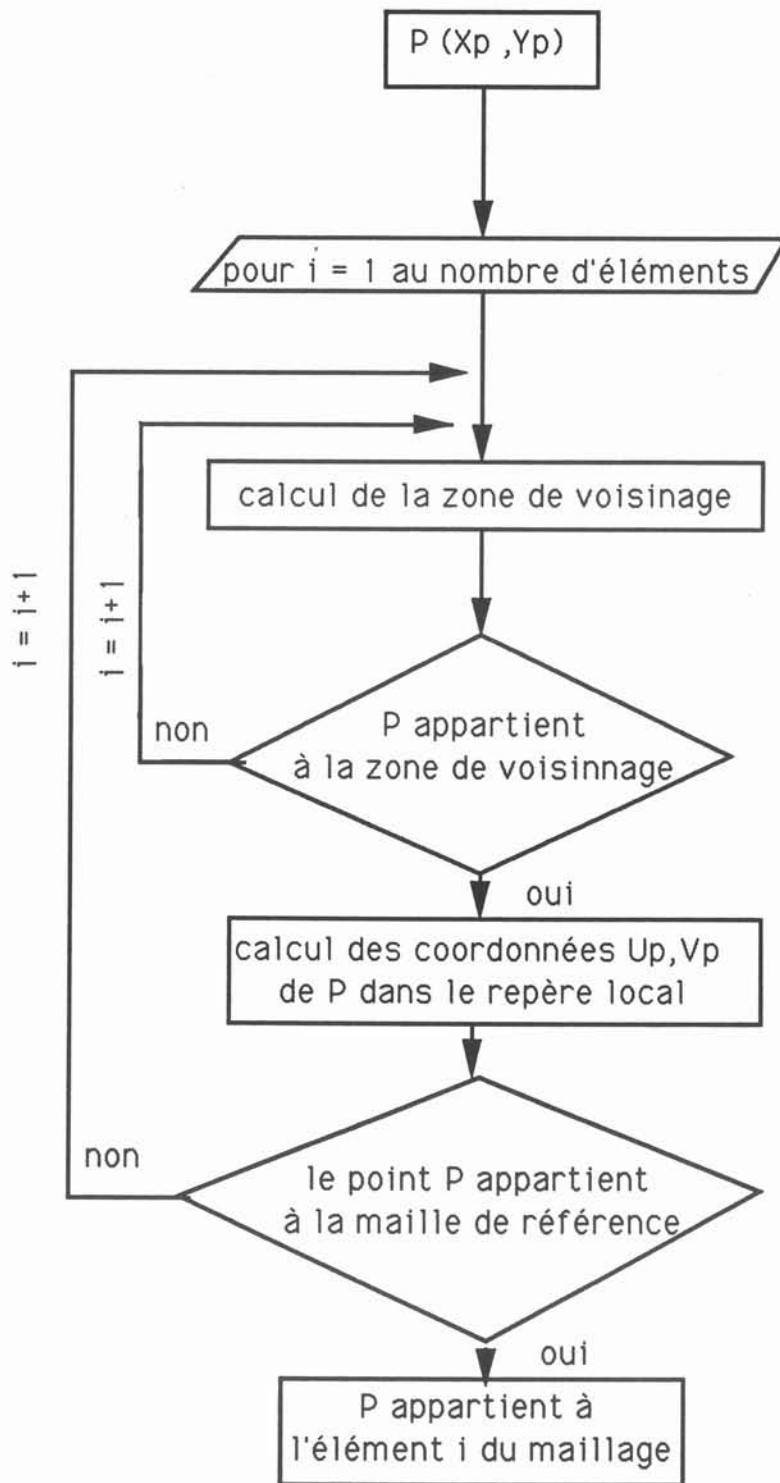


Fig. 5.06 : Principe de la localisation des points d'intégration.



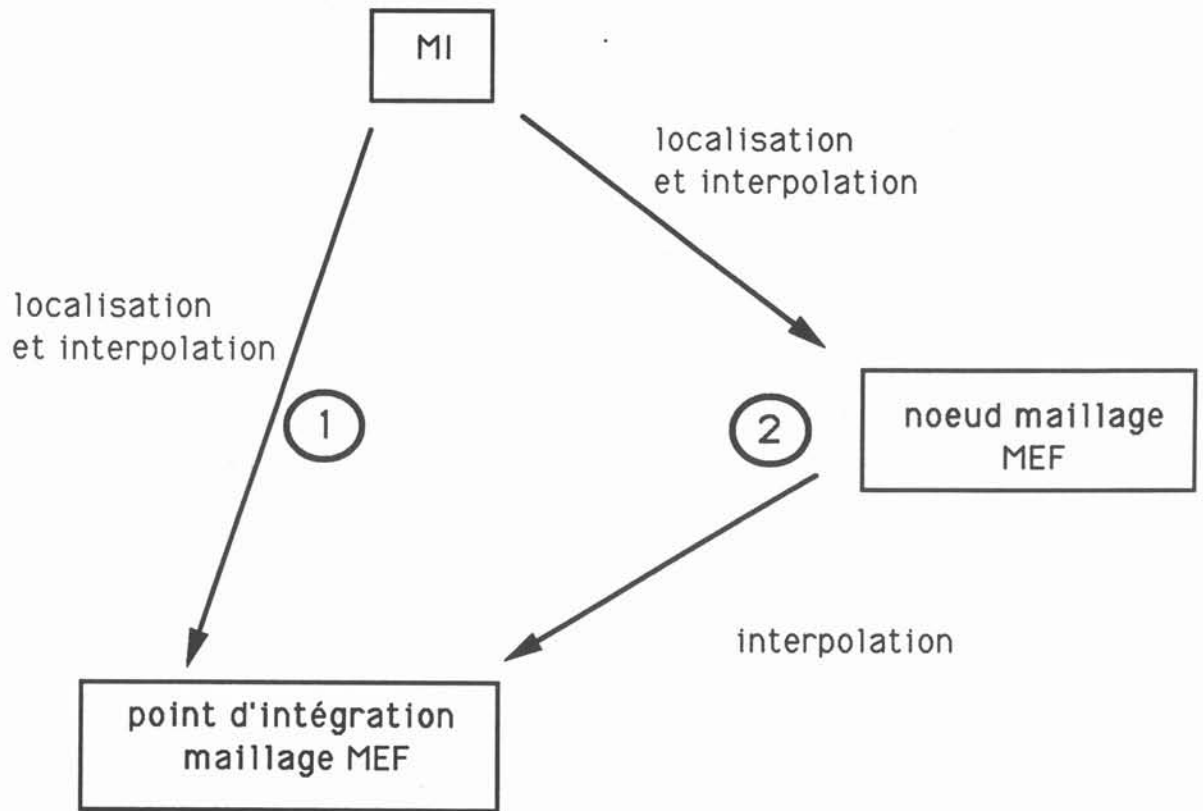


Fig. 5.07 : chemin de localisation de l'interpolation

### b) problème de localisation

La méthode des éléments finis et la méthode intégrale nécessitent le calcul d'intégrales pour constituer le système d'équation à résoudre. Ainsi on distingue deux sortes de points dans leurs maillages :

- les noeuds : points où est calculée l'inconnue du problème
- les points d'intégration qui permettent le calcul numérique de l'intégrale.

Deux cheminements permettent de traiter le problème d'interpolation. Prenons par exemple le cas de l'interpolation du maillage MI vers le maillage MEF. Dans ce cas, la première solution (notée 1 sur la Fig. 5.07) consiste à localiser les points d'intégration du maillage MEF dans le maillage MI. La seconde solution (notée 2) consiste à localiser les noeuds du maillage MEF, moins nombreux que les points d'intégration. La variable d'état est ensuite calculée au point d'intégration par interpolation dans la maille MEF.

Le chemin 2 est plus rapide que le chemin 1. En effet la localisation est l'opération la plus longue puisqu'elle demande en fine peau la résolution d'un système Newton-Raphson. Or, dans les maillages éléments finis, le nombre de noeuds est inférieur au nombre de points d'intégration.

Le chemin 1 est plus précis car la multiplication du nombre d'interpolations est source d'imprécision.

A la fois pour l'interpolation MI vers MEF et MEF vers MI, nous avons choisi de localiser directement les points d'intégration.

### c) calcul des grandeurs

Les termes à transférer du maillage MI au maillage MEF sont des termes sources :

- les densités de puissance pour le calcul thermique,
- les densités de force pour le calcul hydrodynamique.

Le terme de couplage du maillage MEF au maillage MI est la conductivité électrique, propriété dépendant de la température et/ou de la concentration.

#### $\alpha$ . interpolation MI vers MEF

Les densités de puissance issues du calcul électromagnétique sont les fonctions non linéaires de la variable d'état. Or l'interpolation de fonctions non linéaires n'est pas équivalente au calcul de la fonction sur la variable d'état interpolée :

$$f\left(\sum_i \alpha_i U_i\right) \neq \sum_i \alpha_i f(U_i) \quad \text{avec } U = \text{variable d'état}$$

$\uparrow$   
interpolation  
indirecte

$\uparrow$   
interpolation  
directe

$f = \text{fonction non linéaire de } U$

L'induction magnétique nécessaire au calcul des forces de Laplace dérive de la variable d'état électromagnétique. Le calcul de l'induction magnétique dans le module MI est réalisé par l'application de la loi de Biot et Savart. Ainsi, il est plus précis que le calcul du rotationnel réalisé par différence à partir du potentiel vecteur dans le module MEF. Nous préférons transférer directement l'induction magnétique.

Dans la version actuelle d'Ophélie, le potentiel vecteur et les grandeurs électromagnétiques sont constantes par maille. On choisit l'interpolation directe des termes sources qui dans ce cas est équivalente à l'interpolation indirecte.

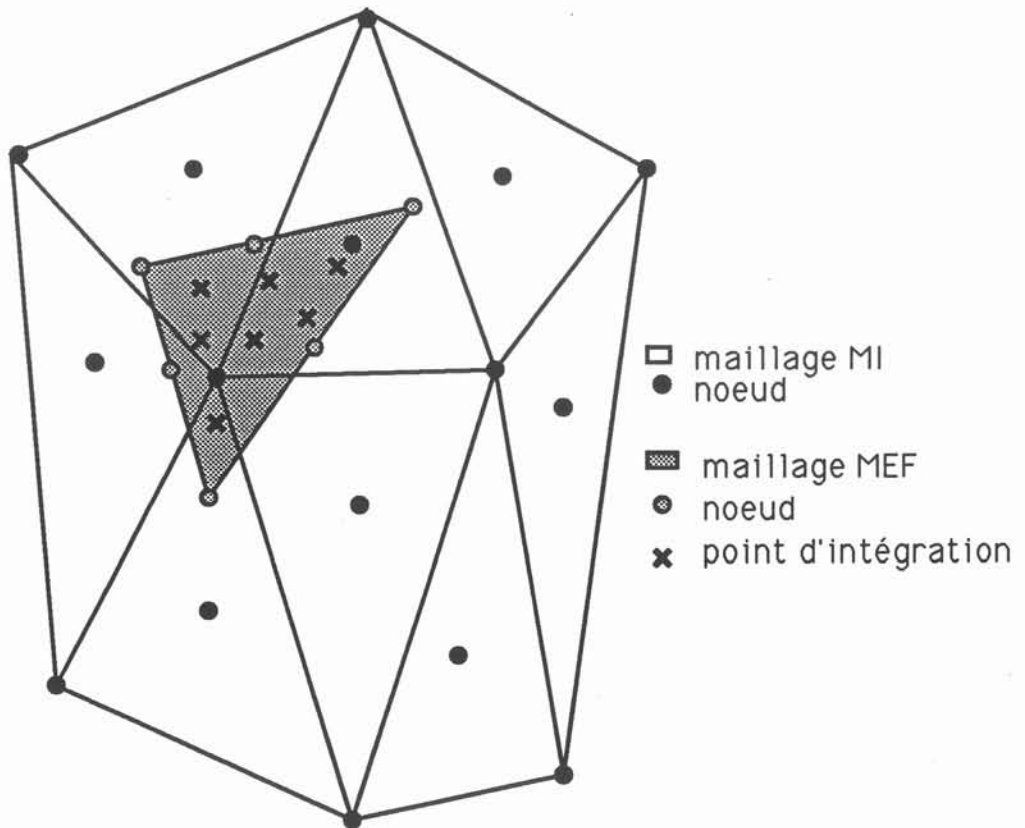


Fig. 5.09 : superposition du maillage élément fini et du maillage électromagnétique grande peau

L'utilisation des modèles de propriétés pour la description des interpolations permettra d'intégrer de nouveaux modèles effectuant l'interpolation indirecte lorsque Ophélie aura évolué. L'utilisateur aura alors le choix du modèle d'interpolation.

Dans l'interpolation MI vers MEF, l'existence de deux types de maillage MI oblige à distinguer deux cas :

- le maillage surfacique des charges de fine épaisseur de peau. La grandeur est calculée au noeud situé au milieu de la maille. Elle est considérée comme constante par maille
- le maillage volumique des charges de grande épaisseur de peau. La grandeur, constante par maille, est calculée au noeud situé au milieu de la maille.

*- Maillage surfacique MI :*

La grandeur à interpoler est connue sur la frontière du domaine. Elle varie dans le domaine suivant une loi de décroissance exponentielle. Le principe de l'interpolation consiste, à partir des coordonnées du point M d'intégration du maillage élément fini (Fig. 5.08) :

- de déterminer son projeté orthogonal M' sur la surface du domaine
- de localiser la maille du maillage MI à laquelle appartient M' (annexe 2)
- de calculer en M' le potentiel vecteur
- de calculer la source en M en appliquant la loi de décroissance exponentielle.

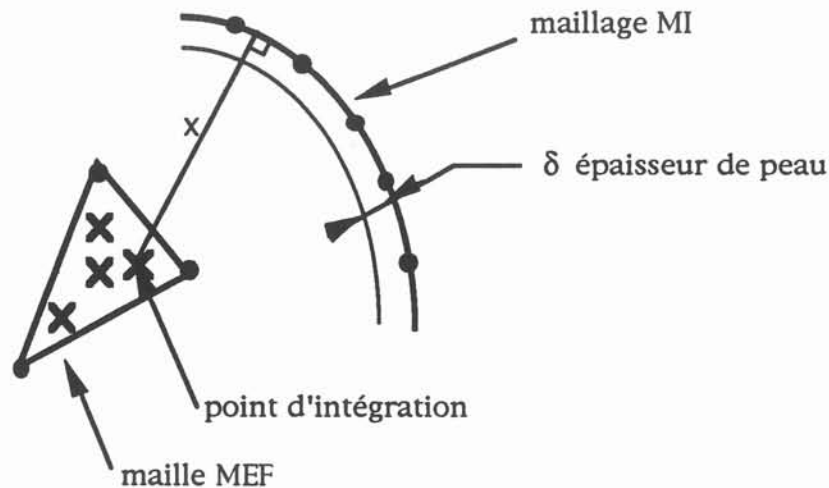


Fig. 5.08 : Principe de l'interpolation à partir d'un maillage surfacique MI

*- Maillage volumique MI :*

La grandeur à interpoler est connue sur toute la surface de la charge dans la grille du maillage électromagnétique. Le maillage MI est décrit dans l'interface comme un second maillage MEF superposé au maillage principal sur lequel le calcul est effectué (Fig. 5.09). Cette description permet d'utiliser les sous programmes du code MEF pour localiser un point dans un maillage et pour interpoler les grandeurs en ce point.

La démarche suivie pour l'interpolation consiste à localiser le point d'intégration dans le maillage secondaire éléments finis. Le potentiel vecteur est interpolé en ce point sur la maille secondaire. Les sources sont alors calculées au point d'intégration.

*β) interpolation méthode des éléments finis vers méthode intégrale.*

Le terme de couplage est la conductivité électrique, propriété dépendant de l'inconnue du code MEF (la température et/ou la concentration). La méthode utilisée est identique pour les maillages MI surfacique et volumique. Le point de calcul du maillage MI est localisé dans le maillage principal MEF. La variable d'état est interpolée en ce point dans la maille éléments finis.

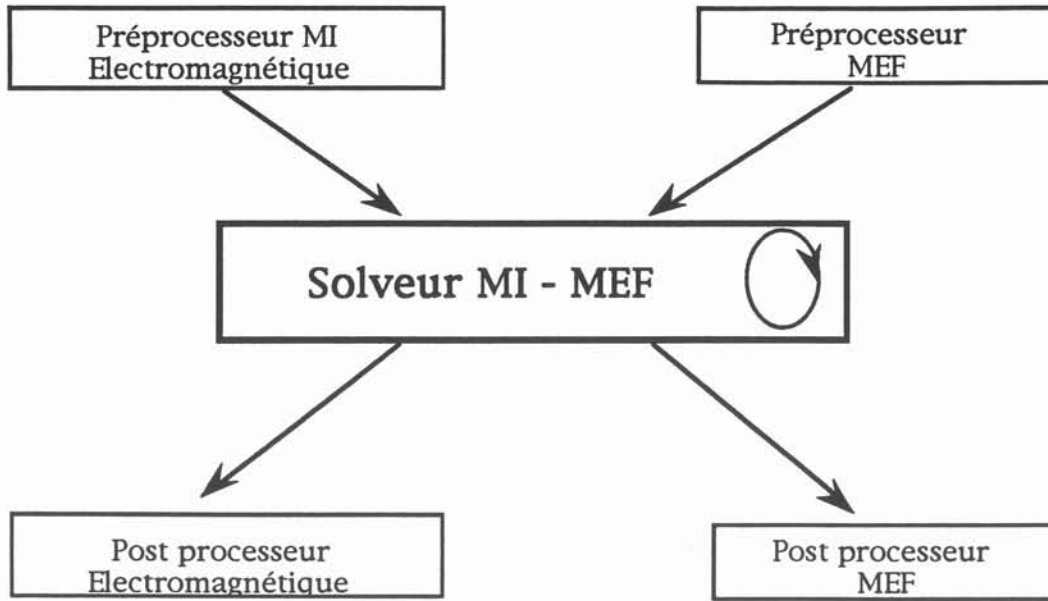


Fig. 5.11 : principe d'utilisation du logiciel

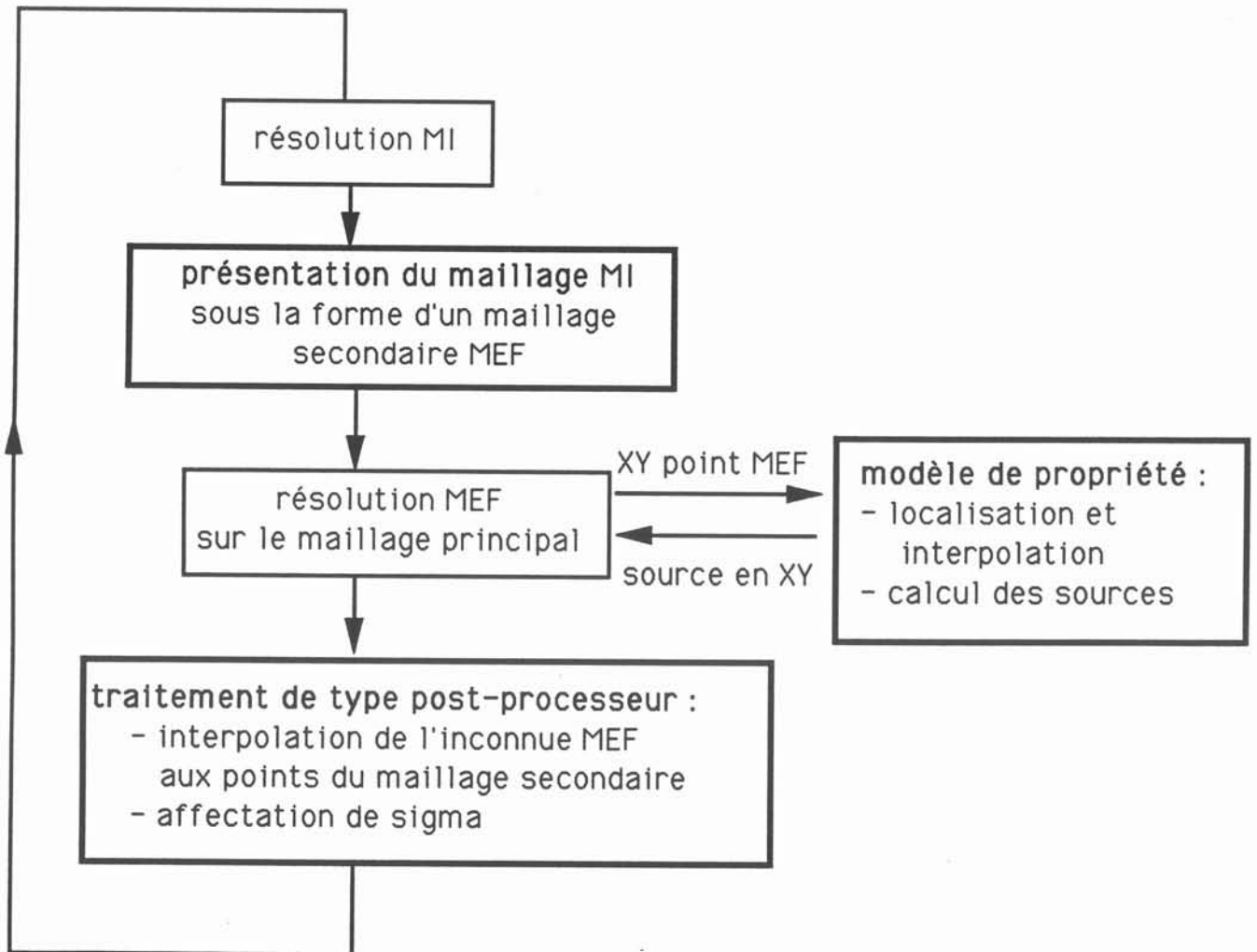


Fig. 5.10 : schéma des ensembles fonctionnels de l'interface méthode intégrale-méthode des éléments finis.

La conductivité électrique est décrite par un modèle de propriété (fonction de la variable d'état) dans la base de donnée Flux-Expert. La conductivité est calculée à partir de la valeur de la variable d'état puis est affectée au point du maillage MI.

#### *d) architecture de l'interface*

L'interface d'interpolation est divisée en trois ensembles fonctionnels indépendants (Fig. 5.10).

- le premier permet de décrire le maillage MI comme un maillage secondaire éléments finis. Cela consiste à créer et remplir des tableaux de coordonnées et de connectivité lisibles par le code éléments finis. Ils sont associés aux tableaux des grandeurs à transférer

- le second correspond à des modèles de propriétés décrivant les termes sources. Le code éléments finis fait appel à ces modèles lorsqu'il a besoin de connaître la valeur des sources en un point (par exemple lors du calcul de l'intégrale de densité de puissance sur un élément de volume). Cet ensemble permet de :

- localiser le point de calcul dans le maillage secondaire,
- d'interpoler dans la maille secondaire la variable d'état,
- de calculer le terme source.

Il fait appel à des sous programmes généraux de Flux-Expert tel que le programme de calcul des coordonnées locales d'un point.

- le troisième ensemble fonctionnel correspond à un traitement identique à ceux qui sont effectués dans le post-processeur de Flux-Expert. Un point est localisé dans le maillage principal et la valeur de l'inconnue  $y$  est interpolée. Un modèle de propriété est alors utilisé pour affecter la conductivité en fonction de l'inconnue.

#### **5.1.4.3.2 algorithmes**

Les algorithmes commandent l'exécution des deux modules de résolution méthode intégrale et méthode des éléments finis, l'interface d'interpolation et vérifie la convergence du calcul global. Ils sont décrits dans la base d'algorithme de Flux-Expert mise à la disposition des utilisateurs.

Les algorithmes créés correspondent au régime permanent pour divers niveaux de couplage :

- une résolution séquentielle MI-MEF dans le cas d'un système élément fini linéaire,
- une résolution itérative MI-MEF dans le cas d'un système élément fini linéaire,
- une résolution itérative MI-MEF dans le cas d'un système élément fini non linéaire (par exemple celui de la Fig. 5.12).

Pour la simulation de phénomènes où les propriétés varient, le dernier type d'algorithme est utilisé. Il comporte deux niveaux d'itérations imbriqués :

- une résolution itérative par la méthode Newton-Raphson du système non linéaire décrit en éléments finis.
- une résolution itérative de l'ensemble des deux systèmes décrits par MI et MEF. La convergence de la boucle externe est évaluée sur les inconnues du système éléments finis.

#### **5.1.4.4 Structure et utilisation du logiciel**

L'utilisation du logiciel s'effectue suivant le schéma suivant (Fig.5.11) :

- préparation des données : il s'agit de décrire les géométries, les propriétés physiques et le maillage des éléments. La différence des domaines d'étude nous a obligé à conserver deux préprocesseurs distincts. Le préprocesseur du problème intégral permet d'entrer la géométrie

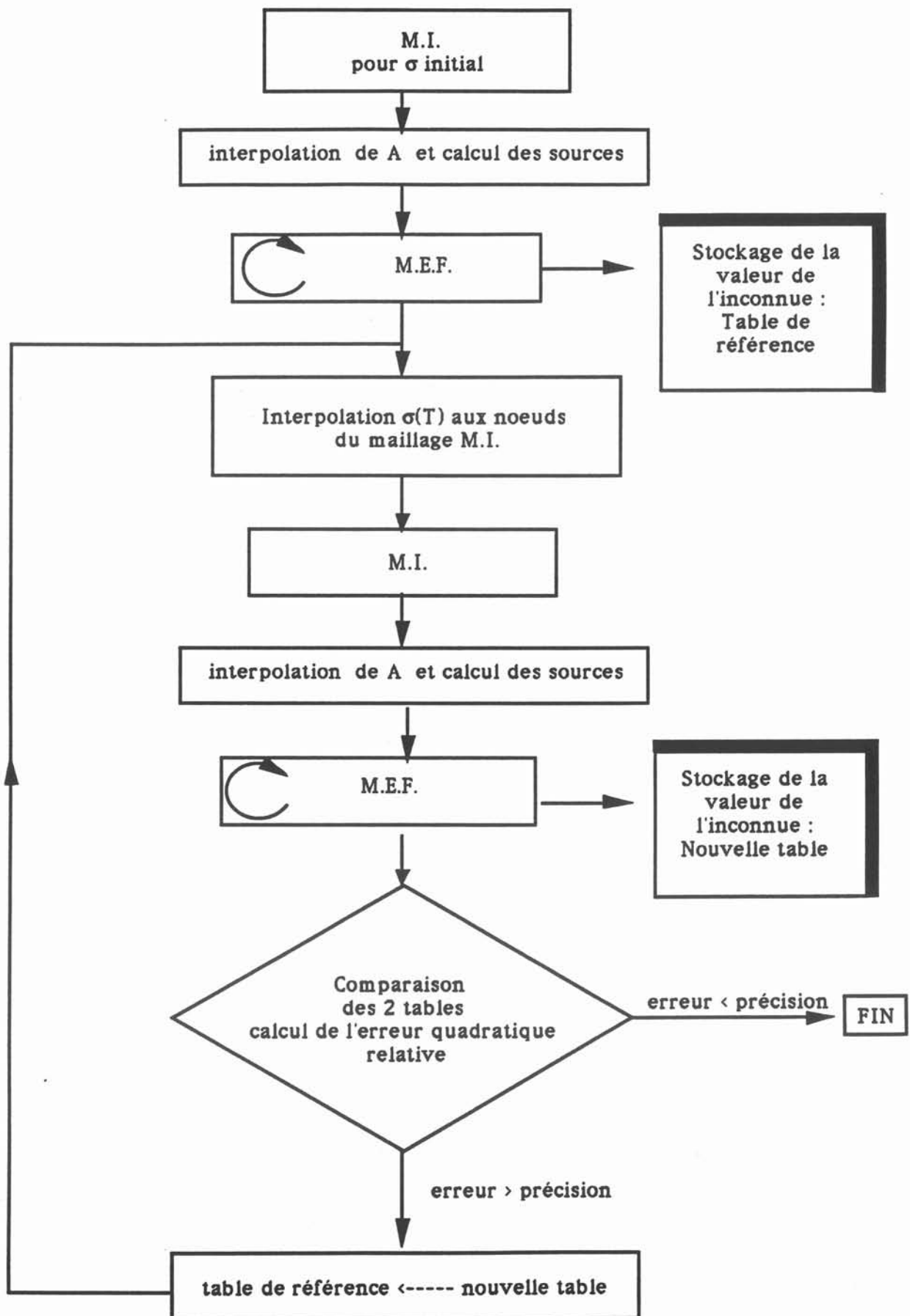


Fig. 5.12 : Algorithme de résolution itératif MI-MEF.

des éléments électriquement actifs, les caractéristiques électriques de fonctionnement ainsi que les conductivités électriques des matériaux. La frontière entre les zones fine et grande peau des barreaux mixtes (silicium) sont alors fixées. Les maillages des charges fine et grande peau sont définis. Le préprocesseur éléments finis permet d'entrer la géométrie du domaine de couplage (le lingot dans notre cas). Cette description doit bien entendu être cohérente par rapport à celle qui est effectuée dans le préprocesseur MI. Les propriétés physiques sont décrites par des modèles intégrés dans une base de données physiques. La formulation est choisie dans la bibliothèque de problèmes, l'algorithme adapté est sélectionné. Le maillage est défini.

- résolution : la résolution par l'exécutable Malice s'effectue à partir des fichiers de données. L'utilisateur peut choisir d'intervenir dans la résolution en fonction de la précision obtenue à chaque pas de calcul (facilité liée à Flux Expert).

- exploitation des résultats : deux postprocesseurs distincts existent afin d'optimiser l'exploitation des résultats électromagnétiques.

Il existe plusieurs niveaux d'utilisateurs :

- niveau 0 : utilisation en boîte noire des formulations et des bases de données physiques.
- niveau 1 : utilisation de la bibliothèque de formulation mais description de nouveaux modèles de propriétés dans la base de données physiques.
- niveau 2 : description de nouvelles formulations et des algorithmes associés.
- niveau 3 : modification du code pour améliorer les performances du logiciel.

### 5.1.5. Modèles thermiques

Le domaine de calcul thermodynamique est constitué par l'ensemble du matériau en cours d'élaboration, c'est à dire :

- le matériau en fusion,
- le matériau déjà solide,
- le matériau d'alimentation, que ce soit sous la forme d'un barreau plongé dans le liquide ou de copeaux en train de fondre à la surface du dôme.

L'ensemble du matériau est soumis à un déplacement dû à la vitesse de tirage, la conservation de masse étant assurée. Si la production de chaleur par le frottements visqueux est négligée, l'équation de conservation de l'énergie peut s'écrire sous la forme :

$$\rho \frac{dH}{dt} = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Dj \quad (5.22)$$

Si l'on se place dans un repère fixe, un point M du matériau est animé à l'instant t d'une vitesse  $\vec{U}$ . Cette vitesse correspond à la vitesse de tirage pour un point du solide et pour un point du liquide elle est la résultante du brassage et du tirage. Dans cette description Eulérienne du mouvement, la dérivée temporelle totale de la fonction scalaire enthalpie s'écrit :

$$\frac{dH}{dt} = \frac{\partial H}{\partial t} + \vec{U} \vec{\text{grad}} H \quad (5.23)$$

L'équation locale exprimant le bilan énergétique sur le lingot s'exprime sous la forme générale :

$$\rho \frac{dH}{dt} + \rho \vec{U} \vec{\text{grad}} H = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Dj \quad (5.24)$$

H est l'enthalpie totale composée d'une part de l'enthalpie sensible h et d'autre part de la chaleur latente  $\Delta H$  due au changement de phase.

$$H = h + \Delta H \quad (5.25)$$

Pour les alliages, le dégagement de chaleur latente s'étale sur l'intervalle de solidification, c'est à dire l'intervalle de température entre  $T_L$ , température dite de liquidus, où la solidification



commence et  $T_s$ , température dite de solidus, où elle se termine. Les transformations de phase à variance nulle (solidification de corps purs ou d'eutectiques), s'effectuent sans changement de température. Le dégagement de chaleur latente a lieu sur l'isotherme  $T_f$  (Fig. 5.13).

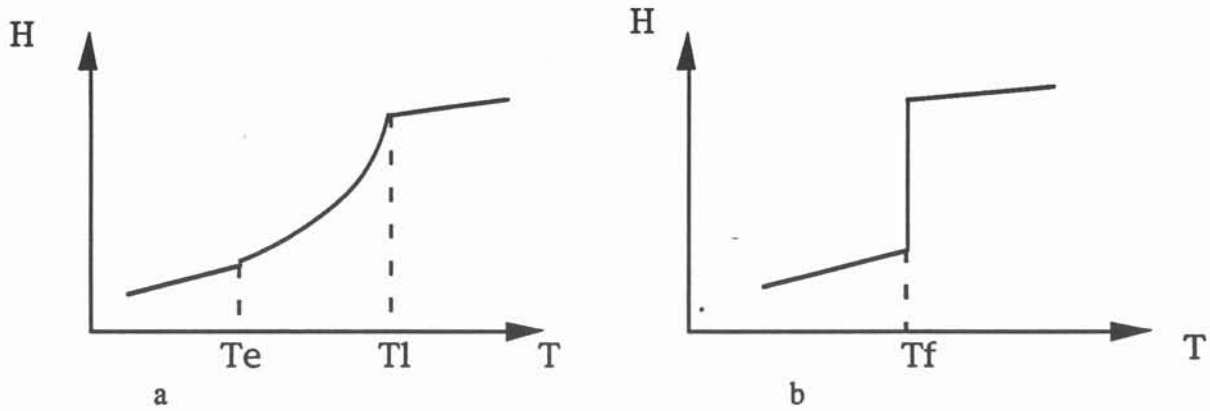


Fig.. 5.13 : évolution de l'enthalpie avec la température  
a) cas des alliages b) cas des transformations isothermes

A partir de l'équation de convection/diffusion, deux types de modèles physiques peuvent être développés : le modèle en enthalpie et le modèle en température.

Les approximations couramment utilisées dans les modèles en température (capacité calorifique équivalente, capacité effective, méthode postitérative...) sont réservées au cas d'alliages comportant un intervalle de solidification.

L'approximation par capacité calorifique équivalente consiste à exprimer le terme de chaleur latente sous la forme d'une capacité calorifique.

$$\frac{\partial \Delta H}{\partial t} = -L_f \frac{\partial f}{\partial t} \quad \text{devient} \quad \frac{\partial \Delta H}{\partial t} = C_{pce} \frac{\partial T}{\partial t} \quad \text{avec} \quad C_{pce} = -L_f \frac{\partial f}{\partial T} \quad (5.26)$$

L'approximation tient dans l'expression de la capacité calorifique sur l'intervalle de solidification. La forme du "pic" de capacité calorifique équivalente peut être explicitée selon différentes lois classiques, comme la règle du levier ou la relation Scheil-Gulliver. Si l'intervalle de solidification est réduit à  $T_f$ , ces relations ne conviennent plus. Il reste alors deux solutions :

- fixer un intervalle fictif de solidification autour de  $T_f$  sur lequel l'approximation de capacité calorifique équivalente et la formulation en température seront utilisés.
- contourner la discontinuité en utilisant une formulation enthalpique du problème.

La formulation enthalpique utilise l'enthalpie comme inconnue, la température étant décrite par la relation  $T = f(H)$ . La singularité est ainsi levée et la difficulté réside alors dans l'expression de cette relation. La formulation enthalpique permet de traiter le cas des alliages aussi bien que celui des corps purs.

Le modèle développé initialement dans Nephthys utilise la température comme variable d'état. Nous avons dans un premier temps repris la formulation élément finis de ce modèle thermique pour l'étendre au cas des matériaux dont les propriétés varient fortement avec la température. Mais le traitement du terme de chaleur latente par un terme de capacité équivalente propre à ce type de modèle ne convient pas aux cas des solidifications isothermes. Nous avons donc développé un second modèle utilisant l'enthalpie comme variable d'état. Ce second modèle, valable dans les mêmes conditions que le premier, peut traiter en plus la solidification des corps purs ou des eutectiques.

### 5.1.5.1. formulation en température

#### 5.1.5.1.1 modèle physique

La relation liant l'enthalpie sensible  $h$  et la température dans le cas où la capacité calorifique dépend fortement de la température :

$$h = \int_{\theta=T_1}^{T_2} C(\theta) d\theta \quad (5.27)$$

Le modèle en température utilise l'expression approchée de l'enthalpie sensible  $h = CT$  pour obtenir l'équation thermique de convection/diffusion en régime permanent :

$$\rho C_p \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T + \rho \frac{\partial \Delta H}{\partial t} = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Q_{th} \quad (5.28)$$

Le terme de chaleur latente est traduit par une capacité calorifique équivalente  $C_{pce}$  telle que  $\Delta H = C_{pce} T$  dans l'intervalle de solidification.

$C_{pce} = 0$  pour  $T > T_l$  ou  $T < T_s$

$C_{pce} = (1-f_s)\Delta H$  pour  $T_s < T < T_l$  avec  $f_s$  fraction solide fonction de  $T$

d'où l'équation globale de la chaleur :

$$\rho (C_p + C_{pce}) \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Q_{th} \quad (5.29)$$

$\uparrow$   
terme de  
convection

$\uparrow$   
terme de  
diffusion

$\uparrow$   
source de  
puissance

#### 5.1.5.1.1 modèle numérique

Le domaine d'étude est fini et est étudié en régime permanent. Nous choisissons la méthode des éléments finis avec une discrétisation de type Galerkin. Les propriétés physiques sont supposées varier avec la température.

Le domaine de l'étude thermique est constitué par le barreau élaboré. La géométrie axisymétrique permet de réduire le domaine étudié à une demi coupe du lingot. L'étude est effectuée sur une hauteur fixée du barreau

En plus des conditions aux limites sur les frontières naturelles du lingot, la réduction du domaine d'étude ajoute des conditions sur l'axe de symétrie et le plan de coupe inférieur du lingot (Fig. 5.14).

Il n'y a pas de conditions thermiques imposées au niveau du front de solidification puisque ce dernier n'est pas considéré dans le calcul comme une frontière du domaine.

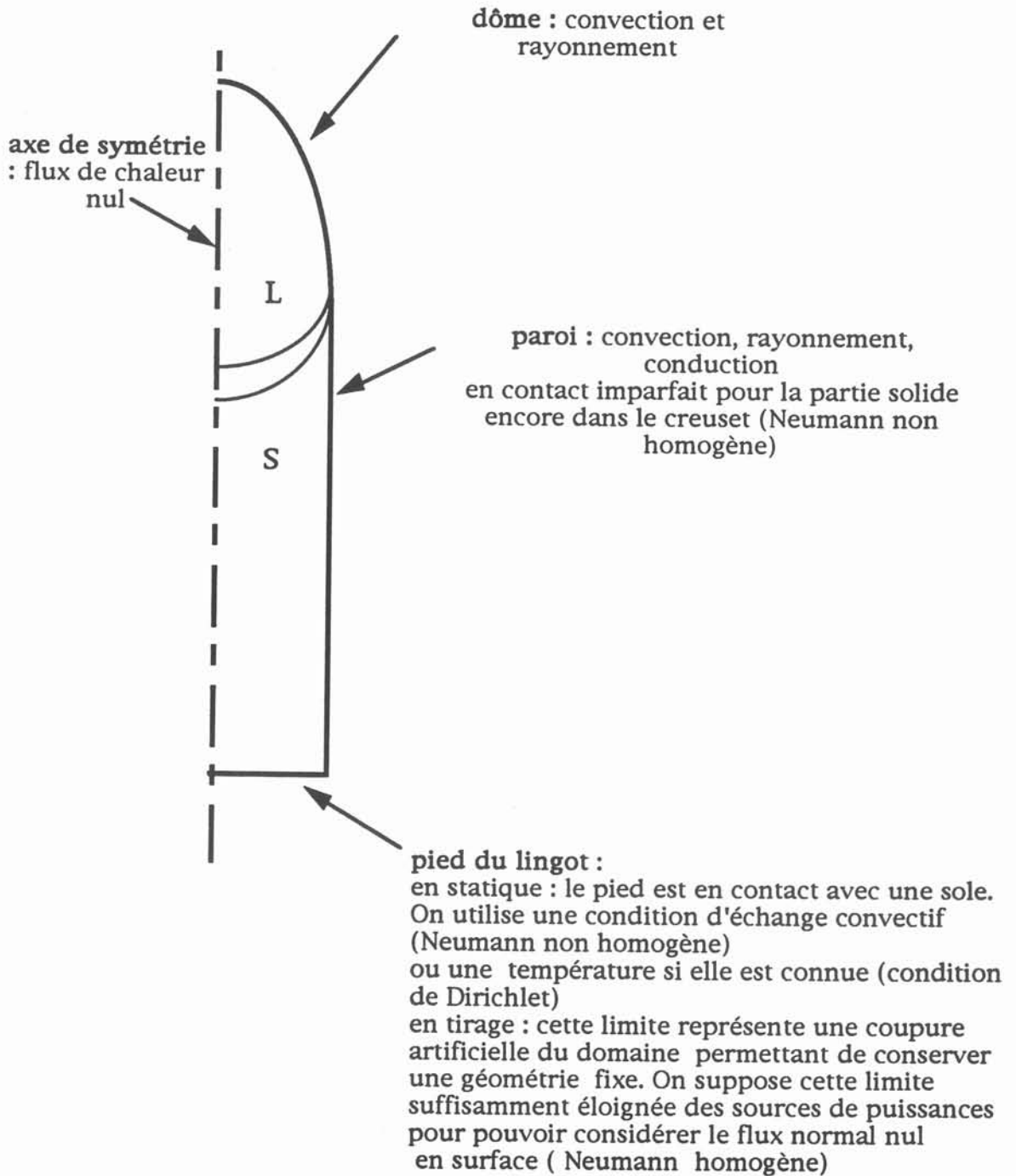


Fig. 5.14 : Conditions aux limites sur le domaine d'étude thermique

**a) discrétisation**

L'inconnue  $T$  est interpolée à l'aide d'un ensemble de fonctions polynomes  $\alpha_j$  telles que :

$$T = \sum_{j=1}^n \alpha_j T_j \quad (5.30)$$

Le résidu de l'équation est projeté sur une famille de fonction  $\beta_i$  indépendantes. Résoudre de l'équation aux dérivées partielles  $G=0$  revient alors à résoudre :

$$\iiint_V \beta_i \cdot G \, dv = 0 \quad (5.31)$$

Une particularité de la méthode de Galerkin est de prendre les fonctions de base de l'espace de projection  $\beta_i$  identiques aux fonctions d'interpolation de l'inconnue  $\alpha_j$ .

On projette l'équation sur l'ensemble des fonctions  $\alpha_i$  (forme forte).

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) \, ds + \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} \, ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \Delta H \, ds \quad (5.32)$$

**b) prise en compte des conditions aux limites**

Les termes faisant intervenir des conditions aux limites de type Neumann sont intégrés par partie. Cette intégration permet de diminuer l'ordre maximum des dérivées de l'inconnue, mais elle fait intervenir des dérivées des propriétés.

$$\text{div}(\vec{f} \vec{a}) = \vec{a} \cdot \vec{\text{grad}} f + f \text{div} \vec{a} \quad (5.33)$$

- le terme de convection est le résultat de deux types de transport de matière : le transport dû au brassage électromagnétique dans le bain ( $\vec{U}_b$ ) et le transport dû au tirage ( $\vec{U}_t$ ).

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \quad (5.34)$$

Le terme de convection dû au brassage ne fait pas intervenir de conditions aux limites en thermique. Par contre nous intégrons par partie le terme de convection dû au tirage pour prendre en compte l'entrée et la sortie de matière.

$$\begin{aligned} \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds &= \iint_{\Omega} \text{div}(\alpha_i \rho C_p \vec{U}_t T) \, ds \\ &- \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \rho C_p \vec{U}_t T \, ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \vec{\text{grad}} \rho C_p \vec{U}_t \cdot T \, ds \\ &- \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{\text{grad}} C_p \vec{U}_t \cdot T \, ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_p \text{div} \vec{U}_t T \, ds \end{aligned} \quad (5.35)$$

Le dernier terme est nul car la masse globale est conservée. On applique le théorème d'Ostrogradsky au premier terme pour faire apparaître les conditions sur la surface de la charge. La température d'entrée de matière est connue  $T_e$  alors que la température du lingot au niveau du pied ne l'est pas. On écrira donc :

$$\iint_{\Omega} \text{div}(\alpha_i \rho C_p \vec{U}_t T) \, ds = \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e T_e \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s T \, dl \quad (5.36)$$

Les deux termes faisant intervenir le gradient de propriétés s'écrivent :

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \vec{\text{grad}} \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{T} \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \quad (5.37)$$

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{\text{grad}} C_p \vec{U}_t \cdot \vec{T} \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \quad (5.38)$$

- le terme de diffusion fait intervenir les conditions d'échange convectif sur les parois du lingot :

$$\begin{aligned} \iint_{\Omega} \alpha_i \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) \, ds &= \iint_{\Omega} \text{div}(\alpha_i k \vec{\text{grad}} T) \, ds - \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \\ &= \int_{\Gamma} \alpha_i k \vec{\text{grad}} T \cdot \vec{n} \, dl - \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \end{aligned} \quad (5.39)$$

Le terme  $k \vec{\text{grad}} T$  correspond généralement à un échange de type convection plus rayonnement. Il s'exprime à l'aide d'un coefficient d'échange convectif  $h$ .

$k \vec{\text{grad}} T = -h (T - T_a) - \epsilon \sigma (T^4 - T_a^4)$  avec  $h, \epsilon$  fonctions de la température

Le terme de rayonnement subit la linéarisation classique :

$\epsilon \sigma (T^4 - T_a^4) = \epsilon \sigma (T_{n-1}^3 T - T_a^4)$  avec  $T_{n-1}$  la température du pas précédent.

- les sources thermiques sont interpolées depuis le maillage électromagnétique.
- le dégagement de chaleur latente est modélisé par une capacité calorifique équivalente

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \Delta H \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_{pce} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T \, ds \quad (5.40)$$

on obtient la forme faible :

$$\begin{aligned} &\iint_{\Omega} \alpha_i \rho (C_p + C_{pce}) \vec{U}_b \cdot \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j \, ds - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \rho C_p \vec{U}_t \sum \alpha_j T_j \, ds \\ &- \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T_{n-1} \sum \alpha_j T_j \, ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} T_{n-1} \sum \alpha_j T_j \, ds \\ &+ \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j \, ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_{pce} \vec{U}_t \cdot \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j \, ds \\ &+ \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \sum \alpha_j T_j \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i h \sum \alpha_j T_j \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T_{n-1}^3 \sum \alpha_j T_j \, dl \\ &= \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} \, ds - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e T_e \, dl + \int_{\Gamma} h \alpha_i T_a \, dl + \int_{\Gamma} \epsilon \sigma \alpha_i T_a^4 \, dl \end{aligned} \quad (5.41)$$

Les variations des propriétés avec la température sont connues, nous pouvons utiliser leur dérivées par rapport à  $T$ . Nous utilisons la méthode de résolution de Newton-Raphson (méthode itérative de linéarisation). Cette méthode dérive du développement en série de Taylor au voisinage d'un point :

$$f_i(X + \delta X) = f_i(X) + \sum_{j=1}^n \frac{\partial f_i}{\partial x_j} \delta x_j \text{ avec } f_i(x_1, x_2, \dots, x_n) \text{ pour } i = 1, 2, \dots, n \quad (5.42)$$

$X$  est l'inconnue vectorielle composée pour nous des  $T_j$ . Les termes d'ordre supérieur sont négligés. Au voisinage de la solution, le système s'écrit  $f_i(X + \delta X) = 0$ .

Précaution : Si la dérivée de la fonction s'annule entre le point de départ et la solution, alors la méthode va diverger. Il faut donc prendre garde à l'allure des courbes de variation des propriétés en fonction de la température. Il est également nécessaire de choisir une valeur initiale de  $T$  proche de la solution.

pour notre cas, on obtient le système suivant  $[J] \vec{\delta I_n} = - \vec{f} ( \vec{I_n} )$  (5.43)

où l'on calcule  $\delta I_n$  l'incrément sur l'inconnue (T) d'un pas à l'autre. L'expression de la matrice jacobienne est donnée dans l'annexe 3.

### 5.1.5.2. formulation en enthalpie

#### 5.1.5.2.1 modèle physique

l'équation de conservation de l'énergie s'écrit :

$$\rho \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} h + \rho \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} \Delta H = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Q_{th} \quad (5.44)$$

Les conditions aux limites exposées précédemment s'expriment naturellement en fonction de l'enthalpie grâce à la loi  $h=f(T)$  caractéristique du matériau. Le terme de chaleur latente ne pose plus de problème et cette équation est valable dans tous les cas de solidification. En effet, la discontinuité de la température au changement de phase isotherme a été évitée par l'utilisation de H comme inconnue.

#### 5.1.5.2.2 modèle numérique

La démarche est identique à celle décrite pour la formulation en température. Les propriétés et la température dépendent de l'enthalpie. La forme forte de l'équation s'écrit :

$$\iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} H \, ds = \iint_{\Omega} \alpha_i \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) \, ds + \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} \, ds \quad (5.45)$$

On obtient la forme faible : (5.46)

$$\begin{aligned} & \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} \sum \alpha_j H_j \, ds - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \rho \vec{U}_t \sum \alpha_j H_j \, ds \\ & - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} \sum \alpha_j H_j \, ds + \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \cdot \frac{\partial T}{\partial H} \sum \alpha_j H_j \, ds \\ & + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \sum \alpha_j H_j \, dl = - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e H_e \, dl - \int_{\Gamma} \alpha_i h_{cv} T \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i h_{cv} T_a \, dl \\ & - \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T^4 \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T_a^4 \, dl + \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} \, ds \end{aligned}$$

L'expression de la matrice jacobienne est donnée dans l'annexe 3.

## **5.2. Cas d'application**

### **5.2.1 couplage faible : élaboration des verres en creuset froid**

La nécessité d'un couplage fort magnétique-thermique ne s'impose que lorsque la conductivité électrique du matériau varie considérablement avec la température. C'est le cas des oxydes ou des semi-conducteurs. La répartition des densités de puissance ne dépend alors plus uniquement des éléments électriquement actifs participant au système, mais aussi des éléments susceptibles de changer localement la conductivité par un refroidissement (creuset froid) ou un échauffement (suscepteur). L'article présenté au journal de physique III à l'aide du congrès Numelec'92 a pour but de montrer l'importance du couplage fort dans le cas de matériaux à conductivité dépendant de la température. L'exemple choisi est celui des verres fondus en creuset froid inductif, applications modélisées pour le CEA Marcoule en liaison avec le laboratoire Madylam (thèse de Denis Saumabère).

Classification  
Physics Abstracts  
41.90 — 02.60

## **MALICE : un logiciel couplant la méthode intégrale et la méthode des éléments finis. Application à la fusion des oxydes en creuset froid**

S. Servant, D. Saumabere, A. Gagnoud et Y. du Terrail Couvat

Laboratoire MADYLAM, ENSHMG, B.P. 95, 38042 Saint-Martin d'Hères, France

(Reçu le 23 mars 1992, révisé le 3 juillet 1992, accepté le 10 août 1992)

**Résumé.** — Le logiciel MALICE modélise les phénomènes physiques couplés dans les installations d'élaboration par induction. Il est le résultat du couplage de deux logiciels : OPHELIE et FLUX-EXPERT. Le phénomène électromagnétique est résolu par la Méthode Intégrale (MI), bien adaptée au problème électromagnétique 3D notamment pour les domaines infinis et les régions où l'épaisseur de peau électromagnétique est faible. Ceci est particulièrement intéressant pour la modélisation du creuset froid. Le logiciel FLUX-EXPERT est basé sur la Méthode des Éléments Finis (MEF) et contient un générateur d'équations incluant la description des phénomènes thermique et hydrodynamique. Les résultats obtenus dans le cadre de la fusion des oxydes en creuset froid mettent en évidence l'intérêt du couplage. Les propriétés physiques des oxydes varient fortement avec la température et l'interaction entre les phénomènes est importante. Les résultats obtenus sans couplage sont erronés et peuvent conduire à un dimensionnement aberrant de l'installation de fusion.

**Abstract.** — The multimethod Malice package allows to modelize coupled phenomena in the induction elaboration. It is the result of the coupling of 3D electromagnetic package OPHELIE and a generator of partial derivative equations FLUX EXPERT. The electromagnetic model is solved by integral method. It is well adapted to 3D problem, infinite domain of study and fine skin depth which is particularly interesting for the modelling of cold crucible installation. FLUX EXPERT uses finite element method to solve phenomenon equations: thermic and hydrodynamic phenomena are described in its equation base. In the particular application of fusion of oxyde in cold crucible, the results obtained enhance the interest of the package. The physical properties of these materials strongly depend on temperature, thus physical phenomena are coupled. Results calculated without coupling may lead to false exploitation of the process.

### **Introduction.**

Le logiciel MALICE a été conçu pour modéliser les phénomènes physiques intervenant dans les procédés d'élaboration en creuset froid inductif. Un inducteur, parcouru par un courant alternatif sinusoïdal, crée un champ magnétique dans lequel est placé un creuset de cuivre sectorisé refroidi par une circulation interne d'eau. Des courants induits se développent en



superficie des secteurs. L'originalité du procédé repose sur la sectorisation qui empêche le creuset de faire écran au champ magnétique. Les courants induits dans le matériau à élaborer sont à l'origine de deux effets :

- un effet thermique : chauffage et fusion du matériau par effet Joule,
- un effet mécanique : création, sous l'action des forces de Laplace, d'un brassage du bain liquide.

L'analyse des phénomènes électromagnétique, thermique et hydrodynamique intervenant dans ce procédé met en évidence leur interdépendance. Aussi seule une résolution couplée des équations constitutives permet de modéliser la réalité. De plus les domaines d'étude sont différents d'un phénomène physique à l'autre :

- il est tridimensionnel et infini pour l'électromagnétisme,
- il est limité à la charge axisymétrique pour la thermique et l'hydrodynamique.

Une modélisation complète du procédé par la méthode des éléments finis conduit à des systèmes non linéaires de taille très importante car la géométrie est tridimensionnelle et le nombre d'inconnues par nœud élevé [1]. En conséquence la démarche adoptée a été de choisir la méthode numérique la mieux adaptée à chaque phénomène physique.

Ainsi pour la résolution du phénomène électromagnétique tridimensionnel nous avons choisi la méthode intégrale [2]. Le code utilisé est OPHÉLIE développé à MADYLAM.

Pour les phénomènes thermique et hydrodynamique nous avons choisi la méthode des éléments finis. Le logiciel utilisé est FLUX EXPERT. Il possède un générateur de code éléments finis permettant la simulation des formulations obtenues par méthode projective des équations aux dérivées partielles [3].

MALICE est le logiciel couplant la méthode intégrale (OPHÉLIE) et la méthode des éléments finis (FLUX EXPERT). Ce code offre la possibilité de sélectionner les phénomènes physiques à résoudre en couplage avec l'électromagnétisme (thermique, hydrodynamique...). La difficulté de son élaboration consiste à réaliser la liaison des termes de couplage d'un maillage à l'autre puis de construire un jeu d'algorithmes de résolution itérative permettant de traiter des problèmes en régime transitoire ou permanent du cycle d'élaboration.

L'ensemble des applications de l'élaboration en creuset froid inductif peut être modélisé par MALICE : élaboration statique de matériaux en creuset de type poche, refusion de barreaux ou copeaux pour tirer en continu des lingots en creuset droit.

En fonction du matériau étudié, les phénomènes physiques prépondérants et le type de résolution adaptés peuvent être sélectionnés :

- pour les matériaux métalliques, l'écoulement dans le bain est turbulent. Il importe alors d'associer hydrodynamique et thermique. Un algorithme de résolution séquentiel des phénomènes électromagnétique et thermodynamique est suffisant, la conductivité électrique variant peu avec la température ;
- pour les oxydes, la résolution couplée de l'électromagnétisme et de la thermique est indispensable et un algorithme non linéaire est choisi car les propriétés physiques des oxydes varient fortement avec la température.

C'est ce dernier type d'exemple que nous avons choisi de présenter afin d'illustrer les possibilités de ce logiciel et notamment l'intérêt du couplage fort électromagnétique-thermique. Pour la fusion d'oxydes en creuset froid (Fig. 1), la forte variation des propriétés en fonction de la température [4, 5] rend le système non linéaire. Par contre les forces de Laplace, origine du brassage pour les métaux, sont faibles. Le mouvement du bain est uniquement dû à la thermo-convection. Etant donné l'importance de la viscosité du matériau nous négligeons dans un premier temps l'hydrodynamique.

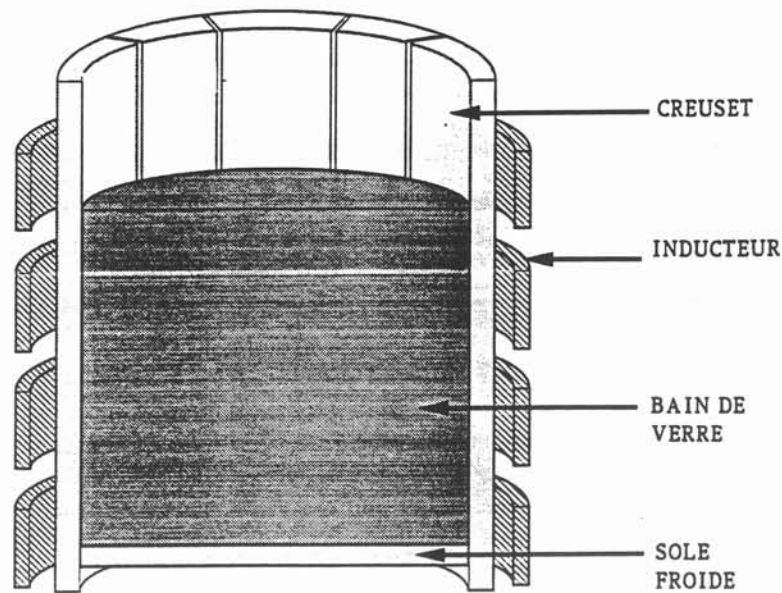


Fig. 1. — Schéma de l'installation de fusion de verres en creuset froid.

[Schematic representation of the glass fusion in cold crucible.]

## 1. Modélisation.

**1.1 MODÈLE ÉLECTROMAGNÉTIQUE.** — Le phénomène caractéristique de l'induction dans un matériau conducteur de l'électricité est la notion de diffusion du champ magnétique dans le matériau. L'équation correspondante s'écrit :

$$\Delta \mathbf{B} = \mu \sigma \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$$

où  $\mathbf{B}$  est l'induction magnétique,  $\mu$  est la perméabilité magnétique,  $\sigma$  est la conductivité électrique et  $t$  est le temps.

L'induction magnétique variant sinusoïdalement avec le temps cette équation met en évidence la longueur caractéristique de diffusion du champ magnétique dans le matériau, appelée épaisseur de peau électromagnétique  $\delta$ ,

$$\delta = \sqrt{2 / \mu \sigma \omega}$$

où  $\omega$  est la pulsation du courant inducteur.

Lorsque l'épaisseur de peau électromagnétique est faible devant les dimensions du matériau, les grandeurs électromagnétiques varient selon une loi de décroissance exponentielle en fonction de la distance à la surface. Pour les fréquences habituelles de fonctionnement de ce type d'installation (1 kHz-500 kHz) l'épaisseur de peau est faible dans le creuset, l'inducteur et la sole. Elle est grande dans les oxydes.

Une résolution par la méthode des éléments finis nécessite des maillages complexes et lourds. Le nombre d'inconnues par nœud est alors de quatre (les trois composantes du potentiel vecteur et le potentiel électrique). La méthode choisie est la méthode intégrale, mieux adaptée

à ce problème car elle utilise un maillage limité aux parties électriquement actives et réduit de plus le nombre d'inconnues à deux (une composante de la densité de courant et le potentiel électrique). Cette méthode permet d'optimiser la taille du maillage.

Les équations résolues par la méthode intégrale sont :

$$\text{div } \mathbf{J} = 0$$

$$\oint \text{grad } V \cdot d\mathbf{l} = 0$$

$$\mathbf{J} = -\sigma \left( \text{grad } V + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right)$$

où  $\mathbf{A}$  est le potentiel vecteur,  $V$  est le potentiel scalaire,  $\mathbf{J}$  est la densité de courant.

Le potentiel vecteur s'exprime par la loi de Biot et Savart qui prend naturellement en compte les conditions aux limites à l'infini.

Le creuset froid est de géométrie tridimensionnelle, périodique en  $\theta$  (direction azimutale) et les autres éléments (charge, sole et inducteur) sont axisymétriques. Le maillage (charge, sole, creuset, inducteur) est constitué d'un ensemble de courants élémentaires de direction imposée (Fig. 2). De plus, la prise en compte de la loi de décroissance exponentielle dans la formulation

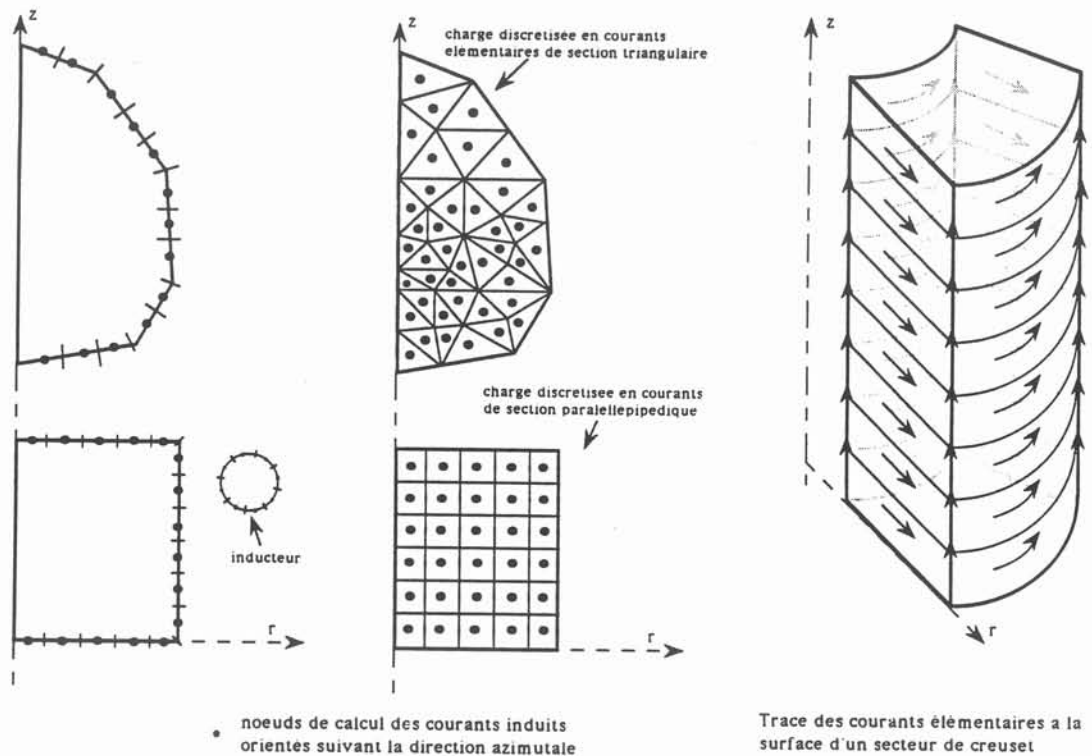


Fig. 2. — Maillage électromagnétique : a) charge axisymétrique, hypothèse de fine épaisseur de peau électromagnétique, maillage surfacique ; b) charge axisymétrique, hypothèse de grande épaisseur de peau électromagnétique, maillage volumique ; c) secteur de creuset froid, hypothèse de fine épaisseur de peau électromagnétique, maillage surfacique.

[Electromagnetic mesh : a) axisymmetric load, hypothesis of thin electromagnetic skin depth, superficial mesh ; b) axisymmetric load, hypothesis of large electromagnetic skin depth, volumic mesh ; c) sector of cold crucible, hypothesis of thin electromagnetic skin depth, superficial mesh.]

permet de réduire le maillage à la surface des éléments conducteurs d'électricité : creuset, inducteur et sole. Le système obtenu est linéaire. Les inconnues sont la densité de courant et le potentiel électrique. La matrice est pleine et dissymétrique.

A partir des densités de courants induits calculées dans la charge, les densités de puissance Joule et les densités de force de Laplace sont calculées.

**1.2 MODÈLE THERMIQUE.** — Nous avons choisi d'exprimer la conservation de l'énergie en utilisant la formulation en température dont l'écriture générale en régime permanent est :

$$\rho(T) C_p(T) \mathbf{U} \cdot \text{grad } T = \text{div} (k(T) \text{grad } T) + Q_{\text{th}} + \Delta H$$

où  $\rho(T)$  est la densité,  $C_p(T)$  est la capacité calorifique,  $T$  est la température,  $\mathbf{U} = \mathbf{U}_b + \mathbf{U}_t$  est la somme de la vitesse du fluide et de la vitesse de tirage,  $k(T)$  est la conductivité thermique,  $Q_{\text{th}}$  est la densité de puissance dissipée par effet Joule,  $Q_{\text{th}} = JJ^*/\sigma$ , et  $\Delta H$  est la chaleur latente de changement d'état.

La charge élaborée a une géométrie axisymétrique. La formulation éléments finis est bidimensionnelle axisymétrique [6]. Les conditions aux limites sont représentées sur la figure 3. A la surface de la charge on prend en compte le rayonnement à l'infini et la convection. La densité surfacique de puissance dissipée ainsi s'exprime :

$$P = \epsilon_r \sigma_{\text{sb}} (T_s^4 - T_a^4) + h_s (T_s - T_a)$$

où

$\epsilon_r$  est l'émissivité du matériau constituant la charge

$\sigma_{\text{sb}}$  est la constante de Stefan Boltzmann

$T_s$  est la température de surface du matériau

$T_a$  est la température ambiante

$h_s$  est le coefficient d'échange à la surface.

Le contact entre le creuset froid et la charge et celui entre la sole et la charge est un contact imparfait. La puissance ainsi dissipée est assimilée à un flux convectif :

$$P = h(T_c - T_f)$$

où  $T_c$  est la température de la charge

et  $T_f$  est la température de la paroi froide de la sole ou du creuset.

Les propriétés du matériau dépendant de la température, le système obtenu est non linéaire. Il est résolu par la méthode de Newton-Raphson.

**1.3 COUPLAGE.** — Le couplage concerne le domaine de la charge où toutes les inconnues du problème sont à déterminer. Les termes couplant les équations sont  $\sigma(T)$  et  $JJ^*/\sigma$ , conductivité électrique et densité de puissance Joule.

Le maillage de la charge utilisé dans la méthode intégrale est différent du maillage éléments finis de la charge. Des interpolations sont nécessaires pour calculer les termes de couplage. Les difficultés de ces interpolations sont de deux natures :

— Le choix de la grandeur à interpoler : certains termes de couplage sont des fonctions non linéaires de la variable d'état, par exemple  $JJ^*/\sigma = f(A)$ . Ce sont les variables d'état température et potentiel vecteur qui sont interpolées d'un maillage à l'autre, les fonctions étant calculées ensuite localement.

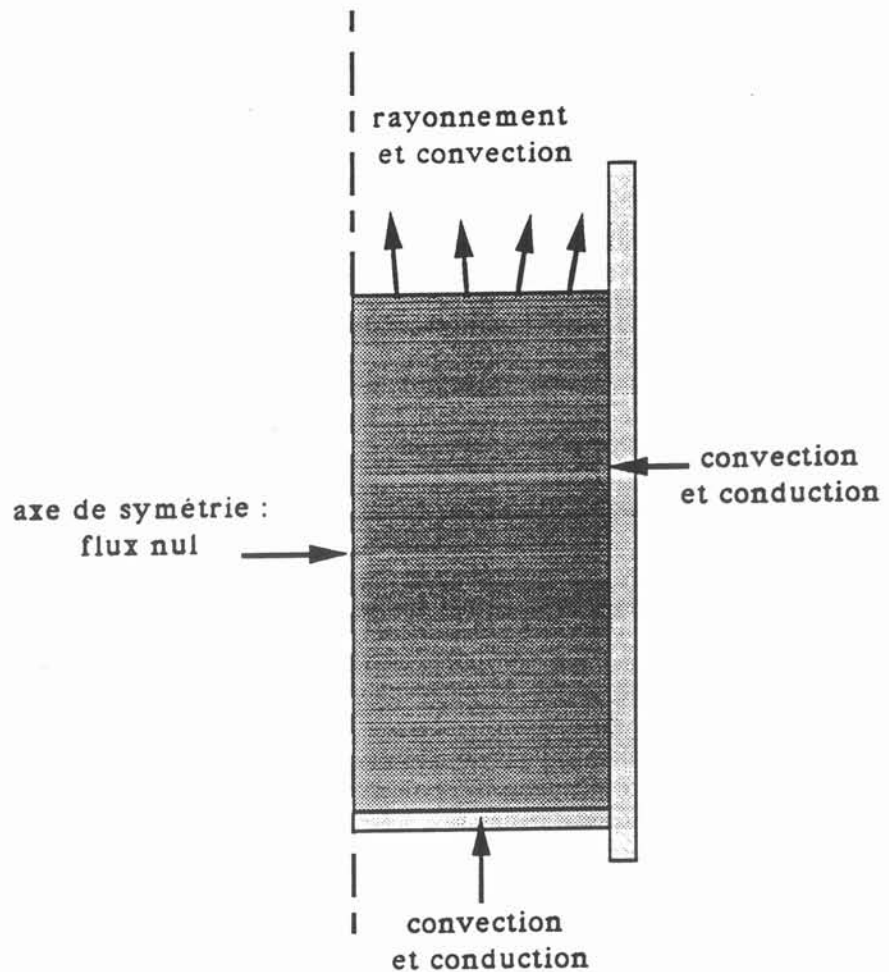


Fig. 3. — Conditions aux limites en thermique.

[Thermic boundary conditions.]

— La démarche de la localisation : la solution la plus rapide consiste à localiser les nœuds d'un maillage par rapport à l'autre, ceux-ci étant moins nombreux que les points d'intégration. Les grandeurs sont ensuite interpolées dans la maille aux points d'intégration. La solution la plus précise consiste à localiser directement les points d'intégration.

Les solutions retenues pour l'interpolation des termes de couplage sont :

interpolation MI → MEF

- 1) localisation des points d'intégration du maillage MEF dans le maillage MI,
- 2) interpolation du potentiel vecteur aux points d'intégration du maillage MEF et calcul des sources thermiques ;

interpolation MEF → MI

- 1) localisation des nœuds du maillage MI dans le maillage MEF,
- 2) calcul de la température puis de  $\sigma(T)$  par interpolation aux nœuds du maillage MI.

Dans le cadre de l'application aux verres (grande épaisseur de peau), l'interpolation est effectuée entre deux maillages volumiques. Dans ce cas on considère le maillage de la méthode intégrale comme un maillage éléments finis secondaire.

Lorsque la charge est conductrice d'électricité (fine épaisseur de peau), l'interpolation du potentiel vecteur est réalisée d'un maillage surfacique vers un maillage volumique. Dans ce cas pour tous les points d'intégration du maillage éléments finis on recherche le projeté orthogonal de ce point sur la surface ; le projeté orthogonal est localisé dans le maillage de la méthode intégrale et une loi de décroissance exponentielle suivant la normale à la surface est appliquée à la grandeur.

## 2. Code.

Un algorithme commandant les deux modules de résolution basés respectivement sur la méthode intégrale et sur la méthode des éléments finis a été créé (Fig. 4). Il comporte deux niveaux de résolution itérative imbriqués :

- la résolution du système non linéaire obtenu par la formulation éléments finis pour le phénomène thermique (Fig. 4) ;
- la boucle de résolution du système couplé méthode intégrale (électromagnétique) et méthode des éléments finis.

Deux préprocesseurs distincts permettent de décrire les domaines d'étude par la méthode intégrale et la méthode des éléments finis. Un module unique de résolution permet de calculer les grandeurs électromagnétique et thermique... Deux post-processeurs distincts ont été conservés afin d'optimiser l'exploitation des grandeurs calculées (Fig. 5).

## 3. Résultats.

L'illustration présentée est destinée à démontrer l'importance de tels couplages dans des résolutions multi-méthodes, multi-phénomènes. La configuration de fusion d'oxydes en creuset froid étudiée est représentée figure 6. Le modèle est appliqué au cas de la fusion statique ( $u_t = 0$ ) en régime permanent. L'écoulement thermoconvectif est modélisé par une conductibilité thermique équivalente ( $u_b = 0$ , kéquivalente  $>$  kmoléculaire). Dans la modélisation, le creuset froid est de géométrie tridimensionnelle, périodique en  $\theta$ . La charge de verre, l'inducteur et la sole sont décrits par une géométrie axisymétrique. Sur la figure 5 est présenté le maillage électromagnétique. Le maillage du creuset, de l'inducteur et de la sole sont surfaciques. Le maillage du verre est volumique. Le maillage thermique est réduit à la région occupée par le verre (Fig. 7). Les modèles de propriétés sont tracés sur la figure 8.

Nous présentons les résultats obtenus pour diverses valeurs de courant imposé dans l'inducteur. Afin de mettre en évidence la nécessité du couplage, chaque cas est modélisé par une résolution séquentielle unique électromagnétique-thermique (cas noté a) et par une résolution itérative (cas noté b).

Si les paramètres d'initialisation du problème (conductivité électrique, température, courant inducteur) sont proches des conditions de fonctionnement en régime permanent, les résultats sont du même ordre de grandeur dans les cas a et b (Fig. 9).

Si le courant de l'inducteur est sous-dimensionné, le bain de verre doit normalement se figer. Au contraire, la résolution sans couplage montre un échauffement du bain (Fig. 10a). La résolution couplée permettant le réajustement des sources de chaleur (les densités de puissance) à chaque itération, le figeage du verre est obtenu (Fig. 10b).

Le problème reste le même dans le cas où le courant de l'inducteur est trop important.

Le couplage permet de prendre en compte l'effet des conditions aux limites sur la répartition des sources de puissances Joule. En l'absence de couplage, la répartition des densités de

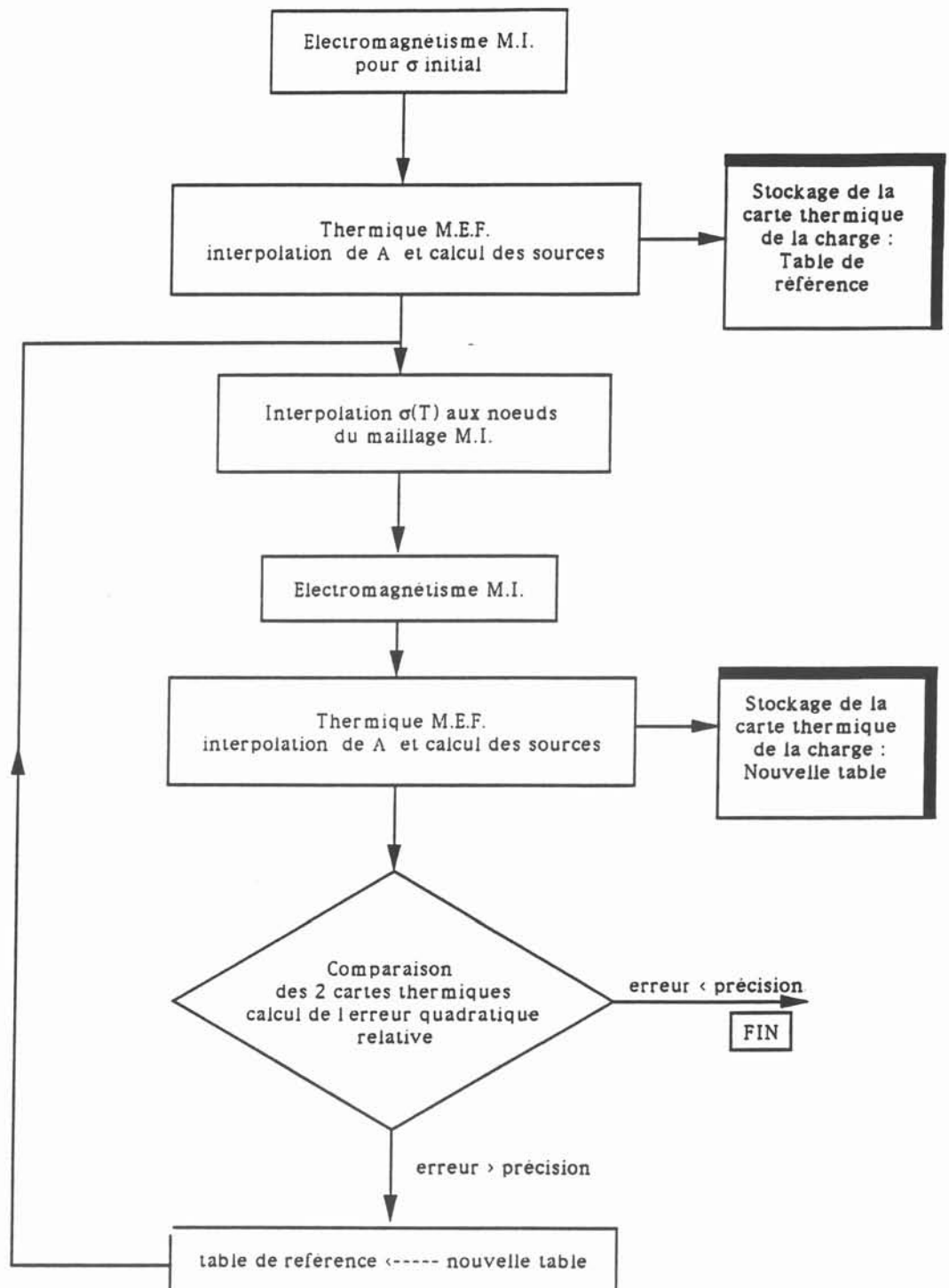


Fig. 4. — Algorithme de résolution.

[Resolution algorithm.]



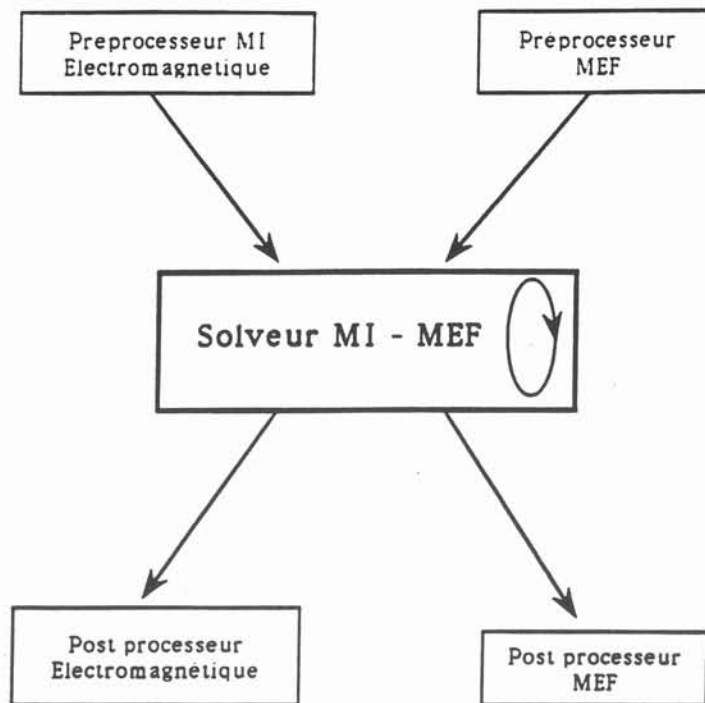


Fig. 5. — Principe d'utilisation du logiciel.  
[Princip of the package utilisation.]

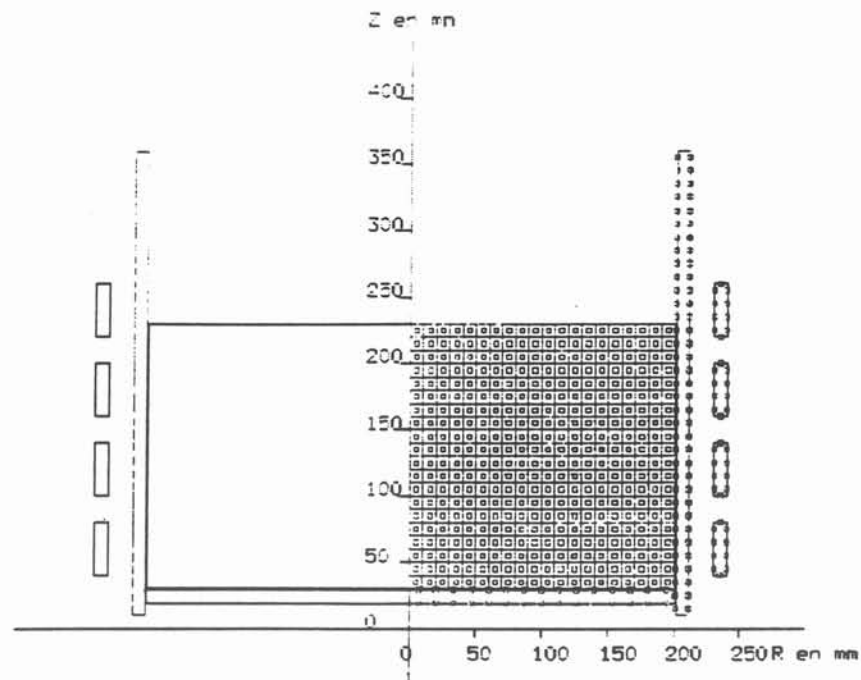


Fig. 6. — Représentation en coupe verticale du dispositif, configuration et maillage du modèle électromagnétique.

[Vertical section of the installation, mesh of electromagnetic model.]



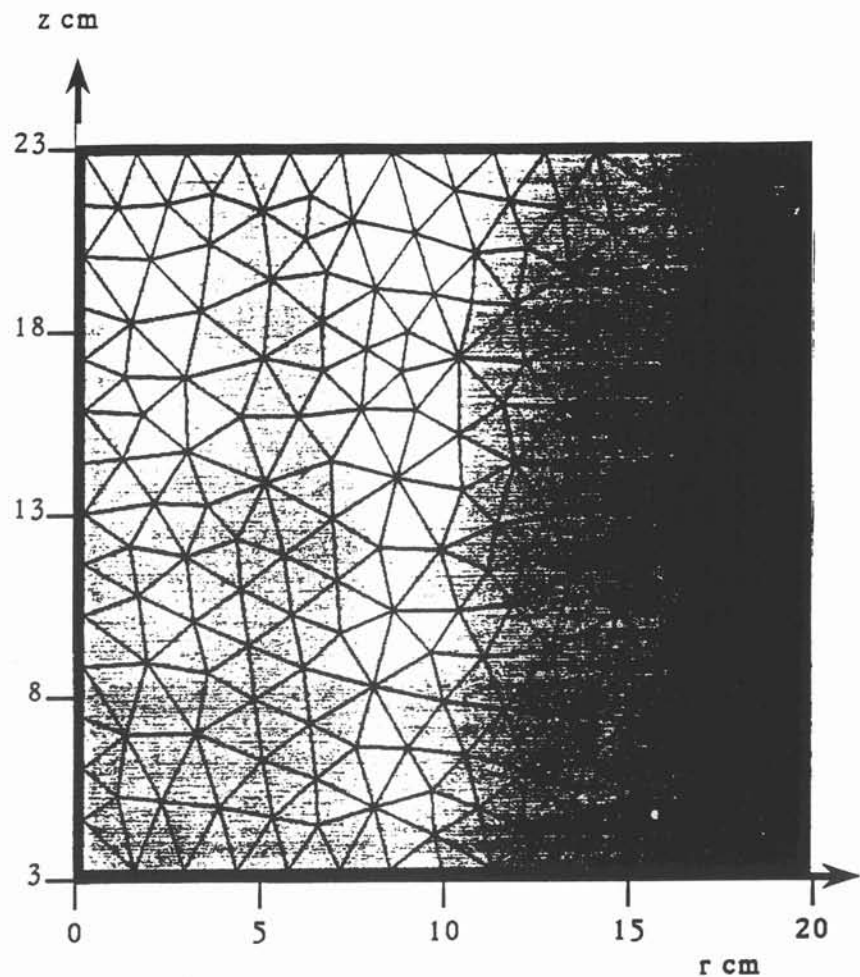


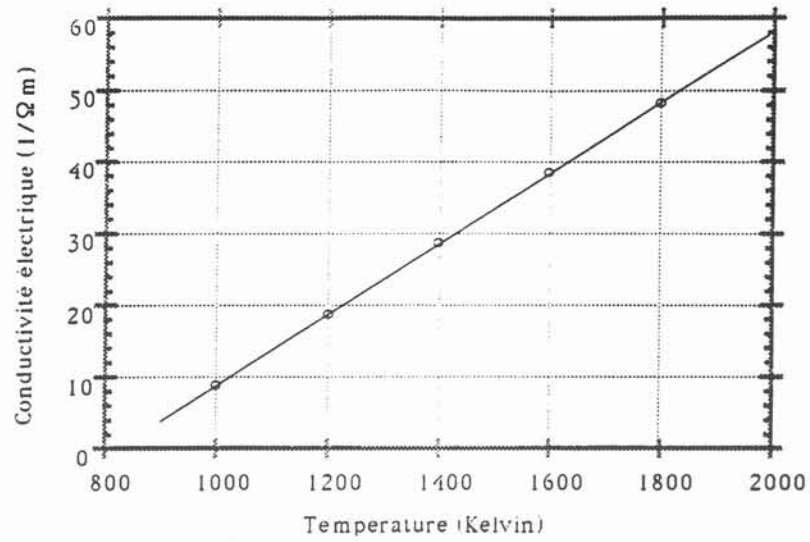
Fig. 7. — Maillage du modèle thermique de la région occupée par le verre.

[Thermal mesh of oxide domain.]

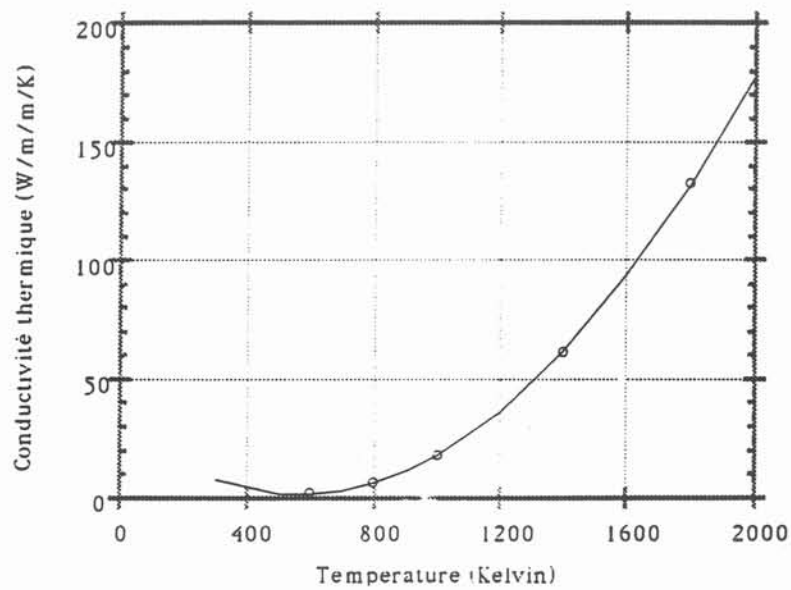
puissance ne tient compte que des paramètres de nature électromagnétique (proximité de la sole par exemple) (Fig. 10a). Or le refroidissement dû à la proximité d'éléments refroidis (creuset) ou au rayonnement influe sur la répartition des sources de puissance par l'intermédiaire de la conductivité électrique (Fig. 10b).

#### Conclusion.

En creuset froid, lorsque la conductivité électrique d'un matériau dépend fortement de la température, il est inconcevable de modéliser les phénomènes électromagnétique et thermique de manière découplée. Cependant, le couplage fort consistant à résoudre simultanément tous les phénomènes avec la même méthode numérique est pénalisant car il ne permet pas d'optimiser la place mémoire nécessaire et le temps de calcul. Cette dernière considération acquiert une importance particulière lorsque le nombre d'inconnues par nœuds augmente et



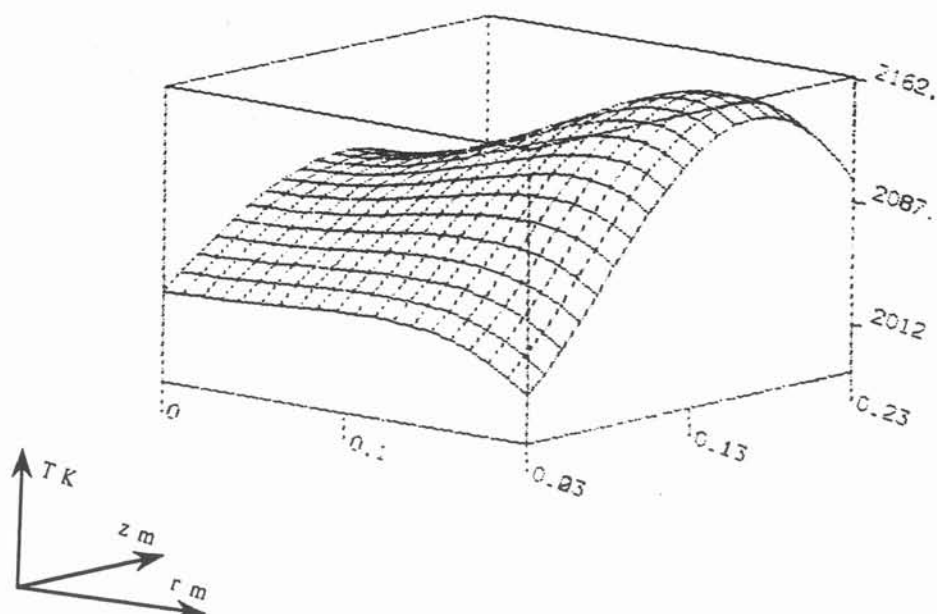
a) Conductivité électrique



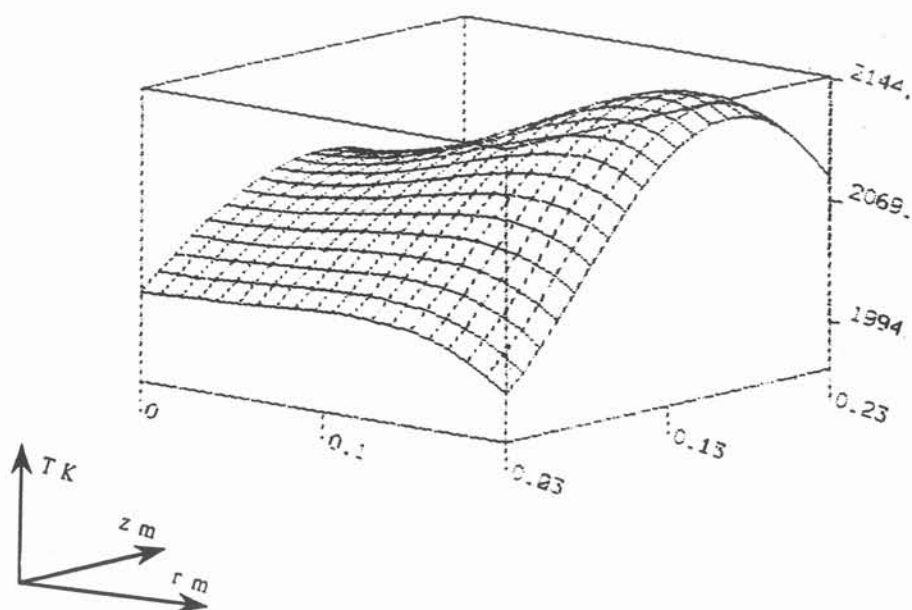
b) Conductivité thermique

Fig. 8. — Modèles des propriétés physiques : a) conductivité électrique en fonction de la température, b) conductibilité thermique en fonction de la température.

[Physical properties : a) function of the electrical conductivity with respect to the temperature ; b) function of thermal the conductivity with respect to the temperature.]



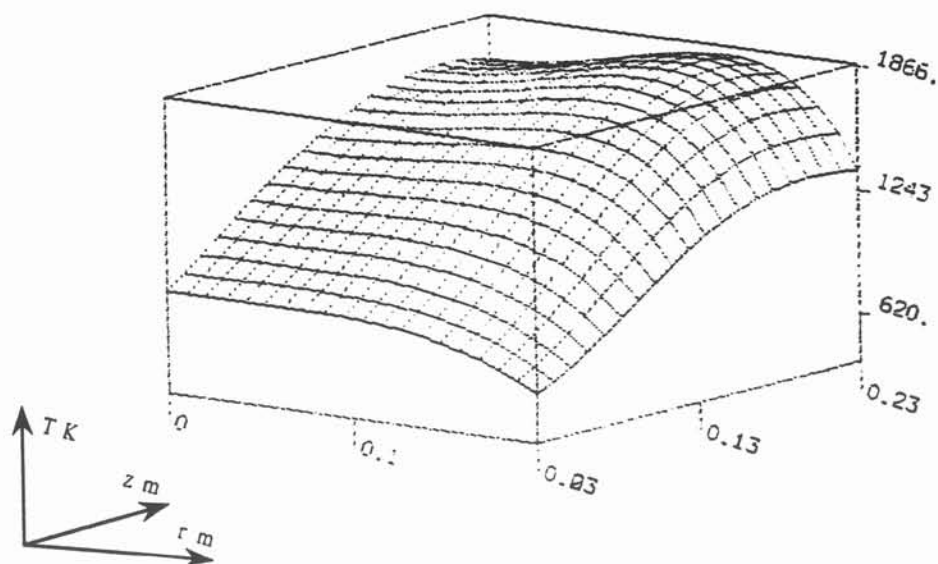
a)



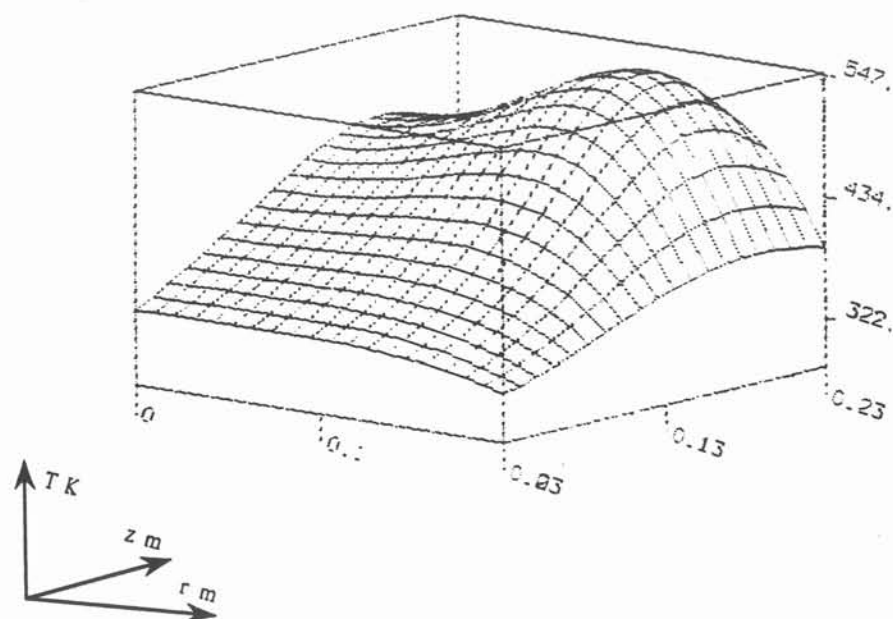
b)

Fig. 9. — Températures obtenues pour un courant inducteur de 750 A : a) sans couplage ; b) avec couplage.

[Temperature calculated with a 750 A coil current : a) without coupling ; b) with coupling.]



a)



b)

Fig. 10. — Températures obtenues pour un courant sous dimensionné de 600 A : a) sans couplage, le bain de verre s'échauffe. La puissance Joule dans le verre est de 58,5 kW ; b) avec couplage, le bain de verre fige. La puissance Joule dans le verre est de 3,5 kW.

[Temperature calculated with a 600 A coil current : a) without coupling, the glass temperature raises. The Joule power in the glass is 58.5 W ; b) with coupling, the glass temperature decreases. The Joule power in the glass is 3.5 kW.]

que les géométries étudiées sont tridimensionnelles et complexes. Le logiciel Malice offre un bon compromis. Son algorithme itératif couple la méthode intégrale et la méthode des éléments finis pour modéliser les divers phénomènes intervenant dans ce procédé.

Sa conception évolutive permet de diversifier les phénomènes résolus en couplage avec l'électromagnétisme. Il permettra à terme de dimensionner les installations creuset froid selon le matériau à élaborer, en tenant compte de ses propriétés physiques ou des exigences thermique et hydrodynamique nécessaires au cycle d'élaboration.

#### Bibliographie

- [1] MASSÉ Ph., FAUTRELLE Y., GAGNOUD A., Coupled Methods for 3D Coupled Problems 10 Years of Experiments in MHD, *IEEE Trans. Magn.*, à paraître.
- [2] GAGNOUD A., LECLERCQ I., Electromagnetic Modelling of Induction Melting Devices in Cold Crucibles, *IEEE Trans. Magn.* **24** (1988) 573-575.
- [3] MASSÉ Ph., Modelling of continuous media methodology and CAD of Finite Element Programs, INTERMAG Conference, Hamburg, F.R.G. (1984).
- [4] NAROTTAM P. Bansal, DOREMUS R. H., Handbook of glass properties (Academic Press, 1986).
- [5] SCHOLZE H., Le verre : nature, structure et propriétés, 2<sup>de</sup> édition (1980) Institut du Verre.
- [6] PATANKAR S. V., Numerical heat and fluid flow, Series in computational methods in mechanics and thermal sciences (1980).

L'application présentée dans l'article ne correspond pas à un cas étudié expérimentalement. Les paramètres (paramètres opératoires et la dimension de l'installation) permettant d'obtenir la convergence ont donc pu être ajustés librement en accord avec l'expérience acquise sur ce genre d'installation.

La grande difficulté rencontrée par l'expérimentateur sur ce type d'installation consiste justement à réussir à contrôler la température du bain fondu. Il est très difficile de trouver l'équilibre pertes-puissance injectée et la puissance délivrée par le générateur est constamment réajustée pour conserver un quasi équilibre.

Au niveau numérique, les mêmes constatations s'imposent lorsque les paramètres géométriques et la fréquence sont fixés, il est très difficile de déterminer le courant inducteur nécessaire à établir un état fondu. ce point d'équilibre est très instable et l'on passe rapidement du régime d'équilibre à un figeage ou au contraire à l'emballement de la fusion.

La solution consiste à créer un algorithme de commande qui agisse, de même que le fait l'expérimentateur, sur le courant inducteur en fonction de l'état du bain.

Ces algorithmes de prédiction-correction peuvent être mis en place dans Malice par des utilisateurs de niveau 2 (programmation d'algorithme et description de formulation). Ils fonctionnent suivant une logique inverse de ceux que nous avons utilisés dans l'article.

En effet, nous fixons le courant inducteur, puis nous constatons la différence issue de l'utilisation de la résolution itérative ou séquentielle après convergence vers un état stabilisé.

Les algorithmes transitoires de prédiction-correction vont quant à eux baser leur convergence sur l'obtention d'un état imposé par l'utilisateur et modifier le courant inducteur à chaque itération pour y parvenir. De tels algorithmes sont aussi très intéressants pour la modélisation thermique des plasmas créés en cage froide. De tels algorithmes ne sont pas indispensables à la modélisation de l'élaboration de silicium en creuset froid. Un algorithme classique de résolution itérative magnétothermique est suffisant, car le liquide se comporte en fine peau électromagnétique. L'état liquide est alors conservé pour une gamme beaucoup plus large de courant dans l'inducteur.

### **5.2.2. application à la refusion-solidification d'un alliage inoxydable**

Les deux formulations du problème thermique ont des domaines de validité différents :

- la formulation en température est adaptée aux cas d'alliages se solidifiant sur un intervalle de température.

L'hypothèse principale de ce modèle consiste à considérer que la capacité calorifique est indépendante de la température. Dans ce cas on peut écrire la relation  $h = CT$ . puis exprimer le dégagement de chaleur latente par un terme en capacité calorifique.

- la formulation en enthalpie peut, en plus des alliages, traiter le cas de corps purs ou d'eutectiques.

Une comparaison des deux formulations sur leur domaine de validité commun a été entreprise. Nous avons choisi de traiter le cas d'un barreau d'inox défilant dans un inducteur qui le refond. La fusion de zone peut être modélisée par ces deux formulations.

Les conditions aux limites d'introduction et d'extraction de matières sont identiques à celles du creuset froid et nécessitent les mêmes intégrations par parties du terme de convection.

## Comparison between two formulations of thermal transfer in continuous solidification processes

S. SERVANT, A. GAGNOUD, P. MASSE, D. DURAND  
Laboratoire MADYLAM, INP de Grenoble et CNRS  
ENSHMG BP 95 38402 Saint Martin d'Hères

### INTRODUCTION

Our object is to compare two formulations of a thermal problem with liquid-solid phase change. The solidification front is a free surface which is determined by the modelization. The problem is to know in which way the solution is sensible to the formulation. In a first step the study is limited to the solidification in stationary state in axisymmetrical geometry which corresponds to Bridgman-Stockbarger and inductive cold crucible processes. In these technologies the knowledge of heating flux and the determination of the solidification front are necessary to control the structure of the material.

The difficulty of this modelization is to take into account the latent heat. In the first formulation, the temperature is the state variable. The latent heat is modeled by an equivalent specific heat in the solidification interval. The second model is based on a formulation of heat transfer in enthalpy. The numerical models are obtained by finite element method. The formulations are taken in account the temperature dependance of the physical properties.

### MODELIZATION

Our work principally deals with the solidification process in inductive cold crucible (fig.1). In this process inductive currents have two effects : heating and melting effect and stirring effect. For the numerical modelization we use a package well adapted at this process : Malice [1]. Malice is based on coupling integral method for electromagnetic problem and finite element method for the other phenomena. This package has a generator of equations.

#### Electromagnetic model

The electromagnetic phenomenon is modeled by a boundary integral method. It is governed by the equation of diffusion of magnetic induction  $\vec{B}$ :

$$\Delta \vec{B} = -\mu \sigma \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1)$$

where  $\mu$  is the permeability and  $\sigma$  is the electrical conductivity. In this process the transport term is neglected because of small magnetic Reynolds number. Assuming that the induction field is rotating with angular frequency, variation with time and space can be separated. Electromagnetic skin depth is the characteristic length for diffusion. The working frequency is medium (>1kHz) and the inductive coil, crucible and load are electrical conductors. So the electromagnetic skin depth is small compare to the size of the device. Electromagnetic domain is 3D because of the cold crucible and is infinite because of the boundary conditions. Then, we use a boundary integral method [2]. The mesh is reduced to the surface of electrically active parts. The directions of the currents are imposed. In this formulation the unknowns are two complex state variables (density of current and electrical potential). The system is linear.



### Thermal model

The thermal domain  $\Omega$  is limited to the ingot. The geometry of this one is axisymmetrical and complex because of the free surface of the liquid. The thermal problem introduces non linearity. Consequently, the use of finite element method is suitable [3]. For the modelization of the solidification two formulations can be used : a formulation in temperature, or a formulation in enthalpy, [4],[5].

### *Model in temperature*

The partial equation of thermal phenomenon in Eulerian formulation is the following :

$$\rho C_p \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Q_{th} - \Delta H \quad (2)$$

where  $\rho$  is the density,  $C_p$  is the specific heat,  $T$  is the temperature,  $\vec{U}$  is the velocity of the withdrawing,  $k$  is the thermal conductivity,  $Q_{th}$  is the density of Joule's power,  $\Delta H$  is the latent heat of phase change. An equivalent specific heat capacity  $C_{pce}$  dependent on temperature is used to represent the latent heat of phase change.

$$\Delta H = \rho C_{pce} \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}} T \quad (3)$$

In the case of the cold crucible technology, heat exchanges have three origins : the conductive mode, the convective mode and the radiative mode (fig. 2). The radiation at infinite takes place on the surface of the liquid metal. We have an imperfect contact between the cold crucible and the ingot. The dissipated power is determined by analogy to a convective flux.

The numerical formulation is obtained by the Galerkin's method. The weighting functions  $\alpha_i$  are the same as the element interpolation functions. We use Green's theorem to take into account the boundary conditions. So the finite element formulation is :

$$\begin{aligned} & - \iint_{\Omega} \rho C_p \vec{\text{grad}}(\alpha_i) \cdot \vec{U} T \, r \, dr \, dz - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{\text{grad}}(T) \cdot \vec{U} T \, r \, dr \, dz \\ & - \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{\text{grad}}(T) \cdot \vec{U} T \, r \, dr \, dz + \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}}(\alpha_i) \cdot \vec{\text{grad}}(T) \, r \, dr \, dz + \int_{\Gamma} \alpha_i h T \, r \, dl \\ & + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_{pce} \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}}(T) \, r \, dr \, dz + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon_r \sigma_{sb} T^4 \, r \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U} \cdot \vec{n}_{out} T \, r \, dl \\ & = \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} \, r \, dr \, dz - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_w \cdot \vec{n}_{in} T_{in} \, r \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i h T_r \, r \, dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon_r \sigma_{sb} T_r^4 \, r \, dl \end{aligned}$$

where  $T_r$  is the room temperature,  $T_{in}$  is the temperature of input material,  $h$  is the exchange factor,  $\epsilon_r$  is the emissivity,  $\sigma_{sb}$  is the Stefan-Boltzmann constant and  $\vec{n}$  is the unit normal vector at the surface  $\Gamma$  bounding the domain  $\Omega$ . The system is non linear. It is solved by Newton-Raphson's method.

### *Enthalpy model*

The partial differential equation is :

$$\rho \vec{U} \cdot \vec{\text{grad}}(H) = \text{div}(k \vec{\text{grad}} T) + Q_{th} \quad (4)$$



H is the sum of sensible enthalpy and latent heat. The boundary conditions are the same. The finite element formulation is :

$$\begin{aligned}
& - \iint_{\Omega} \rho \vec{\text{grad}}(\alpha_i) \cdot \vec{U} H \text{ r dr dz} - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H} \vec{\text{grad}}(H) \cdot \vec{U} H \text{ r dr dz} + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U} \cdot \vec{n}_{\text{out}} H \text{ r dl} \\
& + \iint_{\Omega} k \frac{\partial T}{\partial H} \vec{\text{grad}}(\alpha_i) \cdot \vec{\text{grad}}(H) \text{ r dr dz} = \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{\text{th}} \text{ r dr dz} - \int_{\Gamma} \alpha_i h T \text{ r dl} \\
& - \int_{\Gamma} \alpha_i \varepsilon_r \sigma_{\text{sb}} T^4 \text{ r dl} + \int_{\Gamma} \alpha_i h T_r \text{ r dl} + \int_{\Gamma} \alpha_i \varepsilon_r \sigma_{\text{sb}} T_r^4 \text{ r dl} - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U}_w \cdot \vec{n}_{\text{in}} H_{\text{in}} \text{ r dl}
\end{aligned}$$

T is considered as a property which depends on enthalpy. The system is non linear and solved by Newton-Raphson's method.

## RESULTS

We present a comparison between these two formulations for an inox alloy in inductive process. The physical properties and the electrical conditions are given in the table 1. The solidification range is [1694K,1740K]. The curve T(H) is given on figure 3.

	$\rho$ kg/m	$C_p$ J/kg/K	$k$ W/m/K	$\sigma$ ( $\Omega \text{ m}$ ) <sup>-1</sup>	$U$ m/s	$f$ kHz	$P$ kW
Inox	7000	695	35	$8 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^{-4}$	20	8,7

Table 1

The results obtained by the two formulations are in good agreement (fig.4). It is important to notice that the model in temperature offers a better convergence than the enthalpy model. In the temperature model the fusion of the entrance material is not always taken into account. At low Peclet number enthalpy model cannot be used.

## CONCLUSION

Two formulations of thermal problem are given. Their validity domains are different. When it is possible to applied these two formulations they are in good agreement. Thermal model can be applied at static and stationary state. Enthalpy model can be applied for pure material but some problems of numerical instabilities appear.

## REFERENCES

- [1] SERVANT S., SAUMABERE D., GAGNOUD A., DU TERRAILL COUVAT Y. (1992), Numelec'92 : Méthodes Numériques en Electromagnétisme 17-19 mars, Grenoble.
- [2] GAGNOUD A., LECLERCQ I. (1988), IEEE Transactions on Magnetics, Vol.24, n°1, 573-575.
- [3] GAGNOUD A., MAESTRALI B., MASSE Ph. (1991), Eur. J. Mech., B/Fluids, n°5, 552-562.
- [4] POIRIER D., SALCUDEAN M. (1988), J. of heat Transfer, Vol. 110, 562-570.
- [5] VOLLER V.R., CROSS M., MARKATOS N.C. (1987), Int. J. for Numerical Methods in Engineering, Vol. 24, 271-284.

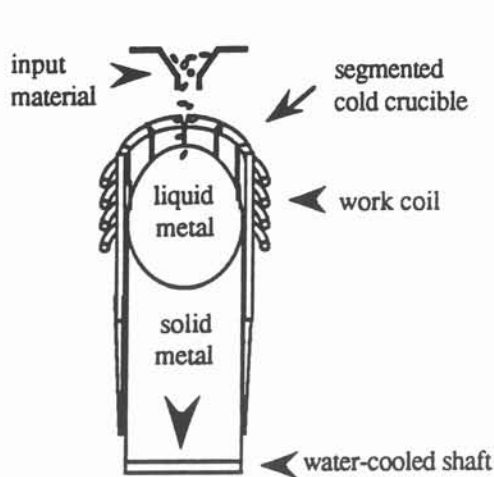


Figure 1 : Cold crucible device.

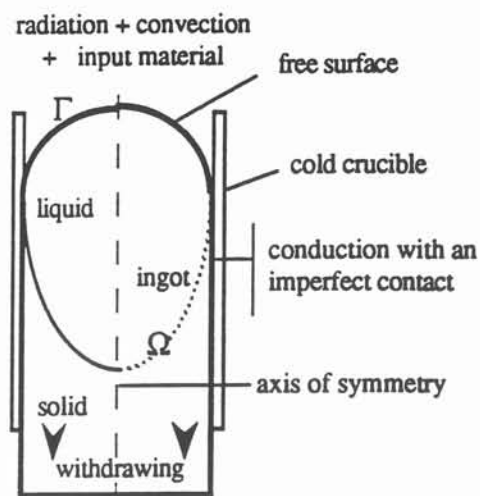


Figure 2 : Boundary conditions of the thermal problem.

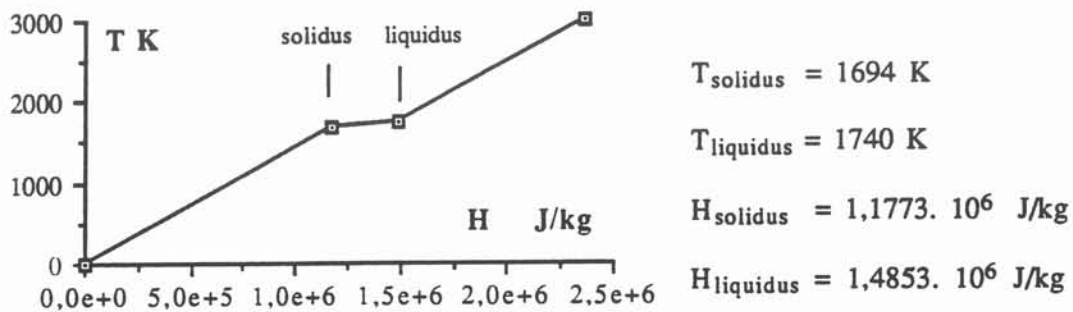


Figure 3 : Curve T(H) for inox alloy

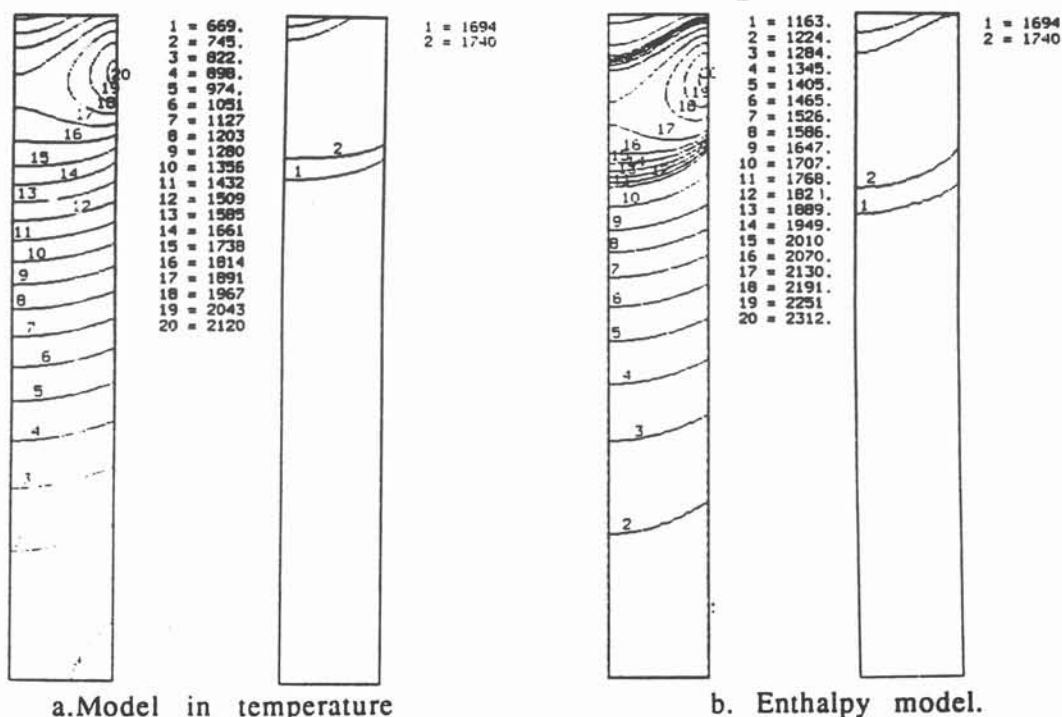


Figure 4 : Repartition of the temperature (K)

### 5.2.2.1. prise en compte des changements d'état

#### a) modélisation du front de fusion

La formulation en température ne prend en compte un changement d'état que lorsque l'intervalle de température ( $T_s, T_l$ ) vérifie :

$$\frac{TL-TS}{\|\vec{\text{grad}}T\|} >> \Delta_{\text{maille}}$$

avec  $\Delta_{\text{maille}}$  taille caractéristique de maille

Cette condition n'est pas forcément vérifiée pour le front de fusion si l'alimentation en matière est effectuée par des copeaux.

A cause du brassage, la température du bain est pratiquement isotherme, légèrement supérieure à  $T_f$ .

La couche formée des copeaux en train de fondre est très fine, surtout si la puissance Joule dissipée dans l'épaisseur de peau est importante. Il arrive parfois (vitesse de tirage faible) que l'épaisseur de cette couche soit inférieure à la distance entre deux noeuds. Dans ce cas, le caractère endothermique de la fusion ne sera pas pris en compte. Seul restera le refroidissement dû au flux de matière froide (terme de convection en surface).

Le front de fusion étant pratiquement confondu avec la surface du dôme, il est impensable de considérer que la solution à ce problème se trouve dans l'affinement du maillage.

Afin de pallier à l'insuffisance du modèle, nous avons inséré dans la formulation un terme de flux en surface. L'absorption de chaleur peut, après estimation, être placée sous la forme d'un flux négatif sur toute la surface du dôme.

Cette solution artificielle n'est envisageable que lorsque les copeaux restent en surface pour fondre (cas du silicium). Elle ne l'est plus si les copeaux sont incorporés au métal liquide et fondent dans le coeur du dôme.

Pour des raisons de stabilité numérique, la forme du flux de chaleur surfacique sera un créneau. Ainsi la variation du flux jouera sur le gradient de l'inconnue et non sur l'inconnue elle-même.

#### b) gradients à proximité du front

Les résultats comparatifs obtenus avec les deux formulations, que ce soit en fusion de zone ou en creuset froid montrent un bon accord. Pourtant on observe quelques différences au niveau des fronts.

Avec la formulation en température, les isothermes sont étalées régulièrement. Avec la formulation en enthalpie, on observe de forts gradients dans le liquide au niveau des fronts de fusion et de solidification.

Dans la formulation en température, la distribution des isothermes dans l'intervalle de solidification dépend du modèle de capacité calorifique utilisé. Le modèle que nous avons utilisé étale le dégagement de chaleur latente suivant une gaussienne, ce qui est stable numériquement. Nous aurions également pu utiliser des lois classiques de type règle des Levier ou Scheil Gulliver. Les isothermes se seraient alors rapprochés du liquidus.

Dans la formulation en enthalpie, le dégagement de chaleur latente est plus réaliste.

### 5.2.2.2 stabilité numérique

La formulation en température ne pose pas de problème de convergence. Pour les forts Péclet, un décentrage amont est utilisé.

La formulation en enthalpie pose quant à elle de sérieux problèmes de convergence. Dans le cas des alliages et pour des vitesses de tirage importantes, nous avons réussi à réduire les

problèmes d'oscillation et à améliorer la convergence en augmentant le nombre de points d'intégration par maille.

Pourtant, le cas des corps purs n'est pas encore résolu, aussi nous ne présenterons aucun résultat sur le silicium avec cette formulation.

### 5.3 Conclusion

Nous avons conçu le logiciel Malice pour répondre aux exigences des matériaux dont les propriétés varient fortement avec la température. La structure de ce logiciel a été particulièrement réfléchi afin qu'il puisse évoluer facilement avec ses logiciels de base Ophélie et Flux Expert. Ses bases d'équations, de propriétés physiques et d'algorithmes ne le cantonnent pas à la résolution magnéto-thermique, d'autres phénomènes peuvent être couplés à l'électromagnétisme.

Ainsi, j'espère que le logiciel ne deviendra pas trop vite obsolète et impossible à maintenir comme cela est souvent le cas des codes construits pour une application donnée.

Les applications développées dans ce mémoire montrent l'intérêt du couplage. Elles montrent également ses faiblesses. L'algorithme de régulation en puissance est une amélioration nécessaire pour l'application aux verres et aux gaz plasmagènes. Il simplifierait également l'étude de variation des paramètres opératoires.

Les deux formulations du problème thermique ont donné lieu à des comparaisons intéressantes sur de l'inox. Je regrette de ne pas avoir eu le temps de mener à son terme le développement du modèle en enthalpie, mais ce dernier est repris sur le cas des corps purs, et en particulier du silicium, par Marc Anderhuber.



## **Chapitre 7**

## **Conclusion**



Au cours de cette étude, la technique du creuset froid inductif a été adaptée pour permettre l'élaboration de silicium multicristallin à usage photovoltaïque. Nous avons développé pour cela un programme expérimental d'essais sur un pilote de dimensions semi industrielles et une modélisation numérique des phénomènes électromagnétique et thermique intervenant en cours d'élaboration.

L'étude expérimentale a permis tout d'abord d'étudier le comportement du silicium, matériau semiconducteur, en creuset froid inductif. La connaissance des particularités du silicium nous a permis de mettre au point une méthode de préchauffage et de tirage puis des creusets spécifiques au matériau. Un effort particulier a porté sur le refroidissement de la billette et l'addition d'un manchon de détensionnement en sortie du creuset a limité le gradient thermique. Guidés par les mesures électriques et thermiques en cours d'essai, nous avons défini les conditions opératoires pour chaque dispositif d'essai. Des billettes non fissurées de diamètre 102 mm et de section carrée 60 mm x 60 mm ont été élaborées.

La structure de solidification des billettes est colonnaire. L'orientation des grains suit les lignes de flux de chaleur. Les macrographies et les micrographies ont mis en évidence un mécanisme de sélection en cours de croissance, mécanisme valable en croissance dendritique. L'augmentation de la taille de grain résulte de l'extension latérale de l'arborescence des grains les plus favorablement orientés.

Les analyses chimiques et électriques du matériau n'ont pu être effectuées au cours de cette étude. Les tous premiers résultats sont contradictoires. Pourtant, les mesures de longueur de diffusion soulignent l'importance des dislocations qui sont très nombreuses dans le silicium creuset froid.

La modélisation numérique du procédé a été abordée par l'analyse des phénomènes physiques mis en jeu. Elle a abouti à la création d'un logiciel multiméthodes, Malice, s'appuyant sur les bases logicielles du laboratoire : Ophélie pour l'électromagnétisme et Flux Expert pour la thermique. Notre principal apport a consisté à réaliser une interface évolutive entre les deux méthodes numériques, puis à créer des macro-algorithmes de résolution et les formulations par éléments finis du problème thermique.

La forte variation de la conductivité électrique avec la température est bien prise en compte par l'algorithme de résolution itératif magnéto-thermique. L'application à l'élaboration d'oxyde en creuset froid montre l'intérêt de ce couplage.

Deux formulations par éléments finis du problème thermique ont été définies. La première utilise l'enthalpie comme inconnue et le dégagement de chaleur latente est modélisé par une capacité calorifique équivalente. La seconde qui utilise l'enthalpie globale est une formulation bien adaptée au cas des corps purs. Des problèmes de stabilité numérique n'ont pas permis de traiter le cas du silicium avec cette formulation, mais l'application aux aciers inoxydables en montre l'intérêt.

La modélisation numérique de l'élaboration en creuset froid inductif a permis de montrer l'influence des paramètres opératoires indépendamment les uns des autres. La nouveauté a consisté à comparer l'effet de la fréquence à puissance constante dans le silicium. L'étude de la position d'essai a permis de retrouver les valeurs de puissance estimées par bilan calorimétrique. Dans les approximations évoquées, le champ de température apporte des informations suggestives.



Le projet se poursuit par deux thèses. La première, concernant l'étude expérimentale du procédé, est effectué par Gilles Dour, boursier Cifre Photowatt. Je pense qu'à ce stade, l'amélioration du dispositif de mesures en cours d'essais est nécessaire. Il me paraît important de connaître la température dans la billette ainsi que de corréler la puissance au gradient imposé dans le manchon de détensionnement. Le contrôle du refroidissement de la billette sera alors amélioré et la densité de défauts diminuera. Alors seulement les extrapolations en tailles pourront être définies. D'autres dispositifs de contrôle du refroidissement sont à envisager, comme par exemple l'emploi d'un second inducteur à haute fréquence qui induirait directement dans le solide.

Marc Anderhuber prend la suite du développement du modèle numérique. La première étape de ce développement doit consister à rendre le maillage électromagnétique évolutif afin de pouvoir déplacer la frontière fine et grande peau au cours du calcul. Lorsque le modèle en enthalpie pourra être appliqué au silicium, il me semble important d'orienter l'étude suivant deux axes. Le premier concerne la détermination des contraintes thermiques qui provoquent la fissuration des billettes et la seconde l'étude de modèles micro/macro de solidification.

## **Références bibliographiques**



- [1] D.R. Hamilton, R.G. Seidensticker, J. of Appl. Phys. 31 (1960) 1165
- [2] P. Hicter, J.C. Mathieu, F. Durand, E. Bonnier, J. Chimie Physique, 68 (1971) 686
- [3] O. Raanes, O. Sunde, Proc conf. Silicon for Chemical Industry, Geiranger, Norway, H.A. Oye, H. Rong ed (1992) 53
- [4] M. Orgeret, Les piles solaires : le composant et ses applications . (1985) Ed Masson
- [5] P. Lay, thèse de docteur ingénieur de l'université de Caen, (1987)
- [6] Kurz et Fisher, fundamentals of solidification (1989)
- [7] A. Laugier, A. Roger, Les photopiles solaires techniques et documentation
- [8] M. Garnier, I. Leclercq, P. Paillere, J.F. Wadier, Proc. Sixth Int. Iron and Steel Congress, Nagoya, Japan, ISIJ (1990) 260
- [9] J.F. Wenckus, W.P. Menashi, Ceres Corp. RADC-TR-82-171
- [10] T.F. Ciszek, J. Electrochem. Soc. 132 (1985) 963
- [11] K. Kaneko, T. Misawa, K. Tabata, Proc. Int. PVSEC -5, Kyoto, Japan (1990) 201
- [12] M. Sonnentrucker, P. Colpo, J. Driole, F. Durand, le vide, les couches minces 261, (1992) 10-12
- [13] Lucas, techniques de l'ingénieur
- [14] I. Leclercq, thèse de docteur ingénieur INPG (1989) Grenoble
- [15] P. Andonov, revue Phys. Appl. 17 (1959) 657
- [16] D. Walton, B. Chalmers, Trans Met Soc. AIME 215 (1959) 447
- [17] A. Gagnoud, thèse de docteur ingénieur INPG (1986) Grenoble
- [18] P. Masse, Y. Fautrelle, A. Gagnoud, Coupled method for 3D coupled problems 10 years of experiments in MHD à paraître dans IEEE Trans Magn.
- [19] B. Maestralli, thèse de docteur ingénieur INPG (1990) Grenoble
- [20] Ackermann Patrice, Thèse de docteur ingénieur EPFL (1983) Lausanne
- [21] Duzeaux M., Jacob G., Appl Phys Letters 40 (1982) 790
- [22] Bornside D.E. Kinney T.A. Brown R.A., J of Cryst Growth 108 (1991) 779-805
- [23] Maroudas D. Brown R.A., J of Cryst Growth 108 (1991) 399-415
- [24] Motakev S., J of Cryst Growth 114 (1991) 47-58
- [25] Jordan S. Caruso R. Von Neida A.R., Bell syst Techn J 59 (1980) 593
- [26] Tsivinsky, Kristall and Techniks 10-1 (1975) 5-35
- [27] Billig. E, Proc Roy Soc A 235, 37 (1956)
- [28] Indenbom V.L., Kristallographya 2, 594
- [29] Boussant-Roux Yves, Thèse de docteur ingénieur INPG (1990) Grenoble
- [30] London A.L, Seban R.A., Rate of ice formation, transaction ASME 64, 771-778 (1943)
- [31] Poirier D, Salcudean M, J. of Heat Transfer, vol 110, 562-570 (1988)
- [32] Patankar S.V., Computational heat transfer and fluid flow, Mc Graw Hill book company 1980
- [33] Rappaz M, Micro/macrosopic modelling of solidification , cours EPFL 1989



## **Annexes**



## ANNEXE 1

### METHODE DU DECREMENT LOGARITHMIQUE

Cette méthode permet de mesurer les valeurs de résistance et d'inductance totales.

Un banc de condensateurs est chargé sous une tension continue. Le signal de décharge (figure 1) dans le circuit oscillant constitué du coffret de condensateurs en série avec l'ensemble inducteur-creuset-charge est observé à l'oscilloscope (figure 2).

Ce signal est la représentation d'une équation de la forme :

$$V = V_0 e^{-(R/2L)t} \cos(\omega t + \phi)$$

où R et L sont respectivement la résistance et l'inductance totales ramenées au primaire de l'installation et  $\omega$  la pulsation de résonance, qui se réduit dans la majorité des cas à :

$$\omega = 1 / \sqrt{LC}$$

La mesure sur le signal observé de la période T et de la décroissance des amplitudes entre deux points séparés par n périodes permettent de déterminer l'impédance de l'installation :

$$L = \frac{1}{C \omega^2} = \frac{T^2}{4.C.\pi^2}$$

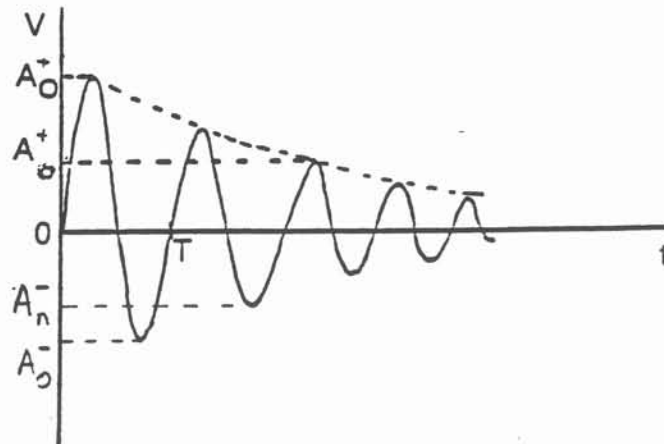
$$R = \frac{L}{2} \frac{f}{n} \text{ Log} \left( \frac{A_{0-} + A_{0+}}{A_{n-} + A_{n+}} \right)$$

$A_{0-}$ ,  $A_{0+}$ ,  $A_{n-}$ ,  $A_{n+}$  étant définis sur la figure 2.

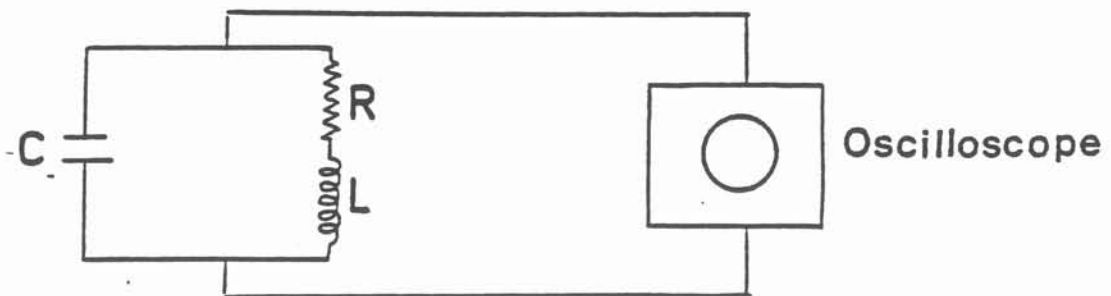
Cette méthode est très simple d'emploi, mais présente cependant quelques limitations :

\* elle n'est pas utilisable en cours de chauffage, puisqu'il est impossible de brancher l'alimentation continue sur le coffret de condensateurs lorsque le générateur fonctionne, sous peine de détérioration. Pour faire des comparaisons sur des essais en cours de chauffage, il faut donc arrêter le générateur, ce qui entraîne, à cause du refroidissement qui suit, une légère





**Figure 1** : Signal de décharge des condensateurs



**Figure 2** : Montage du décrétement logarithmique

modification des propriétés physiques des matériaux chauds, et donc une imprécision dans la mesure.

\* elle ne donne que les valeurs globales  $R_t$  et  $L_t$  du circuit, et pas les valeurs de résistance de chacun des éléments qui le constituent..

Cette méthode est cependant très utilisée, notamment pour mesurer l'impédance équivalente des circuits.



## ANNEXE 2

**Détermination de la localisation du projeté orthogonal P d'un point Q sur une surface.**

Les coordonnées du point P s'écrivent dans l'élément de référence  $U_p$  et  $V_p$  telles que :

$$X_p = \sum_k \alpha_k (U_p, V_p) X_k$$

$$Y_p = \sum_k \alpha_k (U_p, V_p) Y_k$$

$$Z_p = \sum_k \alpha_k (U_p, V_p) Z_k$$

Les inconnues sont  $U_p$  et  $V_p$ . Chercher P équivaut à trouver  $U_p$  et  $V_p$  tels que PQ soit minimale. ( $X_Q, Y_Q, Z_Q$ ) sont évidemment connus. Posons  $d = PQ$ .

Il faut résoudre le système  $\frac{\partial d^2}{\partial u} = 0$

$$\frac{\partial d^2}{\partial v} = 0$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial d^2}{\partial u} = & - 2 (X_Q - \sum_k \alpha_k (u, v) X_k) \sum_k \frac{\alpha_k(u, v)}{\partial u} X_k \\ & - 2 (Y_Q - \sum_k \alpha_k (u, v) Y_k) \sum_k \frac{\alpha_k(u, v)}{\partial u} Y_k \\ & - 2 (Z_Q - \sum_k \alpha_k (u, v) Z_k) \sum_k \frac{\alpha_k(u, v)}{\partial u} Z_k \end{aligned}$$

Pour  $\frac{\partial d^2}{\partial v}$  on remplace  $\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}$  par  $\frac{\partial \alpha_k}{\partial v}$

On résout le système par la méthode de Newton-Raphson. Rappelons que cette méthode permet de résoudre le système  $f(u, v) = 0$  par itérations de la manière suivante :

$$g(u, v) = 0$$

$$f(u_{n-1} + \Delta u, v_{n-1} + \Delta v) = f(u_{n-1}, v_{n-1}) + \left(\frac{\partial f}{\partial u}\right)_{u=u_{n-1}} \Delta u + \left(\frac{\partial f}{\partial v}\right)_{v=v_{n-1}} \Delta v = 0$$

En développant de même g, on obtient le système :

$$(u_n - u_{n-1}) \left(\frac{\partial f}{\partial u}\right)_{u=u_{n-1}} + (v_n - v_{n-1}) \left(\frac{\partial f}{\partial v}\right)_{v=v_{n-1}} = -f(u_{n-1}, v_{n-1})$$

$$(u_n - u_{n-1}) \left( \frac{\partial g}{\partial u} \right)_{u=u_{n-1}} + (v_n - v_{n-1}) \left( \frac{\partial g}{\partial v} \right)_{v=v_{n-1}} = -g(u_{n-1}, v_{n-1})$$

On en tire  $u_n$  et  $v_n$  en fonction de  $u_{n-1}$  et  $v_{n-1}$  et on réitère la procédure jusqu'à la convergence.

Dans notre cas on pose  $f(u,v) = -\frac{1}{2} \frac{\partial d^2}{\partial u}$

$$g(u,v) = -\frac{1}{2} \frac{\partial d^2}{\partial v}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial u} = & -\sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} X_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} X_k + (X_Q - \sum_k \alpha_k X_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u^2} X_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Y_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Y_k + (Y_Q - \sum_k \alpha_k Y_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u^2} Y_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Z_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Z_k + (Z_Q - \sum_k \alpha_k Z_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u^2} Z_k \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial v} = & -\sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} X_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} X_k + (X_Q - \sum_k \alpha_k X_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v \partial v} X_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Y_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Y_k + (Y_Q - \sum_k \alpha_k Y_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v \partial u} Y_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Z_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial u} Z_k + (Z_Q - \sum_k \alpha_k Z_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v \partial u} Z_k \end{aligned}$$

$$\frac{\partial g}{\partial u} = \frac{\partial f}{\partial v}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial g}{\partial v} = & -\sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} X_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} X_k + (X_k - \sum_k \alpha_k Z_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v^2} X_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Y_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Y_k + (Y_k - \sum_k \alpha_k Y_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v^2} Y_k \\ & - \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Z_k \sum_k \frac{\partial \alpha_k}{\partial v} Z_k + (Z_k - \sum_k \alpha_k Z_k) \sum_k \frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v^2} Z_k \end{aligned}$$

On connaît  $\alpha_k(u)$ ,  $\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}$ ,  $\frac{\partial \alpha_k}{\partial v}$  pour chaque élément, au pas  $n-1$  : ces valeurs sont données classiquement pour les polynômes d'interpolation connus en éléments finis. Mais on ne connaît pas  $\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u^2}$ ,  $\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v^2}$ ,  $\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u \partial v}$

Pour calculer ces valeurs, on utilise un schéma de différences finies :

$$\left(\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u^2}\right)_{n-1} = \frac{\left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}\right)_{n-1} - \left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}\right)_{n-2}}{u_{n-1} - u_{n-2}}$$

$$\left(\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial u \partial v}\right)_{n-1} = \frac{\left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}\right)_{n-1} - \left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial u}\right)_{n-2}}{v_{n-1} - v_{n-2}}$$

$$\left(\frac{\partial^2 \alpha_k}{\partial v^2}\right)_{n-1} = \frac{\left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial v}\right)_{n-1} - \left(\frac{\partial \alpha_k}{\partial v}\right)_{n-2}}{v_{n-1} - v_{n-2}}$$

On a ainsi tous les éléments pour calculer  $u$  et  $v$  au pas  $n$ .

Après convergence on obtient  $u$  et  $v$  tels que  $f(u,v) = 0$   
 $g(u,v) = 0$

c'est à dire  $U_p$  et  $V_p$ , les coordonnées dans l'élément de référence de  $P$ , point tel que  $PQ$  soit minimale. Si  $U_p$  et  $V_p$  sont tels que  $P$  est à l'extérieur de l'élément, alors on passe à un autre élément où on refait le calcul. Si on trouve un élément tel que  $P$  est à l'intérieur, alors  $P$  est le projeté orthogonal de  $Q$ . On peut alors calculer la distance  $Q$  :

$$d = [(\sum_k \alpha_k(U_p, V_p) X_k - X_Q)^2 + (\sum_k \alpha_k(U_p, V_p) Y_k - Y_Q)^2 + (\sum_k \alpha_k(U_p, V_p) Z_k - Z_Q)^2]^{1/2}.$$

Une fois tous les éléments de surface balayés, il suffit de choisir le point  $P$  correspondant à  $d$  minimale. Ensuite, un simple produit scalaire permet de déterminer le signe de la distance : positif si le point  $Q$  est l'intérieur du domaine, négatif sinon.



### ANNEXE 3 : Expression des matrices jacobiennes

#### Formulation en température

La forme faible :

$$\begin{aligned}
 & \iint_{\Omega} \alpha_i \rho (C_p + C_{pce}) \vec{U}_b \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j ds - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \sum \alpha_j T_j ds \\
 & - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \sum \alpha_j T_j ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \sum \alpha_j T_j ds \\
 & + \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_{pce} \vec{U}_t \sum T_j \vec{\text{grad}} \alpha_j ds \\
 & + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \sum \alpha_j T_j dl + \int_{\Gamma} \alpha_i h \sum \alpha_j T_j dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T_{n-1}^3 \sum \alpha_j T_j dl \\
 & = \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} ds - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e T_e dl + \int_{\Gamma} \alpha_i h T_a dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T_a^4 dl
 \end{aligned}$$

matrice jacobienne :

$$\begin{aligned}
 & \iint_{\Omega} \alpha_i \rho (C_p + C_{pce}) \vec{U}_b \vec{\text{grad}} \alpha_k ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial T_k} (C_p + C_{pce}) \vec{U}_b \vec{\text{grad}} T_{n-1} ds \\
 & \quad + \iint_{\Omega} \alpha_i \alpha_k \rho \frac{\partial (C_p + C_{pce})}{\partial T_k} \vec{U}_b \vec{\text{grad}} T_{n-1} ds \\
 & - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \alpha_k ds - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial T_k} C_p \vec{U}_t T_{n-1} ds \\
 & \quad - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \alpha_k \rho \frac{\partial C_p}{\partial T_k} \vec{U}_t T_{n-1} ds \\
 & - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial^2 \rho}{\partial T^2} C_p \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k T_{n-1} ds \\
 & - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k T_{n-1} ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \vec{\text{grad}} \alpha_k T_{n-1} ds \\
 & - \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial^2 C_p}{\partial T^2} \rho \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k T_{n-1} ds \\
 & - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} \frac{\partial C_p}{\partial T} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k T_{n-1} ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial C_p}{\partial T} \rho \vec{U}_t \vec{\text{grad}} \alpha_k T_{n-1} ds \\
 & + \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \vec{\text{grad}} \alpha_k ds + \iint_{\Omega} \frac{\partial k}{\partial T} \alpha_k \vec{\text{grad}} \alpha_i \vec{\text{grad}} T_{n-1} ds \\
 & + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho C_{pce} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} \alpha_k ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_{pce} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k ds \\
 & \quad + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \frac{\partial C_{pce}}{\partial T} \vec{U}_t \vec{\text{grad}} T_{n-1} \alpha_k ds \\
 & + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \alpha_k dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \alpha_k T_{n-1} dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \frac{\partial C_p}{\partial T} \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \alpha_k T_{n-1} dl \\
 & + \int_{\Gamma} \alpha_i h \alpha_k dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \frac{\partial h}{\partial T} \alpha_k dl + 4 \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \epsilon \sigma T_{n-1}^3 dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \epsilon}{\partial T} \sigma T_{n-1}^4 dl
 \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
& + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial T} C_p \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e T_e dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial C_p}{\partial T} \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e T_e dl \\
& + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial h}{\partial T} T_a dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \frac{\partial \epsilon}{\partial T} \sigma T_a^4 dl
\end{aligned}$$

### Formulation en enthalpie

la forme faible :

$$\begin{aligned}
& \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} \sum \alpha_j H_j ds \\
& - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \rho \vec{U}_t \sum \alpha_j H_j ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} \sum \alpha_j H_j ds \\
& + \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \frac{\partial T}{\partial H} \sum \vec{\text{grad}} \alpha_j H_j ds + \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \sum \alpha_j H_j dl \\
& = - \int_{\Gamma} \alpha_i \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e H_e dl - \int_{\Gamma} \alpha_i h_{cv} T dl + \int_{\Gamma} h_{cv} T_a dl \\
& - \int_{\Gamma} \alpha_i \epsilon \sigma T^4 dl + \int_{\Gamma} \epsilon \sigma T_a^4 dl + \iint_{\Omega} \alpha_i Q_{th} ds
\end{aligned}$$

matrice jacobienne :

$$\begin{aligned}
& + \iint_{\Omega} \alpha_i \alpha_k \rho \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \rho \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} \alpha_k H_{n-1} ds + \iint_{\Omega} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_b \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} H_{n-1} ds \\
& - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \rho \vec{U}_t \alpha_k ds - \iint_{\Omega} \vec{\text{grad}} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_t \alpha_k H_{n-1} ds \\
& - \iint_{\Omega} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} H_{n-1} ds - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_t \cdot \vec{\text{grad}} \alpha_k H_{n-1} ds \\
& \quad - \iint_{\Omega} \alpha_i \frac{\partial^2 \rho}{\partial H_k^2} \vec{U}_t \alpha_k \vec{\text{grad}} H_{n-1} ds \\
& - \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \frac{\partial T}{\partial H_k} \vec{\text{grad}} \alpha_k ds - \iint_{\Omega} \frac{\partial k}{\partial H_k} \vec{\text{grad}} \alpha_i \frac{\partial T}{\partial H_k} \alpha_k \vec{\text{grad}} H_{n-1} ds \\
& \quad - \iint_{\Omega} k \vec{\text{grad}} \alpha_i \frac{\partial^2 T}{\partial H_k^2} \alpha_k \vec{\text{grad}} H_{n-1} ds \\
& + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \rho \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_t \cdot \vec{n}_s \alpha_k H_{n-1} dl \\
& + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \rho}{\partial H_k} \vec{U}_t \cdot \vec{n}_e H_e dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial h_{cv}}{\partial H_k} T dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial T}{\partial H_k} h_{cv} dl \\
& + \int_{\Gamma} \alpha_k \frac{\partial h_{cv}}{\partial H_k} T_a dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k \frac{\partial \epsilon}{\partial H_k} \sigma T^4 dl + \int_{\Gamma} \alpha_i \alpha_k^4 \epsilon \sigma \frac{\partial T^4}{\partial H_k} dl \\
& + \int_{\Gamma} \alpha_k \frac{\partial \epsilon}{\partial H_k} \sigma T_a^4 dl
\end{aligned}$$



Grenoble, le 18 Mai 1993

ECOLE DOCTORALE

Affaire suivie par  
MICHEL SIMEON  
Tél : 76 57 45 25

N/Réf. :

Objet :

### AUTORISATION de SOUTENANCE

Vu les dispositions de l'arrêté du **30 MARS 1992** relatif aux Etudes Doctorales

Vu les rapports de présentation de :

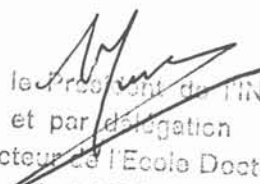
Mr CHEVRIER Professeur Ecole des Mines NANCY

Mr COEVOET Michel Chef du groupe Induction Plasmas EDF/DER MORET SUR LOING

**Mlle Sophie PLAN SERVANT**

est autorisé(e) à présenter une thèse en soutenance en vue de l'obtention du diplôme  
de **DOCTEUR de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE de GRENOBLE\*** spécialité :

**Sciences et génie des matériaux**

  
Pour le Président de l'INPG  
et par délégation  
le Directeur de l'Ecole Doctorale  
J. LACOMBE

