HAL
open science

The study of material purification using melting-solidification technic "zone melting".

Mongi Manaa

To cite this version:

Mongi Manaa. The study of material purification using melting-solidification technic "zone melting".. Sciences de l'ingénieur [physics]. Ecole Polytechnique X, 2005. Français. NNT : . pastel-00001349

HAL Id: pastel-00001349

https://pastel.hal.science/pastel-00001349v1

Submitted on 21 Sep 2010

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.

ÉCOLE POLYTECHNIQUE

المدرسة القومية للمهندسين بتونس
école nationale d'ingénieurs de tunis

Thèse de Doctorat

Présentée par

Mongi MANAA

Pour obtenir le titre de
Docteur de l'École Polytechnique

Spécialité : Mécanique

Sujet de thèse : Etude de la purification d'un matériau par fusion-solidification « Zone melting »

Laboratoires :

Ecole Polytechnique : Laboratoire de Mécanique des Solides.

Ecole Nationale d'ingénieurs de Tunis : Unité de recherche Mécanique Energétique

Directeurs de thèse : Hubert MAIGRE ; Mohamed SAFI

Date de la soutenance : 15 avril 2005

Jury composé de :

- Habibou MAITOURNAM	Président
- Chedly BRAHAM	Rapporteur
- Raynaud Martin	Rapporteur
- Habib SIDHOM	Examinateur
- Hubert MAIGRE	Examinateur
- Mohamed SAFI	Examinateur

Remerciements

Le travail de ce mémoire de thèse a été effectué en cotutelle franco-tunisienne entre l'école Polytechnique de Palaiseau au sein du laboratoire de mécanique des solides (LMS) et l'école d'ingénieurs de Tunis (ENIT), au sein de l'unité de recherche mécanique énergétique (URME).

Je remercie Messieurs P. BEREST, B. HALPEN et M. SAFI de m'avoir accueilli et permis d'effectuer ma thèse au sein du laboratoire de mécanique des solides et de l'unité de recherche Mécanique-Énergétique.

J'exprime ici toute ma reconnaissance à mes directeurs de thèse : H. MAIGRE et M. SAFI qui ont dirigé mes travaux de doctorat. Leur disponibilité, leur compétence et leur expérience ont été des soutiens précieux au long de ces années de recherche.

J'exprime mes remerciements à Monsieur H. MAITOURNAM, Professeur associé à l'école polytechnique de m'avoir pour honorer en voulant accepter de présider le jury de cette thèse.

Je tiens à adresser ma gratitude à Monsieur C.BRAHAM, Maître de conférences à l'ENSAM de Paris et Monsieur R. MARTIN, Professeur à l'INSA Lyon pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux en acceptant de les rapporter.

Ma reconnaissance va également aux examinateurs :
Monsieur H. MAITOURNAM, professeur associé à l'école polytechnique et Monsieur H. SIDHOM, professeur et directeur du LMMP (ESSTT) à Tunis

Je remercie également tous les thésards, enseignants chercheurs et toutes les personnes que j'ai côtoyés au cours de cette période de recherche.

Enfin je n'oublie pas de remercier toutes les personnes qui ont contribué directement ou indirectement à la réalisation de ce mémoire.

Table des matières

Notations 5

Introduction générale 9

I Introduction au processus de purification 13

1 Différentes méthodes de purification 15
1.1 Introduction 15
1.2 Méthodes chimiques 15
1.3 Méthodes physico-chimiques 16
1.4 Méthodes physiques 16
1.4.1 Méthodes de purification mettant en jeu la phase vapeur (Fusion à haute température et sous vide poussé) 17
1.4.2 Méthodes de purification utilisant le passage par la phase liquide 18
1.4.2.1 Solidification progressive dirigée 19
1.4.2.2 Processus de zone fondue 20
1.5 Conclusion sur les méthodes de purification 21

2 Théorie de « Zone refining » 23
2.1 Introduction 23
2.2 Équation de base pour une seule passe de zone refining 24
2.3 Limite de validité de l'équation de base 26
2.4 Avantages et inconvénients de zone fondue par rapport à la solidification progressive dirigée 27
2.5 Passages répétés d'une zone fondue 27
2.5.1 Théorie de zone refining multi passes 27
2.5.1.1 Répartition de l'impureté lors d'un second passage de la source 28
2.5.1.2 Répartition de l'impureté pour le $n^{ème}$ passage de la source 29
2.5.2 Méthode graphique de Hamming 30
2.5.3 Ultime répartition de l'impureté dans le barreau 32
2.6 Conclusion sur la théorie de zone refining 33

II Modélisation du processus de purification 35

3 Modélisation mathématique du processus de purification 37
3.1 Introduction 37
3.2 Présentation du problème 37
3.3 Hypothèses simplificatrices 39
3.4 Formulation des problèmes thermique et d'espèces 39
3.4.1 Formulation du problème thermique 40
3.4.1.1 Équation de l'énergie 40
3.4.1.2 Conditions initiales et aux limites 41
3.4.1.3 Expressions des températures solidus et liquidus (T_{soli} et T_{Liq}) 42
3.4.1.4 Fraction de la phase liquide locale f_l 43
3.4.1.5 Température de mélange 43
3.4.1.5.1 Cas général 43
3.4.1.5.2 Cas des faibles concentrations 45

3.4.2 Formulation du problème d'espèces 45
3.4.2.1 Équation de conservation des espèces chimiques 45
3.4.2.2 Conditions initiales et aux limites 46
3.5 Formulation adimensionnelle 46
3.5.1 Formulation adimensionnelle du problème thermique 47
3.5.1.1 Équation de l'énergie adimensionnelle 47
3.5.1.2 Conditions initiales et aux limites adimensionnelles 47
3.5.1.3 Expressions des températures adimensionnelles solidus et liquidus (T^{+}_{soli} et T^{+}_{Liq}) 48
3.5.1.4 Relation entre H^{+} et T^{+} 48
3.5.1.5 Fraction de la phase liquide locale f_l adimensionnelle 49
3.5.2 Formulation adimensionnelle du problème d'espèces 50
3.5.2.1 Équation des espèces adimensionnelle 50
3.5.2.2 Conditions initiales et aux limites adimensionnelles 50
3.5.3 Discussion et conclusion sur les équations adimensionnelles 50

III Étude numérique 55

4 Méthodes Numériques 55
4.1 Généralités 55
4.1.1 Nécessité d'une simulation numérique 55
4.1.2 Méthodes de simulation 55
4.2 Simulation 56
4.2.1 Discrétisation spatiale 56
4.2.1.1 Discrétisation spatiale du problème thermique 57
4.2.1.2 Discrétisation spatiale du problème de concentration 57
4.2.2 Discrétisation temporelle 59
4.2.2.1 Discrétisation temporelle du problème thermique 59
4.2.2.2 Discrétisation temporelle du problème de concentration 60
4.2.3 Stabilité des schémas numériques 60
4.2.4 Résolution numérique 61

5 Étude d'une tranche avec source immobile 65

5.1 Introduction 65
5.2 Simulation d'un cas avec un nombre de Lewis (Lews) et un rapport de coefficients de diffusion $\tilde{d}$ réels : cas de l'alliage SiGe 65
5.2.1 Coefficient de diffusion des impuretés dans le silicium liquide 66
5.2.2 Nombre de Lewis dans la phase liquide 66
5.2.3 Coefficient de diffusion des impuretés dans le silicium solide 66
5.2.4 Nombre de Lewis dans la phase solide 67
5.2.5 Données du problème 67
5.2.6 Résultats de la simulation 68
5.2.7 Conclusion 71
5.3 Effet du nombre de Lewis et du rapport de diffusion $\tilde{d}$ 72
5.3.1 Données pour la simulation 72
5.3.2 Résultats de la simulation 73
5.3.3 Conclusion 82

6 Étude en déplacement **83**
6.1 Introduction 83
6.2 Effet de la vitesse de déplacement des sources sur les champs de température et de concentration 84
6.2.1 Cas où les deux densités de flux sont égales 84
6.2.1.1 Données du problème 84
6.2.1.2 Résultats de l'étude 85
6.2.1.3 Conclusion 100
6.2.2 Cas où les deux densités de flux sont différentes 102
6.2.2.1 Données pour la simulation 102
6.2.2.2 Résultats de l'étude 102
6.2.3 Conclusion : Choix des puissances de sources et vitesse de déplacement 112
6.3 Effet de l'intensité de flux sur les champs de température et de concentration 112
6.3.1 Données pour la simulation 112
6.3.2 Résultats de l'étude 113
6.3.3 Conclusion : Choix de l'intensité de flux q^+ 122
6.4 Effet des paramètres géométriques sur les champs de température et de concentration 122
6.4.1 Effet de l'épaisseur de la tranche 122
6.4.1.1 Données pour la simulation 122
6.4.1.2 Résultats de l'étude 123
6.4.1.3 Conclusion 131
6.4.2 Effet du rapport d'aspect géométrique 132
6.4.2.1 Données pour la simulation 132
6.4.2.2 Résultats de l'étude 132
6.4.2.3 Conclusion 140
6.5 Conclusion sur la modélisation numérique 141

Conclusion générale **143**

Annexe A **145**

Annexe B **165**

Annexe C **181**

Références bibliographiques **189**

Résumé **195**

Notations

A : Rapport d'aspect géométrique
a_s : Diffusivité thermique dans le solide [m²/s]
a_l : Diffusivité thermique dans le liquide [m²/s]
C : Concentration
C_s : Concentration dans le solide
C_L : Concentration dans le liquide
C_0 : Concentration de référence
C_i : Concentration initiale
C_E : Concentration au point eutectique
C_α : Concentration au point de début du palier eutectique
C^+ : Concentration adimensionnelle
C_i^+ : Concentration initiale adimensionnelle
C_{PDEP}^+ : Concentration adimensionnelle en un point de l'axe du barreau (tête du barreau)
C_{PARR}^+ : Concentration adimensionnelle en un point de l'axe du barreau (queue du barreau)
C_{ps} : Chaleur spécifique dans le solide [J/kg.°C]
C_{pl} : Chaleur spécifique dans le liquide [J/kg.°C]
$\tilde{c}$: Rapport des chaleurs spécifiques C_{pl} / C_{ps}
D : Coefficient de diffusion chimique [m²/s]
D_S : Coefficient de diffusion chimique dans le solide [m²/s]
D_L : Coefficient de diffusion chimique dans le liquide [m²/s]
$\tilde{d}$: Rapport des coefficients de diffusion D_L / D_S
$\tilde{d}_{eff}$: Rapport des coefficients de diffusion effectif
Fo : Nombre de Fourier
f_l : Fraction de la phase liquide locale
f_s : Fraction de la phase solide locale
H : Enthalpie massique [J/kg]
H_i : Enthalpie massique initiale [J/kg]
H_0 : Enthalpie massique de référence [J/kg]
H_{fr} : Enthalpie massique maximale dans le solide [J/kg]
H^+ : Enthalpie massique adimensionnelle
H_i^+ : Enthalpie massique initiale adimensionnelle
k_0 : Coefficient de partage à l'équilibre
k : Coefficient de partage effectif
K_C : Matrice de conductivité
K_T : Matrice de conductivité
L_F : Chaleur latente [J/kg]
L : Longueur de référence [m]
L_B : Longueur du barreau [m]
L_b^+ : Longueur adimensionnelle du barreau
$Lews$: Nombre de Lewis dans le solide

$Lewl$: Nombre de Lewis dans le liquide
Le_{eff} : Nombre de Lewis effectif dans le liquide
l : Largeur de la tranche à fondre [m]
M : Masse molaire
m_s : Pente de solidus
m_l : Pente de liquidus
m_s^+ : Pente de solidus adimensionnelle
m_l^+ : Pente de liquidus adimensionnelle
M_T : Matrice de capacité
M_{c1} : Matrice de capacité
M_{c2} : Matrice de capacité
$\vec{n}$, **n** : Vecteur normale unitaire à la surface
P_{Ch} : Point situé sur l'axe du barreau cylindrique mobile avec la source
P_C : Point situé sur l'axe du barreau cylindrique mobile avec la source
P_{arr} : Position d'arrêt de la source de chaleur
q : Densité de flux de chaleur [w/m²]
q_c : Densité de flux de chaleur de la source de chauffage [w/m²]
q_f : Densité de flux extraite par la source de refroidissement [w/m²]
q_{ref} : Densité de flux de chaleur de référence [w/m²]
q^+ : Intensité de flux adimensionnelle : cas des sources (chauffage et refroidissement) même intensité
q_c^+ : Densité ou intensité de flux de chaleur adimensionnelle de la source de chauffage
q_f^+ : Densité ou intensité de flux adimensionnelle extraite par la source de refroidissement
r : Coordonnées radiales [m]
R : Rayon du barreau [m]
R^+ : Coordonnée radiale adimensionnelle
Ste : Nombre de Stefan
T : Température [°C]
T_0 : Température de référence [20°C]
T_E : Température eutectique [°C]
T_i : Température initiale [°C]
T_{fr} : Température de fusion du corps pur [°C]
T_{Soli} : Température de solidus [°C]
T_{Liq} : Température de liquidus [°C]
T_m : Température de mélange [°C]
T^+ : Température adimensionnelle
T_{Soli}^+ : Température de solidus adimensionnelle
T_{Liq}^+ : Température de liquidus adimensionnelle
T_i^+ : Température initiale adimensionnelle
T_{fr}^+ : Température de fusion adimensionnelle
T_m^+ : Température de mélange adimensionnelle

T^+_{PTR} : Température adimensionnelle en un point de la paroi du barreau lié à la source de chauffage.
T^+_{PC} : Température adimensionnelle en un point de l'axe du barreau lié à la source de chauffage.
T^+_{PDEP} : Température adimensionnelle en un point de l'axe du barreau (tête du barreau).
T^+_{P0} : Température adimensionnelle sur l'axe du barreau (extrémité : tête du barreau)
T^+_{P3} : Température adimensionnelle sur l'axe du barreau (extrémité : queue du barreau)
t : Temps [s]
t^+ : Temps adimensionnel
U^+_0 : Concentration ou activité chimique initiale adimensionnelle
U^+ : Activité chimique adimensionnelle
U^+_i : Concentration ou activité chimique initiale adimensionnelle
V_S : Vitesse de translation des sources [cm/h]
ρ : Masse volumique [kg/m^3]
x : Coordonnée cartésienne [m]
X^+ : Coordonnée cartésienne adimensionnelle
y : Coordonnée cartésienne [m]
Y^+ : Coordonnée cartésienne adimensionnelle
z : Coordonnée axiale [m]
Z^+ : Coordonnée axiale adimensionnelle
λ : Conductivité thermique moyenne
λ_S : Conductivité thermique dans le solide
λ_L : Conductivité thermique dans le liquide
$\tilde{\lambda}$: Rapport des conductivités thermiques λ_L / λ_S
φ : Flux de matière
Δr^+_M : Pas d'espace radial adimensionnel
Δt : Pas de temps [s]
ΔT^+ : Intervalle de surfusion du matériau
Δz : Largeur de la tranche à fondre [m]
Δz^+ : Largeur adimensionnelle de la tranche à fondre
Δz^+_M : Pas d'espace axiale adimensionnel
$\Delta \tau$: Pas de temps adimensionnel
$\Delta \tau_{Ther}$: Pas de temps adimensionnel pour la thermique
$\Delta \tau_{espe}$: Pas de temps adimensionnel pour les espèces

Introduction générale

Depuis des décennies la recherche des matériaux de très haute pureté intéresse de nombreux secteurs : électronique, microélectronique, nucléaire, espaces, militaire etc… Plusieurs applications nécessitent une pureté accrue afin de répondre à certains critères dont la performance et les caractéristiques dépendent du degré de purification du matériau utilisé. Dans le domaine électronique, la première technique de zone refining a été proposée et utilisée par William G.Pfann [PFAN, 58] dans les années cinquante dans le but de purifier du germanium et du silicium pour en faire des dispositifs électroniques (circuits intégrés, diodes, etc.). Dans cette technique de purification, plusieurs paramètres conditionnent et gouvernent le processus de drainage des impuretés. La maîtrise et l'efficacité de ce procédé passent par la connaissance de tous les effets de chacun des paramètres intervenant dans ce processus. Beaucoup d'études durant ces dernières années ont été effectuées afin d'optimiser la largeur de la zone fondue [HO, 96], [RODW, 89], [ROUS, 03], étudier pour quel coefficient de partage effectif la purification est meilleure [SU, 98], utiliser la fusion de zone sous plasma réactif [MORV, 84] pour étudier l'influence de la composition de ce plasma sur la purification.

Dans la présente étude que nous menons, l'objectif général est de proposer un modèle transitoire qui tient compte des effets multidimensionnels dans le procédé de purification par fusion de zone, en anglais « zone melting » ou encore « zone refining ». Les modèles existants ne traitent que le régime permanent et de plus ils simplifient la représentation géométrique au cas unidimensionnel. Ces derniers permettent de déterminer la concentration en un point d'abscisse x dans un barreau de section unitaire. Par cette modélisation, nous essayons d'étudier les effets de principaux paramètres gouvernant le processus de purification par zone fondue à savoir :

- La vitesse de translation des sources de chauffage et de refroidissement
- L'intensité de flux de chauffage
- L'intensité de flux de refroidissement
- L'épaisseur ou la largeur de la zone fondue
- Le rapport d'allongement : longueur/ rayon

Ces différents paramètres influent de façon importante sur le processus de purification, sur son efficacité et sur le degré de purification atteint après un ou plusieurs passages des sources de chauffage et de refroidissement. Afin d'atteindre notre objectif, une étape importante de

cette étude consistera à identifier les deux paramètres : le nombre de Lewis dans le liquide, le rapport des coefficients de diffusion des espèces (liquide/solide) à affecter à notre modèle pour que le processus de purification soit correctement représenté. Pour ce faire nous avons étudié le cas de fusion d'une tranche par une source immobile. Cette étude numérique a été réalisée à l'aide du code de calcul par éléments finis Castem 2000 dans lequel on a développé notre propre procédure de résolution pour les deux problèmes couplés, thermique et espèces, en régime transitoire. Plusieurs cas avec différentes valeurs du nombre de Lewis dans le liquide et du rapport des coefficients de diffusion chimique ont été simulés afin d'identifier les deux paramètres représentant au mieux le processus de purification. Cette étape est la plus importante car le choix de ces deux paramètres en dépend. Dans ce procédé bien particulier, la fusion d'une zone [PFAN, 58] stipule que l'équilibre d'une interface liquide solide se traduit par l'existence d'un coefficient de partage à l'équilibre défini tel que : $k_0 = C_{SI}/C_{LI}$. En se basant sur cette réalité physique, les équations de l'énergie et des espèces couplées, en régime transitoire avec un nombre de Lewis très grand de l'ordre de 10^8, cas généralement observé pour les métaux à l'état solide, restent valables. Les difficultés proviennent de la résolution de ces équations notamment numériquement lorsque le nombre de Lewis est très grand. Dans ce processus de purification obtenu par fusion et solidification successives, d'une zone fondue se déplaçant le long d'un barreau à purifier. La résolution numérique de ces équations locales avec des valeurs réelles, présente des difficultés d'une part sur le plan numérique lorsque il s'agit d'un couplage entre la thermique avec changement de phase et les espèces, à cause du grand nombre de Lewis qui apparaît dans l'équation adimensionnelle des espèces, et d'autre part, au niveau du procédé étudié, le processus ne peut pas être représenté par l'équation de diffusion type loi de Fick classique. Cette dernière théorie ne tient pas compte de tous les phénomènes physiques et ne tient pas compte non plus de la forme et de la stabilité de l'interface (lisse, apparition des dendrites…). L'échange de matière entre deux phases solide et liquide, à travers l'interface, qui joue le rôle de puits ou de source pour capter ou rejeter les impuretés dans le liquide s'effectue généralement d'une façon quasi instantanée.

Dans ce processus de purification contrôlé par la thermique (fusion-solidification), le temps caractéristique est presque identique pour la thermique et les espèces. Pour modéliser notre processus de purification, on s'est inspiré alors de la théorie de la diffusion, en tenant compte de la particularité de phénomènes dont le drainage et la distribution d'impuretés. Ceci nous amène à adopter des valeurs adéquates pour le nombre de Lewis et du rapport des

coefficients de diffusion, en considérant un coefficient de diffusion globale prenant en compte tous ces phénomènes mal connus à l'interface et propre à ce processus de purification.

Disposant désormais du nombre de Lewis dans le liquide et du rapport de coefficients de diffusion (liquide /solide) pouvant représenter le processus de zone refining pour l'alliage étudié, la démarche à suivre consistera à procéder au déplacement des sources de chauffage et de refroidissement et à étudier l'influence de paramètres susceptibles de jouer un rôle important dans ce processus. Cette étape de déplacement vient juste après un temps de préchauffage avec source immobile afin de porter à fusion, à cœur d'une tranche d'épaisseur Δz. La première étape en déplacement consiste à faire varier le paramètre vitesse de translation des sources V_S et à étudier son influence sur la purification lorsque l'intensité de flux de chauffage est égale à l'intensité de flux de refroidissement.

La seconde étape en déplacement est consacrée à l'étude de l'effet de vitesse en considérant une source de refroidissement d'intensité moins importante que l'intensité de flux de la source de chauffage. Au terme de ces deux étapes, le choix de la vitesse de translation des sources et de l'intensité de flux de chauffage et de refroidissement est adopté pour la suite de l'étude. La troisième étape en déplacement consistera à étudier l'effet de la largeur de zone fondue sur le processus de purification. Dans cette démarche d'étude, l'influence de chaque paramètre est traitée avec les mêmes conditions : géométrie, maillage, conditions initiales, conditions aux limites, pas d'espaces, pas de temps et les paramètres d'étude lorsque ils sont considérés comme figés.

Ce travail est divisé en trois parties :

- La première partie traite des généralités sur une variété des techniques et méthodes utilisées pour la purification de certains métaux, et rappelle la théorie de zone fondue.
- La deuxième partie vise alors à établir un modèle couplé en régime transitoire permettant de représenter le processus de fusion de zone « zone refining ».
- En fin une troisième partie est consacrée à l'étude numérique de la purification pour un alliage binaire (SiGe) à faible concentration de soluté.

Partie I

Introduction au processus de purification

Chapitre 1

Différentes méthodes de purification

1.1 Introduction

Depuis les années cinquante, on assiste à un développement considérable de l'intérêt porté aux métaux de haute pureté (teneur de quelques ppm : parties par million) et aux méthodes permettant de les obtenir. Cette recherche d'une pureté accrue correspond à des besoins bien définis, soit dans le domaine des applications industrielles qui nécessitent l'utilisation d'un matériau très pur pour répondre à certaines propriétés et par conséquent remplir le rôle bien voulu, c'est le cas par exemple des matériaux pour semi-conducteurs (applications électroniques) dont les propriétés électriques sont considérablement détériorées par la diffusion des porteurs due à des impuretés, des dislocations, des joints de grains, des surfaces libres, soit dans celui des études fondamentales.
Plusieurs secteurs industriels comme l'électronique, l'électrotechnique, le nucléaire, le militaire, les recherches métallurgiques, sont aujourd'hui concernés par l'emploie des métaux de très haute pureté répondant à leurs besoins spécifiques.
Cette tendance vers une pureté de plus en plus exigée, nécessite la conjonction de nombreuses techniques et la mise au point de méthodes appropriées [ADDA, 91].
De nombreux processus mettant en jeu un transport de matière entre deux phases pourront en principe, être utilisés pour séparer les impuretés contenues dans un matériau et obtenir une purification. Sur le plan industriel quelques méthodes sont effectivement employées pour réaliser une purification des éléments métalliques ou métalloïdes.
Selon la nature et le comportement du matériau, des méthodes peuvent s'apprêter mieux que d'autres pour la préparation des matériaux purs. On peut citer : les méthodes chimiques, les méthodes physico-chimique et les méthodes physiques.

1.2 Méthodes chimiques

Dans ces méthodes chimiques, différents mécanismes peuvent être réalisés :
a) Mécanisme basé sur la formation et la dissociation d'un composé métallique volatil, exemple : (utilisation d'un iodure dans la méthode de Van Arkel pour purifier du titane, du thorium, de l'uranium, du vanadium, du zirconium, de l'hafnium, etc…).
La méthode de Van Arkel repose sur la mise en œuvre d'un iodure servant d'intermédiaire dans la purification. Nous prenons l'exemple du zirconium. Pour obtenir une purification de ce métal, on emploie la méthode de Van Arkel. Celle-ci repose sur la variation de stabilité de ZrI_4 avec la température, qui donne lieu à l'équilibre : $Zr + 4I = ZrI_4$
La formation de l'iodure est favorisée à basse température et sa dissociation à température élevée. La réaction directe s'effectue généralement vers 350 °C à température assez basse pour que ZrI_4 soit stable mais suffisamment élevée pour que la vitesse de formation soit appréciable. La réaction inverse se fait vers 1400 °C. La purification repose ici sur l'existence d'une réaction chimique plus au moins spécifique, et à laquelle la majorité des impuretés ne pourra pas participer.
L'opération s'effectue dans une enceinte où l'on réalise deux domaines de température. Le zirconium à purifier est placé dans la partie à basse température. En présence d'iode, il y a formation d'iodure qui diffuse en phase vapeur jusqu'à la partie chaude de l'enceinte. Là,

l'iodure se décompose en déposant le métal purifié et en libérant l'iode qui rentre à nouveau dans le cycle. Il y a donc transport de métal des parties froides vers les parties chaudes. La vitesse de transport dépend d'un certain nombre de paramètres, dont les plus importants sont : la température du filament sur lequel s'effectue le dépôt, la pression de ZrI_4 dans l'enceinte, la température de la charge de métal impur.
Cette méthode fournit un métal d'une pureté beaucoup plus grande que celle de zirconium de départ. En particulier, on obtient une très bonne purification en métalloïdes (oxygène, azote, carbone), éléments qui influent fortement sur les propriétés. Le métal est récupéré à l'état solide.

b) Mécanisme basé sur l'échange d'ions sur résine et extraction liquide-liquide. Le coefficient de partage k entre les deux phases en présence étant différent pour des ions ou des complexes de différents éléments, il est possible de trouver des conditions dans lesquelles l'élément de base se rassemble préférentiellement dans une phase alors que la plupart des impuretés se trouvent dans l'autre phase. Ces méthodes sont utilisées pour la purification des sels, avant réduction à l'état métallique. Ainsi dans la métallurgie de l'uranium, le nitrate d'uranyle
$UO_2 (NO_3)_2$ est purifié par dissolution préférentielle dans des solvants organiques oxygénés : tri-butylphosphate et acide di-éthyl-hexylphosphorique. Des techniques analogues sont employées pour le cobalt, le césium, le cuivre, le fer, le lithium, le nickel, le rubidium, le manganèse, le rhénium, etc…
c) Mécanisme basé sur l'oxydation préférentielle des impuretés : exemple (dans le fer, le nickel, le sodium, le potassium, etc…).

1.3 Méthodes physico-chimiques

Les techniques employées sont :
a) L'électrolyse qui peut être mise à profit soit pour déposer le métal à partir d'un de ses composés, soit pour réaliser un raffinage en dissolvant le métal à l'anode et en le déposant à la cathode. Elle est réalisée en solution aqueuse pour le fer, le cuivre, le nickel…ou en sels fondus pour l'aluminium, le béryllium, le titane, le chrome, l'uranium, le cuivre, etc…
b) L'électromigration à l'état solide qui est particulièrement efficace pour les métalloïdes comme l'oxygène dans l'yttrium et le lutécium ou l'azote et le carbone dans le thorium, etc…
La méthode met à profit les différences des mobilités des atomes de nature différente, dans l'état solide, sous l'influence d'un champ électrique à haute température.
Les échantillons à purifier sont des barreaux métalliques de quelques millimètres de diamètre et de quelques dizaines de centimètres de longueur.
Ils sont parcourus par un courant continu (de l'ordre de 1000 A/cm²) qui les porte à température élevée. Dans ces conditions, au bout d'un temps de traitement suffisant, il s'établit une répartition stationnaire des impuretés. En effet, les atomes d'impuretés migrent sous l'effet du courant d'électrons, jusqu'à ce que le flux de diffusion du gradient de concentration qui s'est établi compense le flux dû à l'électromigration.
On a pu, par cette méthode, produire du thorium de haute pureté en éliminant de façon efficace l'oxygène et l'azote contenus dans le métal. Le rapport de résistivité résiduelle $R_{298°K} / R_{4.2°K}$ passe de 33 à 1000 et la teneur en carbone finale est inférieure à 3.10^{-6}. La technique d'électromigration est donc très efficace pour certaines impuretés, mais son application est limitée par la durée des traitements nécessaires et par le fait que les quantités de métal produites sont relativement faibles.

1.4 Méthodes physiques

Certaines de ces méthodes font intervenir le passage par la phase vapeur. Ainsi, la distillation et la sublimation sont utilisées pour purifier les métaux volatils (magnésium, calcium, etc…). Dans le cas des métaux à point de fusion élevé et à faible tension de vapeur, on utilise au contraire la fusion sous vide poussé pour éliminer les impuretés plus volatiles que le métal de base tels que : niobium, tantale, etc…

D'autres méthodes physiques utilisent le passage par la phase liquide.
La cristallisation fractionnée est, par exemple, employée pour la séparation des métaux des terres rares sous forme de sels. Il faut mentionner particulièrement une méthode dérivant de la cristallisation fractionnée et qui a contribué puissamment au développement des métaux très purs. Il s'agit de la méthode « zone fondue », mise au point pour la purification du germanium [PFAN, 58] et appliquée à l'aluminium, puis à de nombreux autres métaux.

1.4.1 Méthodes de purification mettant en jeu la phase vapeur (Fusion à haute température et sous vide poussé)

Ces méthodes s'appliquent à des métaux dont la tension de vapeur au point de fusion est faible et dont la plupart des impuretés sont plus volatiles que le métal de base. La fusion des métaux réfractaires présente en effet des difficultés par la haute température à atteindre et par le manque de matériaux capables de résister à l'attaque par le métal fondu. Deux techniques sont principalement employées : la fusion au four à arc et la fusion par bombardement d'électrons. Nous approfondirons la deuxième méthode.
La technique de fusion par bombardement électronique consiste à diriger sur le métal un faisceau d'électrons accélérés. La dissipation, au point d'impact, de l'énergie cinétique des électrons produit un chauffage localisé et intense. Le four comprend, en haut, le canon où les électrons sont émis par le filament, accélérés, et focalisés par des lentilles électromagnétiques. Cette partie de l'appareil, dans laquelle règne un très bon vide, peut être isolée de l'enceinte de fusion par un obturateur. Le métal à fondre est introduit latéralement au point de focalisation de faisceau électronique. Il est porté à fusion et tombe dans le creuset refroidi par une circulation d'eau. Le fond du creuset étant mobile, on peut, en le faisant descendre peu à peu, obtenir un lingot de métal de grande dimension. La puissance disponible varie beaucoup suivant le four (typiquement de 1kW à 100 kW). Cette méthode permet d'obtenir des lingots massifs et sains de métaux qui seraient très difficiles à fondre par d'autres méthodes. On peut d'ailleurs ajouter une purification chimique à l'effet de fusion sous vide proprement dit. Ainsi, le vanadium industriel peut être purifié par fusion au four à bombardement d'électrons, en présence de quantités judicieusement choisies d'un désoxydant (le carbone, l'aluminium, le silicium et l'yttrium). Les teneurs en hydrogène sont alors réduites à moins de 3.10^{-6}, l'oxygène et le carbone à moins de 10^{-4}, les impuretés métalliques entre 10^{-5} et 5.10^{-4}.

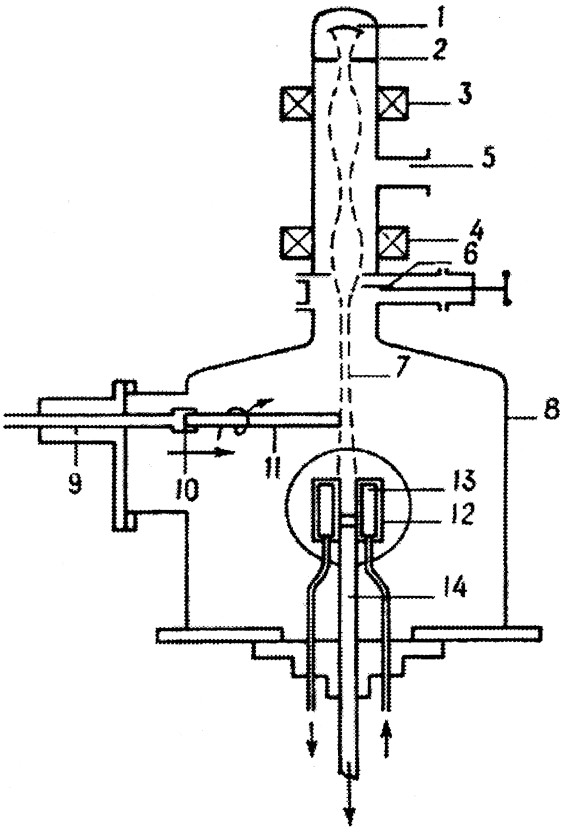


Figure 1.1 : Four à bombardement électronique (d'après LEHR et ALBERT)
1 : cathode émettrice d'électrons ; 2 : anode ; 3-4 : lentilles électromagnétiques ; 5 : canalisation de vide ; 6 : vanne d'isolement ; 7 : faisceau d'électrons ; 8 : enceinte du four ; 9 : passage coulissant ; 10 : fixation du lingot à fondre ; 11 : lingot d'apport ; 12 : lingotière ; 13 : circulation d'eau ; 14 : fond mobile

1.4.2 Méthodes de purification utilisant le passage par la phase liquide

La solidification d'un métal entraîne généralement une modification dans la répartition des éléments étrangers qu'il contient. Considérons un alliage binaire de 2 métaux A et B et supposons que l'addition de l'élément B abaisse le point de fusion du solvant A figure 1.2.a

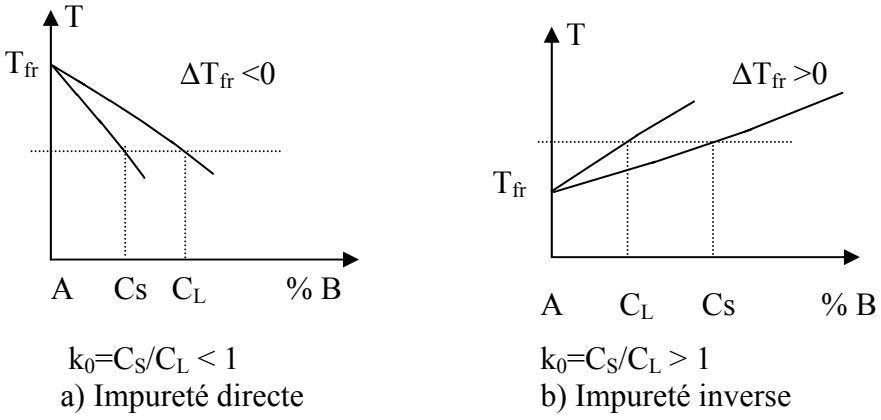


Figure 1.2 : Formes schématiques des diagrammes d'équilibres binaires au voisinage du solvant pur A. a) : élément abaissant la température de fusion du solvant A ; b) : élément élevant la température de fusion du solvant A

Le diagramme d'équilibre montre qu'il existe une différence de solubilité du constituant B entre le solide et le liquide. Si l'on abaisse la température d'un alliage fondu de concentration C_L, le premier cristal qui apparaît à une composition différente de celle du liquide. Dans le cas de la figure, sa concentration en élément B est C_S, inférieur à la concentration C_L de l'alliage initial. Cette différence de concentration permet de définir un coefficient de partage de l'élément B dans l'élément A : $k_0=C_S/C_L$.

- $k_0<1$: Si ($\Delta T_{fr} = T-T_{fr} < 0$), dans cette configuration, les impuretés passent du solide vers le liquide (impureté directe).
- $k_0>1$: Si ($\Delta T_{fr} = T-T_{fr} > 0$), les impuretés passent du liquide vers le solide (impuretés inverses).

k_0 dérive directement du diagramme d'équilibre A-B et appelé coefficient de partage à l'équilibre. La répartition du soluté entre la phase solide et la phase liquide est mise à profit dans les techniques de solidification progressive dirigée, de cristallisation fractionnée et de zone fondue.

1.4.2.1 Solidification progressive dirigée

Le principe consiste à porter au dessus de sa température de fusion, un cylindre en métal contenant une concentration uniforme d'impureté soluble et qui abaisse son point de fusion ($k < 1$). Puis sortir lentement le tube contenant ce métal liquide du four par l'extrémité gauche figure 1.3. Le cylindre liquide va subir une solidification progressive qui commencera à l'extrémité du cylindre et la première tranche solide est beaucoup plus pure que le liquide que lui a donné naissance. Les tranches suivantes sont moins pures et l'impureté s'accumule vers l'extrémité droite du lingot. Le barreau obtenu après solidification progressive est plus pur que le barreau initial sur une certaine longueur. Il est possible d'améliorer la purification en prélevant la fraction la plus pure du barreau et en la soumettant à une nouvelle solidification progressive dirigée. En répétant cette opération, on peut obtenir un raffinage de plus en plus poussé. Cette méthode présente cependant des inconvénients. En effet, la quantité de métal raffiné diminue à chaque opération et d'autre part, on détruit chaque fois en partie le résultat de l'opération précédente.

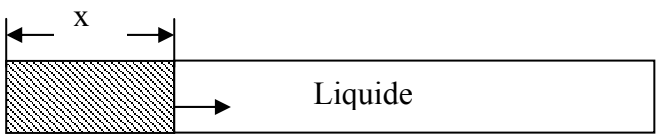


Figure 1.3: Schéma de la solidification progressive dirigée

1.4.2.2 Processus de zone fondue

a) Historique

La technique de « zone melting » a été proposée pour la première fois par William G. Pfann en 1952 pour purifier du germanium dans le but d'en faire de bons dispositifs semi-conducteurs. Cette technique a ensuite été utilisée pour la purification de l'aluminium en 1953 et puis à des nombreux autres éléments comme le gallium, le bismuth, le zirconium, le silicium, etc… au cours des années qui suivirent.

b) Technique de zone fondue

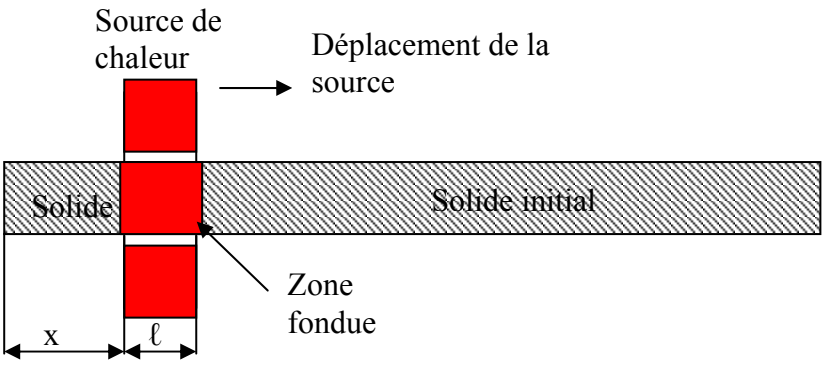


Figure 1.4 : Schéma de zone fondue pour une seule source

Elle consiste à fondre une zone étroite d'un barreau métallique de forme allongée et à la déplacer d'une extrémité à l'autre du barreau. On part par exemple d'une barre de silicium contenant une concentration uniforme et faible C_0 d'impuretés. A gauche de ce barreau on dispose d'une source de chaleur dont la forme est tubulaire et a pour fonction de fondre une petite tranche de largeur ℓ. L'étape suivante consiste à déplacer lentement cette source de chaleur le long de ce barreau. La partie gauche se solidifie alors à une concentration plus faible. Au fur et à mesure que la zone liquide se déplace vers la droite, le matériau se solidifie en rejetant dans le liquide son excès d'impuretés. La concentration en impuretés dans la zone liquide augmente donc et la couche suivante qui se solidifie sera aussi plus riche en impuretés que la précédente et ainsi de suite. Finalement, les concentrations atteindront un régime stationnaire où le solide en tête de zone fondue et le solide fraîchement solidifié ont la même composition. L'effet sera inverse pour les éléments qui élèvent le point de fusion (k_0>1). Cette technique s'est révélée extrêmement fructueuse et elle est souvent utilisée comme méthode de purification ultime.
L'efficacité de ce procédé est conditionnée par le coefficient de partage effectif k, la vitesse de translation de la source et la largeur de la zone fondue.
D'une façon générale, toute méthode de purification comporte des limitations qui sont propres à son principe même. Dans le cas de la zone fondue, par exemple, le résultat final sera limité par deux facteurs :

- La pureté globale du métal de départ. Pour des conditions de traitements fixées la zone fondue permet d'atteindre, pour chaque type d'impureté, un certain coefficient de

purification (rapport entre la concentration finale et la concentration initiale) ; le résultat sera donc d'autant meilleur que le métal de départ sera plus pur.

- La présence d'impuretés dont le coefficient de partage entre solide et liquide est voisin de l'unité. L'efficacité du traitement est très faible pour ces éléments et il faudra choisir un métal de départ particulièrement pauvre en impuretés de ce type.

Le procédé commercial de purification par zone fondue consiste à réitérer de nombreuses fois ce processus élémentaire et par conséquent le coût de matériau pur s'en trouve considérablement augmenté.
Il existe une variété de ces techniques qui permet d'accélérer notablement la réalisation de ce processus. Dans la pratique, on utilise souvent plusieurs sources de chaleur en série et la distance parcourue par la source se trouve considérablement réduite par le nombre de fours utilisés (figure 1.5)

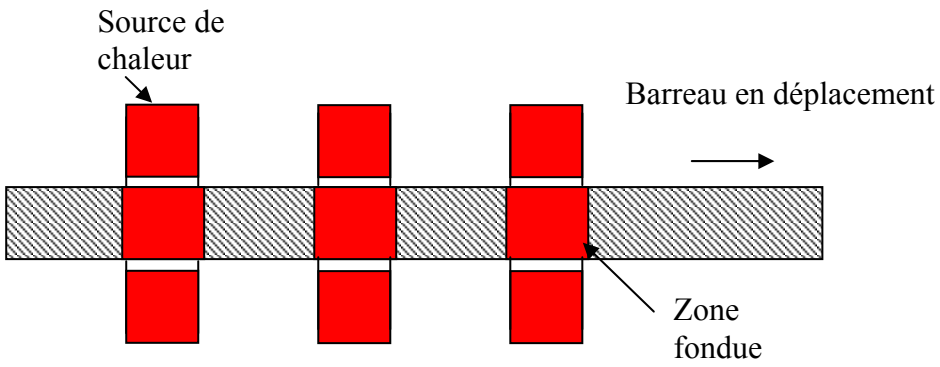


Figure 1.5: zone refining multi-sources

1.5 Conclusion sur les méthodes de purification

Pour atteindre une pureté finale élevée il est généralement nécessaire d'utiliser, en cascade, plusieurs méthodes de purification donnant des résultats complémentaires. Par exemple la purification de tellurium [PRAS, 02] est obtenue par distillation puis par zone fondue. Un autre cas typique est celui de la purification poussée du fer. Le matériau de départ est un fer pur industriel de titre voisin de 99.98 %, mis en solution sous forme de chlorure. Par passage de cette solution sur une résine échangeuse d'anions, le fer sera fixé sous forme de complexe alors qu'un grand nombre d'impuretés traversant la colonne seront donc séparées. On éliminera ainsi le molybdène, le nickel, le cuivre et le cobalt, éléments pour lesquels les traitements ultérieurs sont inefficaces. Après élution, une électrolyse permet de déposer un fer dans lequel les teneurs en impuretés métalliques sont très basses. Enfin, le métal est soumis à plusieurs passages de zone fondue, en nacelle de cuivre refroidie, sous atmosphère d'hydrogène purifié. Ce traitement abaisse considérablement les teneurs en éléments métalloïdes. On obtient ainsi un fer dans lequel aucun élément ne se trouve à une teneur supérieure à la partie par million (ppm), à l'exception du carbone, de l'oxygène et de l'azote dont les concentrations peuvent atteindre quelques ppm. Ces derniers éléments peuvent éventuellement être éliminés de façon plus poussée par fusion à haute température dans un four à plasma argon-hydrogène.

Chapitre 2

Théorie de zone refining

2.1 Introduction

La théorie de zone refining est basée sur des hypothèses simplificatrices. Pour un barreau de section unitaire et de longueur L, on suppose, pour tout état initial, que la distribution de soluté (impuretés) est uniforme dans tout le barreau. Le modèle adopté est unidirectionnel et en régime permanent. Après le traitement du barreau, la concentration est uniforme tout le long d'une section transversale. Un bilan de conservation des solutés dans une petite tranche cylindrique de section unité et de largeur ℓ est écrit. La figure 2.1 est une schématisation de zone refining utilisant une seule source de chaleur.

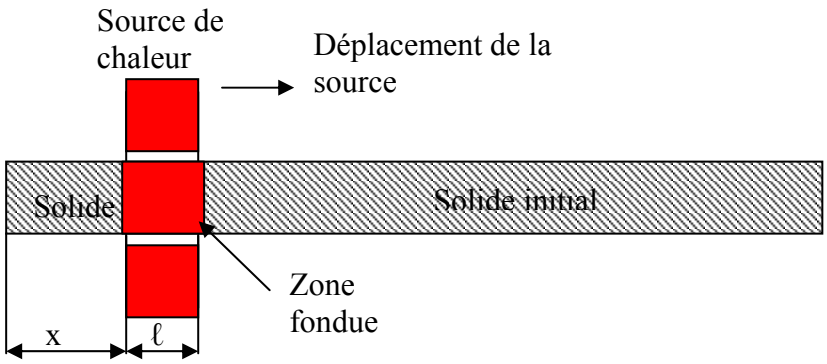


Figure 2.1 : Schéma de zone refining utilisant une seule source de chaleur

Lors de la solidification d'un métal fondu, il en résulte généralement une modification dans la répartition des éléments étrangers qu'il contient. Pour un alliage binaire de deux métaux A et B dont on suppose que l'addition de l'élément B abaisse le point de fusion du solvant A, son diagramme d'équilibre (figure 2.2 .a) montre qu'il existe une différence de solubilité du constituant B (concentration en soluté) entre le solide et le liquide. Si l'on abaisse la température d'un alliage fondu de concentration C_L, le premier cristal qui apparaît, a une composition différente de celle de liquide. Dans le cas de la figure (2.2.a), sa composition en soluté est C_S, inférieure à la concentration C_L de l'alliage liquide initial. Cette différence de concentration permet de définir un coefficient de partage à l'équilibre k_0 de l'élément B dans l'élément A tel que : $k_0 = C_S/C_L$, inférieur à l'unité et l'impureté est dite directe c'est-à-dire les impuretés passe de la phase solide vers la phase liquide à travers l'interface solide/liquide. Dans le cas contraire, figure (2.2.b), k_0 est supérieur à l'unité et l'impureté est dite inverse c'est-à-dire au niveau de l'interface, la phase liquide cède les impuretés à la phase solide.

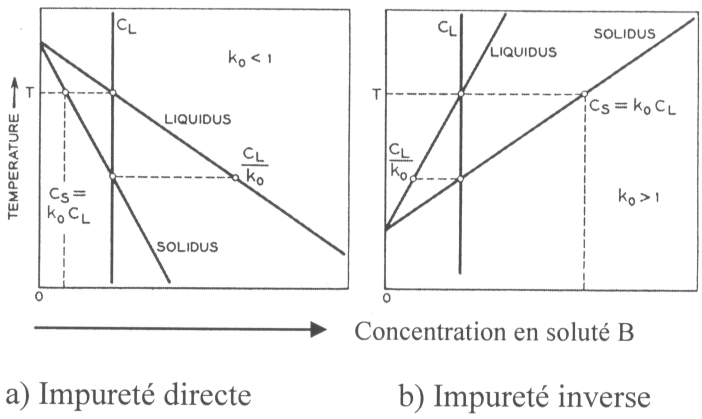


Figure 2.2 : Diagrammes de phases schématisés au voisinage du solvant pur a) $k_0 < 1$: impureté directe ; b) $k_0 > 1$: impureté inverse

2.2 Équation de base pour une seule passe de zone refining

L'équation de base pour la théorie de zone refining classique est une équation obtenue par un bilan de conservation de masse des solutés pour une zone ABCD ou A'B'C'D' en mouvement, de largeur ℓ et de section unité (figure 2.3). Elle repose sur les hypothèses suivantes : coefficient de partage constant, composition uniforme dans la phase liquide, diffusion négligeable dans le solide, section du barreau constante, largeur de zone fondue constante.

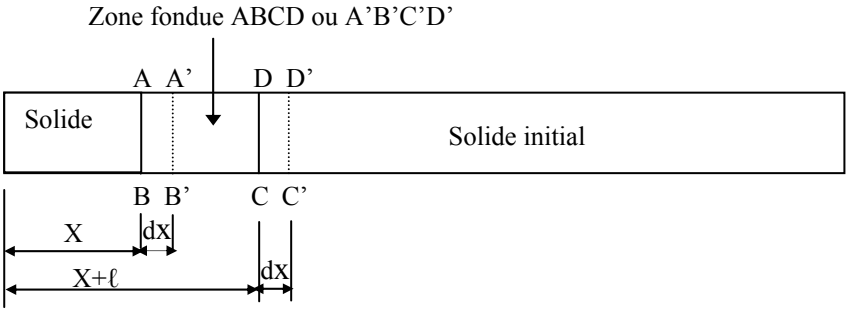


Figure 2.3 : Diagramme schématique d'une opération de zone fondue

Dans ce processus de fusion /solidification successive utilisé comme technique pour la purification d'un métal, la source de chaleur se déplace d'un mouvement lent, uniforme et parallèlement à l'axe du cylindre. Le barreau est initialement à une concentration C_0. Sur l'interface solide-liquide de gauche, une tranche liquide se solidifie en donnant un métal plus pur. Sur l'interface solide-liquide de droite, une tranche solide de teneur en impureté C_0 passe à l'état liquide de sorte que le volume de liquide ne change pas au cours de la purification du métal et reste égal à ℓ (section unité). Il y a donc balayage de l'impureté par la zone liquide en mouvement.

La mise en équation des phénomènes est facile. La zone dépose une tranche de solide dx de concentration C_S elle perd donc (C_S dx) d'impureté.

Mais par fusion de la tranche de droite, elle gagne (C_0dx) d'impureté. Finalement, sa concentration varie de dC_L. Le bilan de soluté est donc :

$$C_0 dx - C_S dx = ld\, C_L \qquad (2.1)$$

En tenant compte de la relation entre C_S et C_L : $k = C_S/C_L$ et la condition au limite (pour x=0, on a C_S =k C_0) l'équation différentielle (2.1) s'intègre aisément et on obtient :

$$C_S(x) = C_0[1 + (k-1)e^{-\frac{kx}{l}}] \qquad (2.2)$$

L'expression (2.2) représente la répartition théorique des impuretés le long du barreau après le premier passage.

Avec x : distance à partir de la tête du barreau

k : coefficient de partage effectif. Burton, Prim et Slichter [BURT, 53] ont établi la relation :

$$k = \frac{k_0}{k_0 + (1-k_0)e^{\frac{-f\delta}{D}}} \qquad (2.3)$$

Où k_0 : Coefficient de partage à l'équilibre

f : Vitesse de déplacement de la zone liquide en (cm/s)

δ : Épaisseur de la couche de diffusion en (cm)

D : Coefficient de diffusion en (cm²/s)

L'équation (2.2) ne fait pas intervenir la longueur du barreau a, mais seulement le rapport x/ℓ

La courbe présente une asymptote horizontale $C_S/C_0 = 1$. Elle s'en approche d'autant plus rapidement que k est grand et que la longueur de la zone ℓ est petite. La fraction du barreau plus pure que la charge initiale est d'autant plus grande que k est plus faible et que la longueur de la zone est plus grande (figures 2.4 et 2.5).

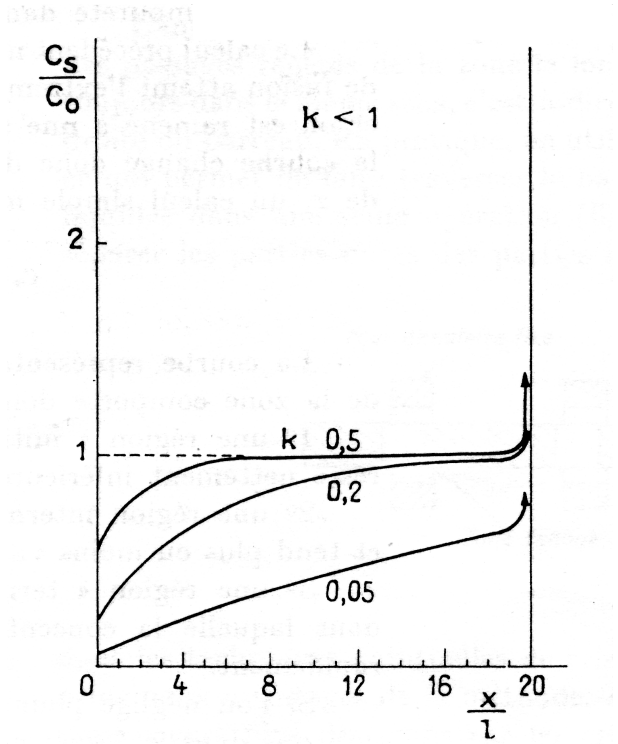


Figure 2.4 : Profils théoriques de concentrations relatives le long d'un barreau pour différents coefficients de distribution effectif k d'après R.GRAF

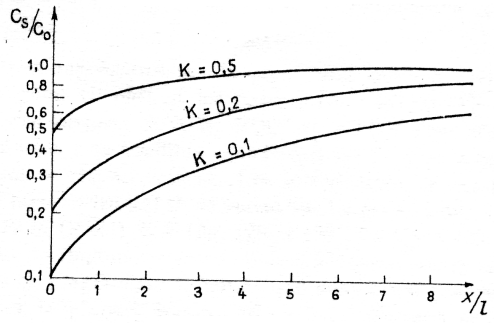


Figure 2.5 : Profils théoriques de concentrations relatives le long d'un barreau pour différents coefficients de distribution effectif k d'après Pfann

Pour des valeurs moyennes de ces paramètres (par exemple k = 0,5 et L/ℓ =20), on peut faire le raisonnement approximatif suivant : Quand la zone fondue est à l'extrémité gauche (tête du barreau), sa concentration est égale à C_0. Lorsqu'elle se déplace un peu vers la droite, une tranche solide de concentration k C_0 apparaît et une tranche de concentration C_0 passe à l'état liquide. La zone s'enrichit donc en impureté et le solide qui va se former sera moins pur. Tandis que la zone avance, son enrichissement en impureté continue, mais à vitesse décroissante, sa concentration tend vers C_0/k et celle du solide qui apparaît vers C_0. A partir de ce moment, il entre autant d'atomes d'impureté dans la zone fondue qu'il en sort.

2.3 Limite de validité de l'équation de base

À partir d'une certaine distance x, tel que x ≥ (L–ℓ), l'équation (2.2) n'est plus valable, car lorsque l'interface de fusion atteint l'extrémité droite du cylindre, la masse de liquide diminue et on est ramené à une solidification progressive dirigée. La concavité de la courbe change donc de sens pour x = (L-ℓ). A partir de cette valeur de x, la distribution de soluté est représentée par l'équation de conservation de masse des solutés dans le cas de la solidification progressive dirigée qui est : $C_S(x) = C_S\,(L-\ell)\,(\frac{L-x}{\ell})^{k-1}$ (2.4)

Cette équation est issue d'un bilan de conservation de masse des solutés dans le cas de la solidification progressive dirigée, moyennant quelques hypothèses : section unitaire, variation de volume négligée lors de la solidification, coefficient de distribution effectif k constant. Une tranche liquide d'épaisseur dx va donner en se solidifiant une tranche solide d'épaisseur dx plus pure. L'excès d'impureté qui se trouvait dans la tranche liquide va diffuser dans la partie du barreau non encore solidifiée et augmenter sa teneur en impureté. Comme la diffusion à l'état liquide est très rapide on peut d'abord admettre que le liquide reste homogène. L'équation différentielle à résoudre est la suivante :

$$C_L\,dx = C_S\,dx + (L-x)\,d\,C_L \qquad (2.5)$$

C_L et C_S sont deux fonctions de x, mais leur rapport est constant : $k = C_S/C_L$

En intégrant (2.5) on obtient :

$$C_S(x) = A\,(L-x)^{k-1} \qquad (2.6)$$

La constante d'intégration A se détermine par la condition :

Pour la tranche d'abscisse x= (L-ℓ), on a une concentration $C_S(x) = C_S\,(L-\ell)$.

D'ou l'équation (2.4)

En résumé, la courbe représentant la répartition de l'impureté après le passage de la zone comporte donc trois parties figure 2.4:

1. une région «initiale » dans laquelle la concentration croît, mais reste nettement inférieure à C_0.
2. une région intermédiaire dans laquelle la concentration varie peu et tend plus ou moins vite vers C_0 suivant les valeurs de k et de ℓ.
3. une région «terminale» correspondant à une longueur de zone dans laquelle la concentration est nettement supérieure à C_0 et croît rapidement.

Si l'on néglige pour un instant cette dernière partie du barreau, on voit que dans la fusion par zone, la courbe tourne sa concavité vers l'axe des x (figure 2.5) et dans la solidification progressive dirigée, vers l'axe des C_S (figure 2.6).

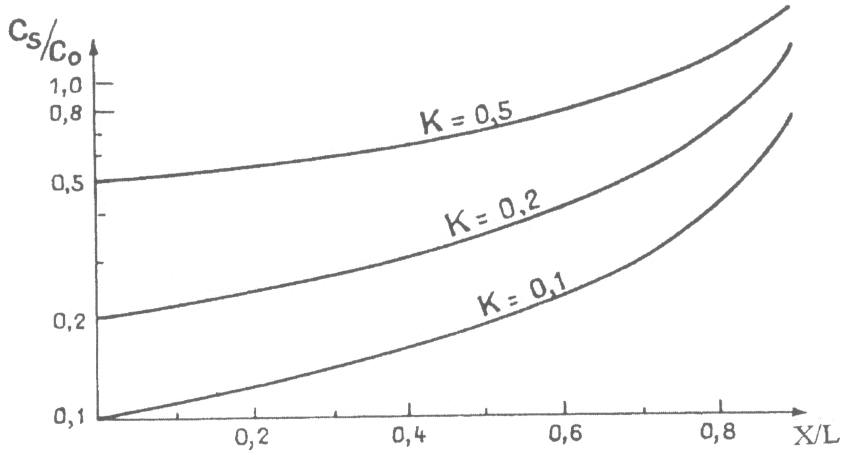


Figure 2.6 : Profils de concentrations relatives le long d'un barreau pour différents Coefficients de distribution effectif k lors de la solidification progressive dirigée d'après Pfann

2.4 Avantages et inconvénients de zone fondue par rapport à la solidification progressive dirigée

La purification obtenue après le passage de la zone fondue est moins satisfaisante que celle de la solidification progressive dirigée. Cela tient à ce que le volume de la phase liquide dans laquelle l'impureté diffuse, est plus faible. La concentration de cette phase augmente donc plus vite et, par voie de conséquence, celle du solide déposé également.
Mais en contre partie, comme le volume de la phase liquide reste faible et d'ailleurs constant, on gagne certains avantages [GUIL, 64].

1. L'homogénéisation de ce liquide est plus facile à obtenir; le coefficient k à prendre en considération sera plus voisin de k_0, ce qui sera favorable à la purification.
2. Ce volume faible réduira la contamination du métal au contact de l'atmosphère ou du conteneur que l'on pourra parfois même éviter.
3. Comme ce volume ne change pas, les concentrations du solide et du liquide ne peuvent devenir supérieures à C_0 et C_0/k respectivement et en restent même très éloignées comme k est faible.

2.5 Passages répétés d'une zone fondue

2.5.1 Théorie de zone refining multi-passes

L'intérêt de la fusion par zone devient évident quand on envisage des passages répétés de la zone fondue le long du barreau, ces passages ayant lieu toujours dans le même sens, c'est-à-dire de l'extrémité gauche vers l'extrémité droite du barreau. En pratique, on utilise une série de sources de chaleur assez rapprochées, ce qui permet de faire traverser le barreau par un certain nombre de zones liquides dans une seule opération (figure2.7). On notera qu'il est inutile de séparer les parties pures des parties impures comme cela est indispensable dans les techniques habituelles de cristallisations fractionnées. C'est un des principaux avantages de la méthode. Avec le montage précédent (une seule source), on économise encore plus de temps car les cristallisations successives commencent avant que la première soit complète.

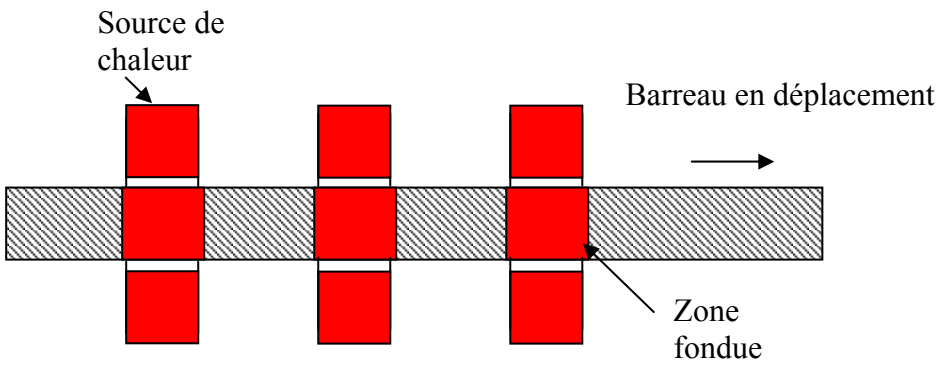


Figure 2.7: Zone refining multi-sources

2.5.1.1 Répartition de l'impureté lors d'un second passage de la source

Après un premier passage de la source le long du barreau à purifier, une nouvelle répartition d'impureté est obtenue. Lors d'un nouveau passage, la répartition va de nouveau se modifier. On peut donc décrire comment la répartition de l'impureté va se modifier pendant un second passage de la zone. Quand la zone est à l'extrémité gauche du barreau, sa concentration est maintenant égale à σ_1/l (et non plus C_0). σ_1 étant l'aire comprise entre la courbe correspondant à la formule (2.2), l'axe des x et les verticales x/ℓ = 0 et x/ℓ = 1. Lorsqu'elle se déplace un peu vers la droite, une tranche solide de concentration $k\sigma_1$ /ℓ apparaît et une tranche de concentration C_{S1} (et non plus C_0) passe à l'état liquide. « C_{S1} étant la concentration obtenue dans la tranche d'abscisse x/ℓ = 1 après le premier passage de la zone fondue ».
La zone s'enrichit en impureté, car C_{S1} est supérieur à $k\sigma_1$ /ℓ, que cette dernière quantité est inférieur à $k\,C_0$ et le solide qui se formera un peu plus tard sera donc moins pur. Tandis qu'elle avance, son enrichissement en impureté continue, mais à une vitesse décroissante, parce que la différence entre les quantités d'impureté qui entrent et qui sortent diminue. Bref, lorsque la zone traverse la région « initiale » d'un barreau déjà purifié une première fois, elle emporte une nouvelle quantité d'impureté et laisse derrière elle une région plus pure et un peu plus longue que lors de son premier passage. Quand l'interzone de fusion atteint la région «terminale» du barreau où a débuté, lors de la première passe, la solidification progressive dirigée, la concentration de la zone en impureté se relève notablement (car le solide qui passe à l'état liquide sur l'interface de fusion est très impur), celle du solide qui se forme également et la concavité de la courbe représentant la distribution de l'impureté après le second passage change de sens.
Ainsi, l'accumulation nouvelle d'impureté sur l'extrémité droite se reflète en arrière sur une longueur de zone.

Si l'on veut trouver la courbe C_{S1}(x) représentant la nouvelle distribution de l'impureté, il faut donc résoudre l'équation différentielle :

$$[C_{S1}(x+\ell) - C_{S2}(x)]\,dx = (l / k)\, dC_{S2}(x) \qquad (2.7)$$

C_{S1} (x + ℓ) est la concentration obtenue dans la tranche d'abscisse (x + ℓ) après le premier passage de la zone, elle est donnée par la relation (2.2) si x ≤ L-2*l* et par la formule (2.4) pour L-2*l* <x <L-*l*. Enfin pour x ≥ L- *l*, c'est-à-dire lorsque l'interface de fusion atteint l'extrémité

droite du barreau, le volume de la zone n'est plus constant car il devient égal à (L–x) et la zone ne capte plus d'impureté. L'équation (2.7) ne représente donc plus les phénomènes et il faut maintenant intégrer l'équation :

$$d\,C_{S2}(x) = \frac{1-k}{L-x} C_{S2}(x)dx \tag{2.8}$$

Dont la solution est :

$$C_{S2}(x) = C_{S2}(L-l)\left(\frac{L-x}{l}\right)^{k-1} \tag{2.9}$$

C_{S2} (L-ℓ) représentant la concentration dans la tranche d'abscisse x = (L-ℓ) après le second passage de la zone.

2.5.1.2 Répartition de l'impureté pour le n^{ème} passage de la source

Les mêmes phénomènes se produisent à chaque nouveau passage de la zone, de sorte que les passages répétés abaissent la concentration dans la région « initiale », élèvent celles-ci dans la région « terminale » et diminuent la longueur de la région intermédiaire. Finalement, ces trois régions deviennent difficiles à distinguer les unes des autres et la courbe obtenue après la n^{ème} passe (n = 10 ou 20) ne présente plus de changement brusque de pentes (figures : 2.9, 2.10 et 2.11). Les calculs deviennent très complexes lorsque n augmente et pour les raisons exposées ci-dessus, l'efficacité de ces passages diminue vite en ce qui concerne la partie droite du lingot. Si l'on veut obtenir la répartition de l'impureté après n passages de la zone, on verra facilement que si l'on désigne par $C_n(x)$ la concentration dans la tranche solide d'abscisse x après la n^{ème} passe et $C_{n-1}(x+l)$ la concentration dans la tranche d'abscisse (x + ℓ) après la (n-1)^{ème} passe, il faut résoudre l'équation différentielle :

$$[\,C_{n-1}(x+l) - C_n(x)\,]\mathrm{dx} = \frac{l}{k}\,\mathrm{d}\,C_n(x) \tag{2.10}$$

tant que x ≤ (L –ℓ). Mais la fonction C_{n-1} (x + ℓ) à introduire dans cette équation n'a pas la même forme suivant que x est inférieur ou supérieur à (L - nℓ). D'autre part, lorsque x devient supérieur ou égal à (L – ℓ), comme le volume de la zone ne reste plus constant, l'équation différentielle à résoudre devient

$$dC_n\,(x) = \frac{1-k}{L-x} C_n\,(x)\,dx \tag{2.11}$$

dont la solution générale est :

$$Cn(x) = Cn(L-l)\left(\frac{L-x}{l}\right)^{K-1} \tag{2.12}$$

qui est l'équation de la solidification progressive dirigée sous une autre forme.

Lord et Milliken [LORD, 53] ont donné une formule qui permet de calculer exactement la concentration en fonction de la distance x/l et du nombre de passes n :

$$\frac{C_n}{C_0} = 1-(1-k)\exp\left(-k\frac{x}{l}\right)\left[n - \sum_{S=1}^{n-1}(n-s)\,k^{s-1}\exp(-sk)\frac{(s+\frac{x}{l})^{s-2}}{s!}\left[\frac{x}{l}(s-1)+(1-k\frac{x}{l})(s+\frac{x}{l})\right]\right] \tag{2.13}$$

Mais cette formule (2.13) n'est valable que pour un barreau de longueur infinie et ne tient pas compte des phénomènes qui se produisent vers la droite du barreau et que nous venons de décrire. En particulier la concentration à l'extrémité gauche du lingot est :

$$\frac{C_n\ (0)}{C_0} = 1 + n(k-1) - \sum_{s=1}^{n-1} \frac{(n-s)\ (k-1\ )\ s^{(s-2)}\ k^{\ (s-1)} \exp(-sk)}{(s-1)\ !} \qquad (2.14)$$

La figure 2.8 établie pour L / l = 10 donne cette concentration pour diverses valeurs de k en fonction de n (nombre de passes). Si l'on veut une teneur en impureté déterminée, il faut évidemment passer d'autant plus de zones que k est moins faible. Ainsi pour avoir $C_S/C_0 = 2.10^{-5}$ il faut passer six zones avec k = 0,1 et dix zones avec k = 0,2.

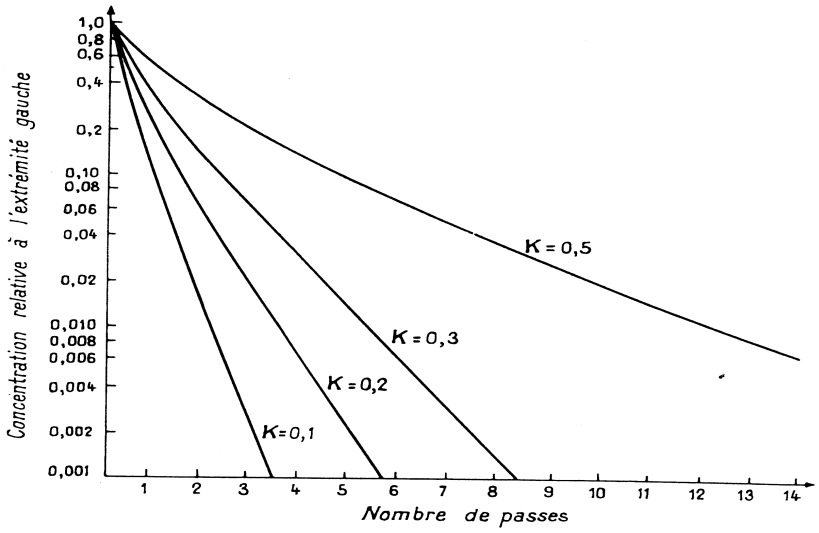


Figure 2.8 : Profils théoriques de concentrations relatives à l'extrémité gauche du barreau (x=0) en fonction du nombre de passes pour différents k d'après Pfann

2.5.2 Méthode graphique de Hamming

Dans cette méthode graphique, le lingot est divisé en cellules dont la longueur est une fraction de celle de la zone fondue. On suppose que la zone se déplace par sauts d'une longueur égale à celle d'une cellule. A chaque saut, cristallise dans la cellule abandonnée une quantité d'impureté correspondant à une concentration du solide égale à k fois celle de la zone et supposée constante dans la cellule. Après chaque saut, la quantité d'impureté qui entre dans la zone avec la cellule qu'elle capte est ajoutée à celle que la zone transporte vers la droite pour obtenir la nouvelle concentration de la zone. Quand la zone atteint l'extrémité droite (queue du barreau) et que la solidification progressive dirigée commence, cette méthode graphique tient compte de la décroissance du volume de la zone. Lorsque la dernière cellule se solidifie, l'impureté totale contenue dans celle-ci cristallise et introduit dans la courbe $C_S = f(x)$ une discontinuité.

La méthode est donc applicable à un barreau de longueur finie et à une distribution initiale quelconque de l'impureté. Les quantités d'impuretés perdues ou gagnées par la zone au cours de ses sauts successifs sont évaluées graphiquement par la règle du trapèze.

Soit σ_1 la surface comprise entre la courbe $C_S = f(x/l)$ l'axe des x et les verticales d'abscisses 0 et 1 et soit $\Delta\sigma_1, \Delta\sigma_2, \Delta\sigma_3$ …… $\Delta\sigma_p$ les aires des surfaces analogues, mais limitées par les verticales d'abscisses :

$$1\ ,\ 1+\frac{1}{z_1}\ ,\ 1+\frac{2}{z_1}.....1+(\frac{p-l}{z_1})\ \text{en appellant}\ z_1\ \text{le rapport}\ :\frac{\text{Volume de la zone}}{\text{Volume de la cellule}}$$

Si l'on pose $(l - k/z_1) = u$, un calcul élémentaire montre que les concentrations des solides successivement déposées sont :

Pour

$$\frac{x}{l}=0 \quad : \frac{k}{l}\sigma_1$$

$$\frac{x}{l}=\frac{1}{z_1} \quad : \frac{k}{l}\ (u\ \sigma_1+\Delta\sigma_1)$$

$$\frac{x}{l}=\frac{2}{z_1} \quad : \frac{k}{l}\ (u^2\ \sigma_1+u\Delta\sigma_1+\Delta\sigma_2)$$

$$\frac{x}{l}=\frac{3}{z_1} \quad : \frac{k}{l}\ (u^3\ \sigma_1+u^2\Delta\sigma_1+u\,\Delta\sigma_2+\Delta\sigma_3)$$

.....

$$\frac{x}{l}=\frac{p}{z_1} \quad : \frac{k}{l}\ (u^p\ \sigma_1+u^{p-1}\Delta\sigma_1+u\,\Delta\sigma_{p-1}+\Delta\sigma_p) \qquad (2.15)$$

Pour obtenir une précision suffisante (erreur 1 %) il y a intérêt à prendre z_1 assez grand. Les figures (2.9), (2.10) et (2.11) (L/l =10) ont été obtenues avec z_1 = 10 ce qui correspond à p = 100 et à u = 0,99 pour k =0.1, u = 0,98 pour k= 0,2 et u = 0,95 pour k = 0,5. En étudiant ces courbes tracées à l'échelle semi-logarithmique on verra que : en général, une zone plus large augmente la pureté du métal si le nombre de passes n'excède pas beaucoup L/ℓ. Dans le cas contraire, une zone plus étroite est préférable. La figure (2.9) le montre.
Elle est établie pour L/ℓ = 10, mais les deux courbes en traits discontinus correspondent à L/ℓ = 5. A la 5ème passe, la zone la plus large est préférable, car sur 63 % de la longueur du barreau elle donne une pureté plus grande. Mais à la 10ème passe, la zone la plus étroite est supérieure pour toute la longueur du barreau.

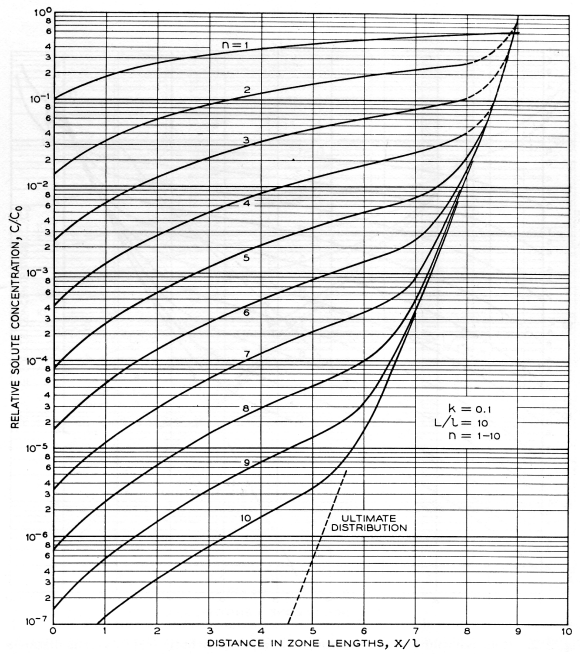


Figure 2.9: Concentrations relatives C/C_0 en fonction de la variable x/ℓ pour différents nombre de passes n d'après Pfann

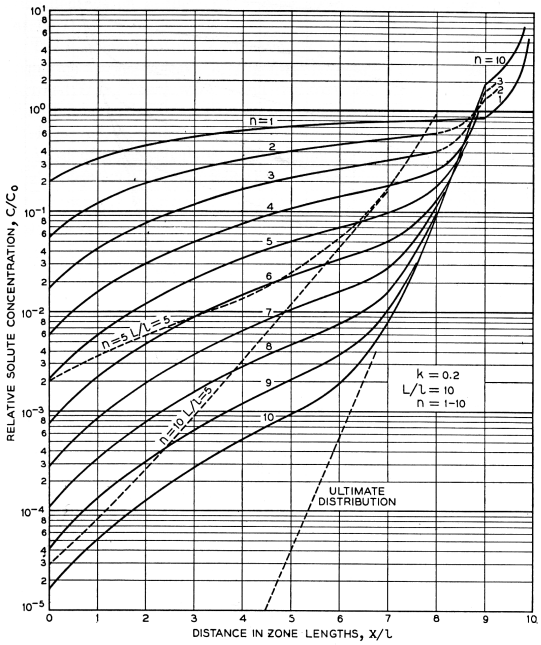


Figure 2.10: Concentrations relatives C/C_0 en fonction de la variable x/ℓ pour différents nombre de passes n d'après Pfann

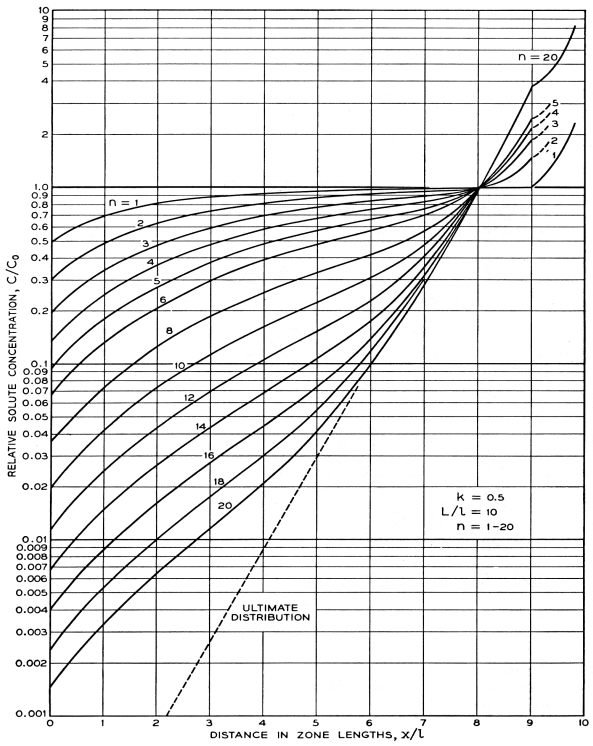


Figure 2.11: Concentrations relatives C/C_0 en fonction de la variable x/ℓ pour différents nombre de passes n d'après Pfann

2.5.3 Ultime répartition de l'impureté dans le barreau

La longueur totale du barreau étant finie, si des passages répétés sont effectués dans le même sens, on doit arriver à un état limite où la concentration reste invariable.
Cette ultime répartition de l'impureté est facile à calculer. Soit $C_u(x)$ la fonction qui la représente. Une zone fondue passe alors le long du barreau sans changer la distribution. La concentration du solide qui se forme dans la tranche d'abscisse x est $C_u(x)$ et celle de la zone fondue est $C_{uL}(x) = C_u(x)/k$. Mais la concentration dans la zone est aussi égale à :

$$C_{uL}(x) = \frac{1}{l}\int_x^{x+l} C_u(x)dx \tag{2.16}$$

qui peut s'écrire :

$$C_u(x) = \frac{k}{l}\int_x^{x+l} C_u(x)dx \tag{2.17}$$

Equation dont la solution est de la forme :

$$C_u(x) = \alpha e^{\lambda x} \tag{2.18}$$

Les constantes α et λ s'obtiennent par substitution et en écrivant que la concentration moyenne dans le barreau de section unitaire est C_0 :

$$\frac{1}{L}\int_0^L C_u(x)dx = C_0 \tag{2.19}$$

On trouve les relations :

$$k = \frac{\lambda l}{e^{\lambda l} - 1} \tag{2.20}$$

$$\alpha = \frac{C_0 \lambda L}{e^{\lambda L} - 1} \tag{2.21}$$

En coordonnées semi-logarithmiques la distribution ultime $C_u(x)$ est représentée par une droite comme les montrent les figures : (2.9, 2.10, 2.11).

2.6 Conclusion sur la théorie de zone refining

La théorie ainsi établie pour calculer la répartition de l'impureté le long d'un barreau après un ou plusieurs passages de la source reste une approche et un modèle théorique de référence pour le processus de purification, par zone fondue, supposé unidirectionnel et avec des conditions opératoires bien déterminées. Mais ce modèle a ses limites, lorsque les conditions opératoires et la géométrie du barreau engendrent leurs propres effets sur la distribution des solutés. D'autre part les effets temporels peuvent aussi contribuer à cette nouvelle distribution d'impureté et par suite le degré de purification atteint est tout a fait différent à celui prévu par la théorie monodimensionnelle classique.

Partie II

Modélisation du processus de purification

Chapitre 3

Modélisation mathématique du processus de purification

3.1 Introduction

La théorie de zone melting proposée par G.W Pfann [PFAN, 58] repose sur des considérations et des hypothèses simplificatrices, faisant en sorte que le profil de concentration dans le solide, le long d'un barreau purifié, lors d'un premier passage d'une source de chaleur tubulaire, se déplaçant à une vitesse lente et constante, est obtenu par une expression, issue d'un bilan de conservation de masse des solutés sur une tranche cylindrique, de section unitaire et d'épaisseur Δz. La concentration dans le solide en un point d'abscisse x est donnée par l'expression : $C_s(x) = C_0[1+(k-1)e^{(\frac{-kx}{\Delta z})}]$. Ce modèle unidimensionnel simplifié, a ses limites et ne peut être appliqué pour des géométries et des conditions opératoires dont les effets bidimensionnels, tridimensionnels et temporels peuvent se manifester en modifiant la répartition d'impureté dans le barreau. Ainsi le processus de purification en question sera conditionné par ces effets. Nous avons jugé utile de modéliser ce processus de purification en tenant compte des effets cités ci-dessus ainsi que l'influence des principaux paramètres gouvernant ce processus tels que : la densité de flux de chaleur q, la largeur de la zone fondue Δz, la vitesse de déplacement des sources mobiles V_S et le rayon du barreau R.Tous ces paramètres sont susceptibles de modifier la répartition des solutés dans le barreau [PFAN, 58].

3.2 Présentation du problème

Il s'agit de modéliser un procédé de purification utilisant le processus de fusion et solidification successives en faisant déplacer une zone fondue le long d'un barreau disposé verticalement ou horizontalement (et parfois incliné par rapport à l'horizontale) [PFAN, 58]. Dans ce processus de fusion solidification, plusieurs modes d'échange et de transfert thermiques et massiques peuvent exister : la conduction, le rayonnement, la convection naturelle ou forcée (dans le cas d'un brassage du bain liquide), la ségrégation et la macro ségrégation induites lors de la fusion et la solidification [PFAN, 58], [GHOS, 01], [DREV, 02], [SADH, 01], la thermo diffusion (effet Soret) [BERT, 97].
Pour modéliser ce procédé de zone melting (zone refining), nous nous intéressons à une disposition bien particulière du barreau et nous faisons des simplifications quant aux échanges thermiques et les conditions aux limites à imposer. Nous retiendrons une configuration bien adaptée, c'est celle d'un barreau disposé verticalement. Ce choix évite de faire intervenir l'effet de la gravité dans ce processus. Il a été montré dans une étude (voir annexes A, B), que la section la plus avantageuse en terme d'optimisation d'énergie mise en jeu dans ce processus est celle d'une section circulaire. En effet pour faire fondre un barreau jusqu'au cœur, entièrement ou encore partiellement sur l'une de ses tranches (de largeur Δz), qui les composent, nous avons simulé le cas d'un barreau avec différentes sections (circulaire et carrée) pour les mêmes conditions (même puissance de chauffage et même volume). Les résultats de la simulation confirment dans les deux cas: (conduction pure et conduction avec changement de phase) que, prendre un barreau à section circulaire est plus rentable en terme de temps de fusion et par conséquent d'énergie fournie au barreau.

La simulation dans le cas de la conduction pure permet de généraliser cette étude aux différents matériaux ne serait ce que pour le début de fusion (solidus) puisque par choix adimensionnel, le seul paramètre qui gouverne l'équation de la chaleur adimensionnelle est le temps adimensionnel t^+ ou encore le nombre de Fourier (Fo).
Dans cette étude nous prenons un cylindrique plein, de rayon R et de longueur L_b disposé verticalement, initialement à une température uniforme T(r, z, t=0) = T_i . On applique une densité de flux de chaleur constante q_c à une tranche d'épaisseur Δz sur la paroi (r = R). La tranche adjacente d'épaisseur Δz située au dessous de celle chauffée, échange elle aussi de la chaleur avec un milieu refroidissant, et la densité de flux de chaleur dégagé à travers celle-ci est q_f. La nature de la source de chaleur peut être des fours à induction de forme tubulaire ou encore une source laser adaptée et dans ce cas, l'interaction matière laser doit être prise en compte dans la modélisation. La figure 3.1 montre la géométrie et les conditions thermiques imposées. Le reste du cylindre n'échange pas de la chaleur et est maintenu adiabatique.

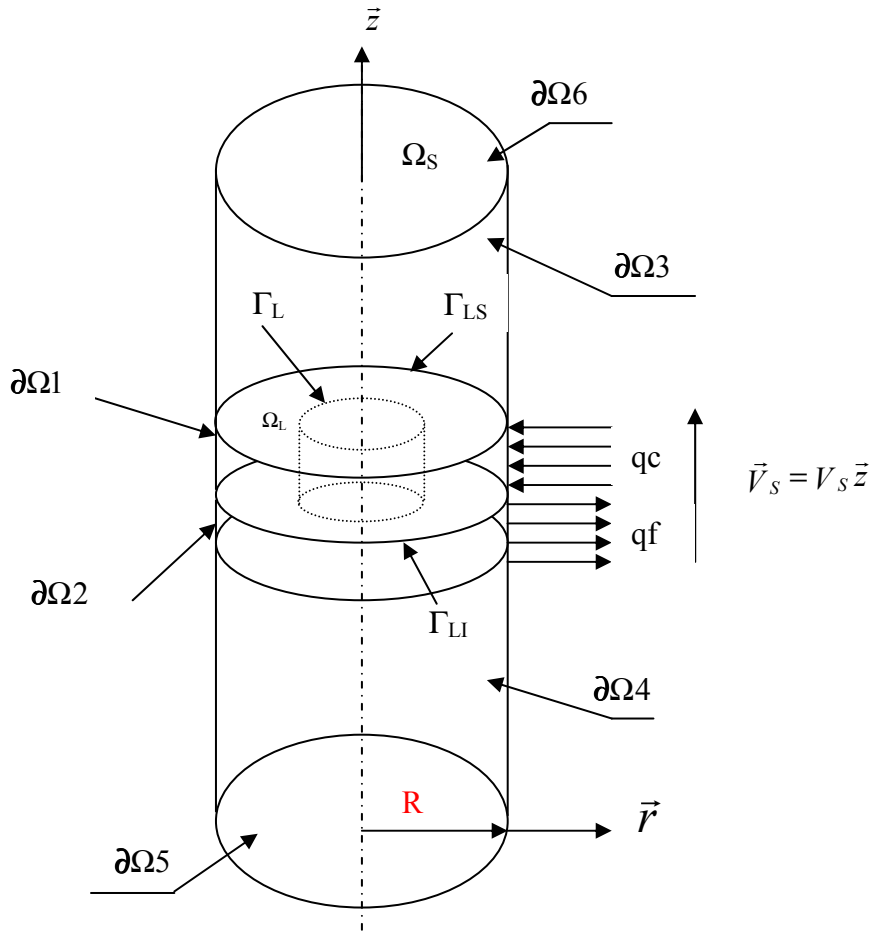


Figure 3.1 : Géométrie du barreau et conditions thermiques imposées

3.3 Hypothèses simplificatrices

- La symétrie cylindrique et la symétrie des conditions de chargement thermique (conditions aux limites) font que le problème peut se traiter comme un cas axisymétrique en r et en z
- Les propriétés thermophysiques d'un matériau dépendent, naturellement, de la température. Pour ne pas introduire de non linéarités dues à cette dépendance et alourdir le calcul numérique, nous les prenons constantes et différentes dans les deux phases (solide et liquide).
- Dans ce procédé de purification ultime et dans le cas de fusion d'une petite tranche, la couche de diffusion thermique est de l'ordre de la zone fondue [PFAN, 58] la convection d'origine thermique peut être négligée ou au cas contraire, il est cependant possible de les prendre en compte en augmentant artificiellement la conductivité thermique du matériau en phase liquide [GUIS, 81]
- La convection d'origine solutale n'est pas calculée mais, elle sera injectée artificiellement dans un modèle de diffusion avec coefficient de diffusion massique modifié.
- La thermodiffusion (appelée effet de Soret dans le liquide) : apparition d'un flux de matière dans un mélange binaire initialement homogène sous l'influence d'un gradient de température sera négligée.
- Dans la zone de mélange, la concentration C et les coefficients de diffusion thermique et chimique ont un comportement linéaire et dépendant de la fraction fondue f_l.
- La densité ρ est considérée comme constante dans tout le domaine à étudier.
- On suppose que la nature de la source de chaleur n'interagit pas avec le matériau (cas laser matière).

3.4 Formulation des problèmes thermique et massique

Dans le cas de la solidification ou la fusion, deux grandes familles de formulations sont couramment utilisées :

Celle de suivi de front qui considère que le domaine est mobile. Dans cette formulation, le bilan d'énergie est écrit dans chaque phase, solide et liquide et un bilan de conservation d'énergie sera écrit à l'interface solide/liquide [KIM, 92]

Celle de la méthode enthalpique [VOLL, 89 ; HILL, 86] qui est généralement la plus utilisée et adaptée à des domaines fixes. Dans cette formulation le bilan d'énergie est écrit en terme d'enthalpie qui intègre la chaleur latente de changement de phase. C'est une formulation continue qui a l'avantage d'avoir un seul domaine d'étude.

Dans le cas de transfert de masse, les choses sont similaires.

Pour celle de suivi de front on écrit un bilan de conservation de masse dans chaque phase liquide et solide et un bilan de conservation est écrit à l'interface solide/liquide

En ce qui concerne la deuxième famille l'équation de conservation de masse est décrite par une variable continue similaire à une activité chimique de façon à traiter le problème sur un seul domaine par analogie à l'équation de l'énergie.

Nous adoptons la méthode enthalpique pour la partie thermique et nous proposons une approche avec une variable continue « activité chimique » pour l'équation de conservation de masse. Avec ce choix de formulation, le problème se présente de la façon suivante:

3.4.1 Formulation du problème thermique

3.4.1.1 Équation de l'énergie

Le comportement thermique est indispensable pour calculer la distribution des températures au cours du processus de fusion-solidification. Ce calcul consiste à résoudre l'équation de la chaleur en se donnant les conditions aux limites d'apport et de perte de chaleur. L'équation de la chaleur découle de la conservation de l'énergie décrite par le premier principe de la thermodynamique. Si la puissance mécanique dissipée et les effets de couplages thermomécaniques sont négligés, et dans le cas où les termes sources ou puits n'apparaissent pas l'équation de la chaleur se réduit à :

$$\rho \frac{\partial H}{\partial t} = -divq$$

Le comportement thermique est en général modélisé par la loi de Fourier qui exprime le flux de chaleur q en fonction du gradient de température :

$$q = -\lambda gradT$$

L'équation de la chaleur devient alors :

$$\rho \frac{\partial H}{\partial t} = div(\lambda\, gradT) \qquad (3.1)$$

H : Enthalpie massique; T : température ; t : temps

$\lambda = \lambda_s (1 - f_l) + \lambda_l . f_l$: Conductivité moyenne dans le mélange et ailleurs

$\lambda_s =$ Conductivité thermique dans le solide

$\lambda_l =$ Conductivité thermique dans le liquide

$f_l =$ fraction de la phase liquide locale

♦ Dans la zone liquide

$$H(T) = C_{ps}T_{Soli} + L_F + C_{pl}(T - T_{Liq}) \quad : \quad T > T_{Liq} \qquad (3.2)$$

♦ Dans la zone de mélange

$$H(T) = C_{ps}T_{Soli} + f_l . L_F \quad : \quad T_{Soli} \leq T \leq T_{Liq} \qquad (3.3)$$

♦ Dans la zone solide

$$H(T) = C_{ps}T \quad : \quad T < T_{Soli} \qquad (3.4)$$

Dans le cas d'équilibre réversible lors de la fusion et de la solidification on pourra tracer pour une concentration donnée les courbes T = f (H) : température en fonction de l'enthalpie et f_l = f (H) : fraction de la phase liquide locale en fonction de l'enthalpie.

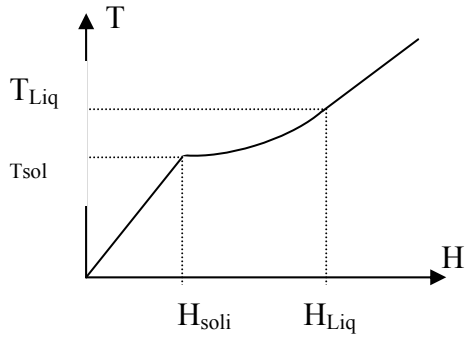


Figure 3.2 : Évolution de la température en fonction de l'enthalpie, Cas pour une température de mélange comprise entre $T_{Solidus}$ et $T_{Liquidus}$

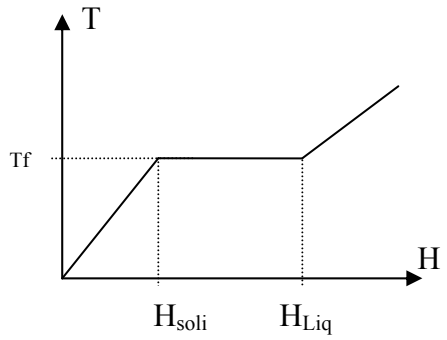


Figure 3.3 : Évolution de la température en fonction de l'enthalpie, Cas d'un eutectique ou d'une très faible concentration

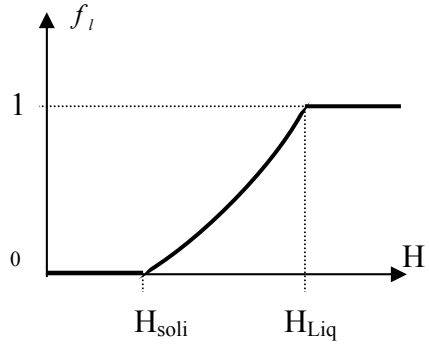


Figure 3.4 : Évolution de la fraction fondue locale f_l en fonction de l'enthalpie massique H

3.4.1.2 Conditions initiales et aux limites

- Conditions initiales :

$$H(r, z, t=0) = H_i$$
$$T(r, z, t=0) = T_i \qquad (3.5)$$

- Conditions aux limites :

$$\lambda \frac{\partial T(r = R, z, t)}{\partial r} = q_c \quad sur \;\; \partial\Omega 1 \qquad (3.6)$$

$$\lambda \frac{\partial T(r=R,z,t)}{\partial r} = q_f \quad sur \;\; \partial\Omega 2 \tag{3.7}$$

$$\lambda \frac{\partial T(r=R,z,t)}{\partial r} = 0 \quad sur \;\; (\partial\Omega 3 \cup \partial\Omega 4) \tag{3.8}$$

$$\lambda \frac{\partial T(r,z=0,t)}{\partial z} = 0 \quad sur \;\; \partial\Omega 5 \tag{3.9}$$

$$\lambda \frac{\partial T(r,z=L,t)}{\partial z} = 0 \quad sur \;\; \partial\Omega 6 \tag{3.10}$$

3.4.1.3 Expressions des températures solidus et liquidus (T_{soli} et T_{Liq})

Il va de soit qu'un diagramme de phase d'un alliage binaire est un diagramme d'équilibre. Il suppose que toute transformation a eu lieu, suite à des successions d'états d'équilibre réversible, en opérant avec des conditions de refroidissement bien particulières (refroidissement lent). Dans le cas du procédé zone refining, la fusion et la solidification peuvent avoir lieu avec des vitesses de chauffage ou de solidification très rapides (transformation hors équilibre) et par suite, la solidification ou la fusion ne se retrouvent plus sur le diagramme d'équilibre et l'état de la matière (structure et microstructure) change. Si nous prenons l'exemple d'un acier (alliage fer carbone) ayant une structure d'équilibre ferrito-perlitique au cours d'un traitement thermique de trempe, la matière peut avoir des structures diverses (martensite, bainite, austénite…), selon les conditions opératoires de chauffage et de refroidissement. Le diagramme T.R.C : Transformation au refroidissement continue d'un acier donnée illustre bien cet état de la matière. Sans rentrer dans les détails de la microstructure, les défauts et les précautions à prendre concernant ces transformations hors équilibre dont la littérature est abondante d'exemples, nous allons donner les expressions des températures de liquidus et solidus moyennant quelques hypothèses simplificatrices. Faute de la complexité du phénomène hors équilibre et le comportement de l'alliage dans ce processus principalement dans la zone de mélange, nous allons se référer sur ce diagramme d'équilibre pour l'alliage en question afin d'évaluer T_{Soli} et T_{Liq}. De même, nous supposons que les courbes de liquidus et solidus sont assimilées à des droites [PFAN, 58], [GUIL, 64], [VOLL, 89].

Pour un alliage binaire dont le coefficient de partage effectif k est inférieur à 1, et avec les hypothèses citées ci-dessus, la représentation d'une portion du diagramme de phase est la suivante :

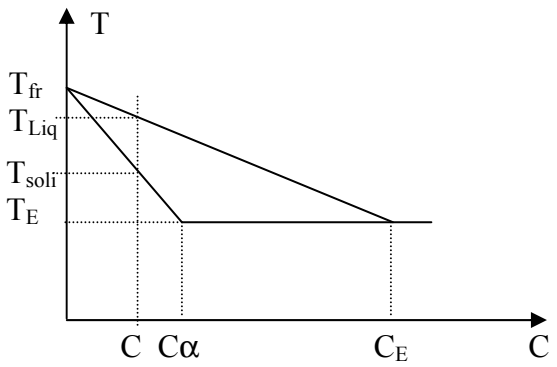


Figure 3.5 : Diagramme de phase binaire simplifié

On peut écrire la pente de solidus respectivement du liquidus de la manière suivante :

$ms = \frac{T_E - T_{fr}}{C_\alpha} = \frac{T_{soli} - T_{fr}}{C}$: Pente de solidus

$ml = \frac{T_E - T_{fr}}{C_E} = \frac{T_{Liq} - T_{fr}}{C}$: Pente de liquidus

Pour un alliage de concentration fixée C, la température de solidus respectivement du liquidus s'expriment telles que :

$$T_{Soli} = m_s C + T_{fr} \quad (3.11)$$

$$T_{Liq} = m_l C + T_{fr} \quad (3.12)$$

3.4.1.4 Fraction de la phase liquide locale f_l

La fraction de la phase liquide locale f_l est égale à la valeur de 0 et 1 respectivement dans le solide et le liquide, par contre le bilan d'énergie dans la zone pâteuse en présence d'un mélange binaire équation (3.3), définit cette quantité comme le rapport de la différence de l'enthalpie massique totale et la chaleur sensible divisée par la chaleur latente.

$$f_l = \frac{H - C_{ps} T_{Soli}}{L_f} \quad (3.13)$$

3.4.1.5 Température de mélange

Deux approches peuvent être abordées :

3.4.1.5.1 Cas général

- Cas où la concentration C< C_α

D'après le diagramme d'équilibre on peut écrire la règle de levier :

$$C = C_s(1 - f_l) + f_l . C_l \quad (3.14)$$

Or : $C_s = k\, C_l$

En remplaçant C_l dans (3.14) cette dernière s'écrit :

$C = C_s(1 - f_l) + f_l . \frac{C_s}{k}$, on obtient finalement:

$$C = \left[\frac{(1 - f_l)k + f_l}{k} \right] C_s \quad (3.15)$$

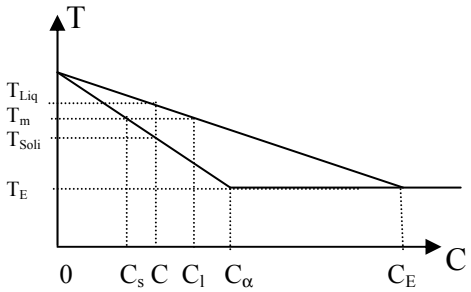


Figure 3.6 : Portion d'un diagramme de phase simplifié

$$\frac{T_m - T_{soli}}{C_s - C} = m_s$$

$$\Rightarrow \qquad T_m - T_{soli} = m_s (C_s - C)$$

de l'équation (3.15) on a :

$$C_s = \frac{k.C}{(1-f_l)k + f_l}$$

$$\Rightarrow \qquad T_m = T_{soli} + m_s \left(\frac{k.C}{(1-f_l)k + f_l} - C\right)$$

$$T_m = T_{soli} + m_s C \left(\frac{f_l(k-1)}{(1-f_l)k + f_l}\right)$$

T_m peut être aussi exprimée en fonction de la température de liquidus T_{Liq} comme suit :

$$T_m = T_{Liq} + m_l C \left(\frac{(1-f_l)(k-1)}{(1-f_l)k + f_l}\right) \qquad ; \qquad k = \frac{m_l}{m_s}$$

▪ Cas où la Concentration C est telle que : $C_\alpha \leq C \leq C_E$

On peut écrire sur le palier eutectique la règle de levier :

$$C = C_\alpha (1-f_l) + f_l C_E \tag{3.16}$$

avec $C_E = \frac{C_\alpha}{k}$

$$C = C_\alpha (1-f_l) + f_l \frac{C_\alpha}{k}$$

$$f_l = \frac{(C - C_\alpha)k}{C_\alpha (1-k)} = f_{l2}$$

On compare cette fraction de la phase liquide avec celle donnée par le bilan d'énergie équation (3.13) :

$$f_l = \frac{H - C_{ps}}{L_f} = f_{l1}$$

$$f_{l1} \leq f_{l2} \qquad \Rightarrow \qquad T_m = T_E$$

$$f_{l1} > f_{l2} \qquad \Rightarrow \qquad T_m = T_{fr} + m_l C_L$$

De l'équation (3.15) on peut exprimer la concentration dans la phase liquide telle que :

$$C_L = \frac{C}{k(1-f_l) + f_l}$$

$$\Rightarrow \quad T_m = T_{fr} + m_l \frac{C}{k(1-f_l) + f_l} \tag{3.17}$$

3.4.1.5.2 Cas des faibles concentrations :

Dans le procédé que nous étudions on se situe généralement dans la zone où la concentration est proche de la valeur zéro, c'est – à –dire de quelques centaines de ppm (faible concentration). On se ramène alors au cas où $C \leq C_\alpha$ et on pourra dans ce cas là, prendre ($T_m = T_{Soli} = T_{Liq} = T_{fr}$), ceci revient à dire que le modèle thermique n'est pas perturbé par les variations de concentration.

3.4.2 Formulation du problème d'espèces

3.4.2.1 Équation de conservation des espèces chimiques

La résolution de l'équation de diffusion sur les trois domaines mobiles : solide, mélange et liquide formant tous un seul domaine fixe (avec comme hypothèse variation de volume négligée), nécessite l'écriture de l'équation avec une seule variable continue U qui est similaire en fait à « l'activité chimique ». Ce modèle suppose dans un premier temps que la concentration dans la zone de mélange est une fonction linéaire de la fraction de la phase liquide locale f_l.

Ce modèle purement diffusif ne tenant pas compte ni de la convection solutale ni de terme source (selon les hypothèses citées plus haut) prend la forme de la loi de Fick classique s'écrit:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -div\varphi \tag{3.18}$$

$$\varphi = -D(f_l)gradU : \quad \text{flux de matière} \tag{3.19}$$

Avec U : Variable continue « Activité chimique »

$$\frac{\partial C}{\partial t} = div(DgradU) \tag{3.20}$$

En fonction de la fraction de la phase liquide locale f_l déterminée dans le problème thermique et selon l'hypothèse avancée ci-dessus que la concentration dans la zone de mélange dépend linéairement de f_l, la concentration prend la forme suivante :

$$C = [(1- f_l).k + f_l]U \tag{3.21}$$

Cette forme vérifie l'équation de la diffusion quelque soit le domaine : solide, mélange ou liquide.

Finalement l'équation (3.20) s'écrit avec la variable U comme suit :

$$[(1-f_l)k + f_l]\frac{\partial U}{\partial t} + (1-k)\frac{\partial f_l}{\partial t}U = div(DgradU) \tag{3.22}$$

Avec :

D : coefficient de diffusion global qui prend en compte toute sorte de phénomène physique. De même on distinguera un coefficient de diffusion dans le solide et dans le liquide. Pour la zone de mélange on procède par linéarisation tel que :

$D = k\,(1- f_l)\,D_S + f_l\,D_l$

D_S : Coefficient de diffusion dans le solide

D_l : Coefficient de diffusion dans le liquide

k : coefficient de partage

$f_s C_S + f_l C_L = C_i$ avec : $f_s + f_l = 1$

f_s : Fraction de la phase solide locale

Le coefficient de partage effectif k peut être inférieur ou supérieur à l'unité. Dans le cas de la figure 3.6 (impureté directe : k <1), k est défini tel que : $k = C_{SI}/C_{LI}$ et l'indice I désigne l'interface solide/liquide.

3.4.2.2 Conditions initiales et aux limites

Généralement, le barreau est initialement pour la première passe à une concentration C_0 uniforme.

Aucun échange de matière ne sera possible vers l'extérieur et aucun flux n'est observé sur la frontière du barreau. Avec ces hypothèses on peut écrire :

- Conditions initiales :

$$C(r, z, t=0) = C_i = C_0 \quad : \text{C.I} \tag{3.23}$$

- Conditions aux limites :

$$\frac{\partial C}{\partial \mathbf{n}} = 0 \text{ sur } \partial\Omega \tag{3.24}$$

Toutes les parois sont considérées comme rigides et imperméables.

n : vecteur normale unitaire à la surface

3.5 Formulation adimensionnelle

Compte tenu de la diversité des paramètres physiques et de leurs importances relatives on procède à une mise d'une forme adimensionnelle afin de mieux faire apparaître le rôle de chaque paramètre dans le processus. On choisit comme grandeurs de référence :

L : Longueur de référence

T_0 : Température ambiante = 20°C

T_{fr} : Température de fusion du solvant

C_0 : Concentration initiale dans barreau de départ

On pose:

$$R^+ = \frac{r}{L} \; ; \; X^+ = \frac{x}{L} \; ; \; Y^+ = \frac{y}{L} \; ; \; Z^+ = \frac{z}{L} \; ; \; T^+ = \frac{T - T_0}{T_{fr} - T_0} \; ; \; t^+ = \frac{a_s . t}{L^2}$$

$$\tilde{c} = \frac{C_{pl}}{C_{ps}} \; ; \; \tilde{\lambda} = \frac{\lambda_l}{\lambda_s} \; ; \; a_s = \frac{\lambda_s}{\rho C_{ps}} \; ; \; L_f^* = \frac{L_f}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)} = Ste^{-1}$$

$$\tilde{d} = \frac{D_l}{D_s} \; ; \; \text{Lews} = \frac{a_s}{D_s} \; ; \; m_s^+ = \frac{m_s C_0}{T_{fr} - T_0} \; ; \; m_l^+ = \frac{m_l C_0}{T_{fr} - T_0}$$

$$H^+ = \frac{H - H_0}{H_{fr} - H_0} \qquad \text{avec: } H_{fr} = C_{ps} T_{fr} \text{ et } H_0 = C_{ps} T_0$$

$$q^+ = \frac{q}{qref} = \frac{q L}{\lambda_s (T_{fr} - T_0)} \qquad \text{avec: } qref = \frac{\lambda_s (T_{fr} - T_0)}{L}$$

$$C^+ = \frac{C}{C_0} \; ; \quad U^+ = \frac{U}{C_0}$$

Où Ste est le nombre de Stefan
$Lews$ est le nombre de Lewis dans le solide
H_{fr} est l'enthalpie massique maximale dans le solide
H_0 est l'enthalpie massique de référence
q_{ref} est la densité de flux de chaleur de référence
t^+ est le temps adimensionnel et correspond au nombre de Fourier (Fo)

3.5.1 Formulation adimensionnelle du problème Thermique

3.5.1.1 Équation de l'énergie adimensionnelle

L'équation de l'énergie (3.1) s'écrit :

$$\rho \frac{\partial H(T)}{\partial t} = div(\lambda gradT) \quad : \quad \text{peut s'écrire :}$$

$$\rho \frac{\partial (H(T) - H_0)}{\partial t} = div(\lambda grad(T - T_0)) \qquad car : H_0 \text{ et } T_0 \text{ sont des constantes}$$

$$\rho a_s \frac{(H_{fr} - H_0)}{L^2} \frac{\partial H^+}{\partial t^+} = \frac{(T_{fr} - T_0)}{L^2} div(\lambda grad(T^+) \qquad sur \quad \Omega$$

Or : $H_{fr} - H_0 = C_{ps}(T_{fr} - T_0)$

$$\lambda = \lambda_s[(1 - f_l) + \tilde{\lambda} f_l]$$

Finalement l'équation de l'énergie adimensionnelle s'écrit :

$$\frac{\partial H^+}{\partial t^+} = div([(1 - f_l) + \tilde{\lambda} f_l] grad\, T^+) \qquad sur\, \Omega \tag{3.25}$$

3.5.1.2 Conditions initiales et aux limites adimensionnelles

- **Conditions initiales:**

$$H^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = H_i^+$$
$$T^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = T_i^+ \tag{3.26}$$

- **Conditions aux limites**:

Les conditions aux limites s'écrivent en terme de T^+

$$\frac{\partial T^+(R^+ = R/L,\, Z^+, t^+)}{\partial R^+} = q_c^+ \quad \text{sur } \partial\Omega 1 \tag{3.27}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+ = R/L,\, Z^+, t^+)}{\partial R^+} = q_f^+ \quad \text{sur } \partial\Omega 2 \tag{3.28}$$

$$\frac{\partial T^{+}(R^{+}=R/L,\ Z^{+},t^{+})}{\partial R^{+}}=0 \qquad \text{sur } (\partial\Omega 3 \cup \partial\Omega 4) \tag{3.29}$$

$$\frac{\partial T^{+}(R^{+},\ Z^{+}=0,t^{+})}{\partial Z^{+}}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 5 \tag{3.30}$$

$$\frac{\partial T^{+}(R^{+},\ Z^{+}=L_b/L,\ t^{+})}{\partial Z^{+}}=0 \quad \text{sur } \partial\Omega 6 \tag{3.31}$$

3.5.1.3 Expressions des températures adimensionnelles solidus et liquidus (T^{+}_{soli} et T^{+}_{Liq})

On transforme l'équation (3.11) : $T_{Soli} = m_s C + T_{fr}$ en :

$T_{Soli} - T_0 = m_s C + T_{fr} - T_0$ et en divisant le tout par $(T_{fr} - T_0)$

On obtient :

$$T^{+}_{soli} = m^{+}_{s} C^{+} + 1 \tag{3.32}$$

De la même manière, on transforme l'équation (3.12) : $T_{Liq} = m_l C + T_{fr}$ en :

$T_{Liq} - T_0 = m_l C + T_{fr} - T_0$ et en divisant le tout par $(T_{fr} - T_0)$

On obtient :

$$T^{+}_{Liq} = m^{+}_{l} C^{+} + 1 \tag{3.33}$$

3.5.1.4 Relation entre H^{+} et T^{+}

a) Cas général

♦ Dans la zone liquide

On transforme l'équation (3.2) :

$H(T) = C_{ps} T_{Soli} + L_f + C_{pl}(T - T_{Liq})$: $T > T_{Liq}$

En : $H(T) - H_0 = C_{ps}T_{Soli} + L_f + C_{pl}(T - T_{Liq}) - H_0$ et en divisant le tout par $(H_{fr} - H_0)$

On obtient :

$$H^{+} = \frac{C_{ps}(T_{Soli} - T_0) + L_f + C_{pl}(T - T_{Liq})}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)}$$

$$H^{+} = \frac{C_{ps}(T_{Soli} - T_0) + L_f + C_{pl}(T - T_{Liq}) + C_{pl}(T_0 - T_0)}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)}$$

$$H^{+} = \frac{C_{ps}(T_{Solii} - T_0) + L_f + C_{pl}(T - T_0) + C_{pl}(T_0 - T_{Liq})}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)}$$

$$H^{+} = T^{+}_{soli} + \frac{1}{Ste} + \tilde{c}(T^{+} - T^{+}_{Liq}) \qquad T^{+} > T^{+}_{Liq} \tag{3.34}$$

♦ **Dans la zone de mélange**

On transforme l'équation (3.3) :

$H(T) = C_{ps}T_{Soli} + f_l L_F$: $T_{Soli} \leq T \leq T_{Liq}$

En : $H(T) - H_0 = C_{ps}T_{Soli} + f_l L_F - H_0$ et en divisant le tout par $(H_{fr}-H_0)$

On obtient :

$$H^+ = \frac{C_{ps}(T_{Soli} - T_0) + f_l L_f}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)} = T^+_{soli} + \frac{f_l}{Ste} \qquad T^+_{soli} \leq T^+ \leq T^+_{Liq} \tag{3.35}$$

♦ **Dans la zone solide**

On transforme l'équation (3.4) :

$H(T) = C_{ps}T$: $T < T_{Soli}$

En : $H(T) - H_0 = C_{ps}T - H_0$ et en divisant le tout par $(H_{fr} - H_0)$

On obtient :

$$H^+ = \frac{C_{ps}(T - T_0)}{C_{ps}(T_{fr} - T_0)} = T^+ \qquad T^+ < T^+_{soli} \tag{3.36}$$

b) Cas des faibles concentrations

$T_{Soli} = T_{Liq} = T_m = T_{fr}$

Dans ce cas, l'étude du cas général se réduit à :

♦ **Dans la zone liquide**

$$H^+ = 1 + \frac{1}{Ste} + \tilde{c}(T^+ - 1) \qquad T^+ > 1 \tag{3.37}$$

♦ **Dans la zone de mélange**

$$H^+ = 1 + \frac{f_l}{Ste} \qquad T^+ = 1 \tag{3.38}$$

♦ **Dans la zone solide**

$$H^+ = T^+ \qquad T^+ < 1 \tag{3.39}$$

C'est dans ce cas bien particulier de faibles concentrations que notre étude va porter.

3.5.1.5 Fraction de la phase liquide locale f_l adimensionnelle

La fraction de la phase liquide locale adimensionnelle f_l^+ est aussi la fraction dimensionnelle f_l, il suffit de manipuler l'équation (3.13) en rajoutant et en retranchant la quantité $C_{ps}T_{Soli}$ au numérateur. Elle s'exprime donc en fonction du nombre de Stefan (Ste), de l'enthalpie et de température de solidus adimensionnelles.

$$f_l^+ = f_l = Ste(H^+ - T^+_{Soli}) \quad \text{: cas général} \tag{3.40}$$

$$f_l^+ = f_l Ste(H^+ - 1) \quad \text{: cas des faibles concentrations} \tag{3.41}$$

3.5.2 Formulation adimensionnelle du problème d'espèces

3.5.2.1 Équation des espèces adimensionnelle

En manipulant l'équation des espèces (3.20) : $\frac{\partial C}{\partial t} = div(D\, gradU)$ avec les grandeurs adimensionnelles on obtient :

$$C_0 a_s \frac{\partial C^+}{L^2 \partial t^+} = \frac{C_0}{L^2} div(Dgrad\, U^+) = \frac{C_0}{L^2} D_s\, div([k(1-f_l^+) + \tilde{d}\, f_l^+] grad\, U^+)$$

$$\frac{\partial C^+}{\partial t^+} = \frac{D_s}{a_s} div([k(1-f_l^+) + \tilde{d}\, f_l^+]) = \frac{1}{Lews} div([k(1-f_l^+) + \tilde{d}\, f_l^+] grad\, U^+)$$

$$\frac{\partial C^+}{\partial t^+} = \frac{\tilde{d}}{Lews} div([\frac{k(1-f_l^+)}{\tilde{d}} + f_l^+] grad\, U^+) \qquad (3.42)$$

Avec :

$$C^+ = [(1-f_l^+)k + f_l^+]U^+ \qquad (3.43)$$

$Lews$: désigne le nombre de Lewis dans le solide

En remplaçant C^+ dans (3.42), on obtient finalement l'équation des espèces adimensionnelle suivante :

$$[(1-f_l^+)k + f_l^+]\frac{\partial U^+}{\partial t^+} + (1-k)U^+ \frac{\partial f_l^+}{\partial t^+} = \frac{\tilde{d}}{Lews} div([\frac{k(1-f_l^+)}{\tilde{d}} + f_l^+] grad\, U^+) \qquad (3.44)$$

3.5.2.2 Conditions initiales et aux limites adimensionnelles

- **Condition initiale :**

$$U^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = U_0^+ = \frac{1}{k} \qquad (3.45)$$

- **Conditions aux limites :**

Toutes les parois sont considérées rigides et imperméables :

$$\frac{\partial U^+}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad sur \;\; \partial\Omega \qquad (3.46)$$

3.5.3 Discussion et conclusion sur les équations adimensionnelles

L'étude de comportement thermique et massique nécessite la connaissance d'un certain nombre de paramètres adimensionnels :

- De l'équation de l'énergie nous avons déduit le comportement thermique pour lequel le nombre de Stefan et le nombre de Fourier sont à connaître.
- De l'équation de diffusion nous obtenons les différents paramètres à connaître à savoir:
  - Le coefficient de partage effectif k variant dans notre cas de 0 à 1
  - Le rapport de diffusions massiques liquide/solide : $\tilde{d}$ qui est de l'ordre de 10^8 dans le cas du silicium.
  - La fraction de la phase liquide locale f_l qui se calcule à partir du problème

thermique variant de 0 à 1et qui joue le rôle déterminant dans le processus de diffusion et de drainage des impuretés.

- Le nombre de Lewis dans le solide ($Lews$). Ce dernier peut atteindre des valeurs de l'ordre de 10^8 pour les matériaux métalliques et des valeurs encore plus importantes dans les cas des semi-conducteurs (10^{12} dans le silicium-germanium).

À partir de cette analyse et pour un nombre de Lewis très élevé, il est prévisible qu'on pourrait dire que le second membre de l'équation (3.44) peut être négligé du fait de sa faible valeur dans la zone solide qui est de l'ordre de 10^{-8} pour un métal [RAPP, 98], [SHIA, 98]. Cette initiative n'arrange en rien les choses et pose le problème de non conservation de concentration en impuretés dans le barreau, supposé imperméable. En effet dans la modélisation de ce processus de purification un peu particulier on s'est inspiré de l'équation de diffusion classique loi de Fick, moyennant quelques modifications à apporter pour rendre cette équation représentative du processus réel de purification par zone fondue. Du fait de la technique utilisée : déplacement d'une zone fondue tout le long d'un barreau avec une vitesse plus au moins lente qui aura pour conséquence le drainage des impuretés via l'interface solide liquide, qui se charge et se décharge d'une façon quasi instantané, on pourra supposer que les temps caractéristiques de diffusion massique et thermique est du même ordre, et qu'il faudra introduire un coefficient de diffusion massique global artificiel compensant tous les phénomènes qui rentrent en jeu dans ce processus. Cela revient à adopter un nombre de Lewis dans le liquide de l'ordre de l'unité.

Partie III

Étude numérique

Chapitre 4

Méthodes Numériques

4.1 Généralités

4.1.1 Nécessité d'une simulation numérique

Une étude numérique s'avère indispensable en « post-analyse » d'une étude expérimentale, ou d'un modèle complexe dont la solution analytique ne peut pas être trouvée explicitement, à cause d'un couplage ou non linéarité des équations à manipuler. Surtout dans un cadre où plusieurs paramètres gouvernant un processus réel et que chacun de ces paramètres manifeste une tendance sur les résultats. Cette étude nous permet, d'essayer de mieux comprendre les phénomènes qui se sont déroulés après une expérience ou, à défaut nous guider vers une approximation d'un phénomène physique mal maîtrisé.

D'une manière générale, le calcul numérique permet de diminuer la réalisation de nombreuses séries d'expériences qui pourront atteindre un coût, très élevé pour l'industriel. C'est le cas de notre processus de purification dans laquelle la maîtrise de chacun des paramètres comme, la vitesse de déplacement de la source, la largeur de la zone fondue, le rayon du barreau et les conditions de chauffage et de refroidissement apporte un gain important à ce procédé. De plus, le modèle numérique est un outil puissant qui autorise le passage de l'échantillon au produit réel. Par contre, une approche analytique peut suffire à traduire le comportement partiel de certains cas particuliers mais elle reste insuffisante pour l'analyse complète du cas général. De même, les grandeurs accessibles à partir de l'expérience sont limitées par les moyens et les méthodes d'acquisition ou pour des raisons de précision.

4.1.2 Méthodes de simulation

La fusion et la solidification sont des exemples typiques de changement de phases rencontrés couramment dans l'industrie. Ces processus impliquent des phénomènes complexes de transfert de chaleur et de masse qui déterminent la qualité et les caractéristiques microstructurales d'un matériau. La complexité de ces problèmes à changement de phases réside dans la présence d'une interface ou d'une zone de mélange dite zone pâteuse qui sont mobiles et dont la position est inconnue.

Des méthodes numériques ont souvent contribué à la résolution de problèmes plus au moins complexes que jusque là résolus analytiquement. Ces méthodes ont fait l'objet de plusieurs publications au cours de ces dernières décennies. Elles s'appuient sur la technique de transformation de domaine, technique de suivi de front, lorsque l'interface est une surface de discontinuité franche [GUPT, 89], [KECE, 89], comme le cas de changement de phases isotherme ou dans les études de micro- ségrégation [UDAY, 95], [WANG, 97], dans ces cas on adapte le maillage au niveau de la position de l'interface (maillage évolutif), ou bien on fixe le front mobile moyennant des transformations géométriques particulières (transformation de Landau, transformation de Friedman) [JARN, 89], [SUND, 93]. Ces dernières méthodes sont beaucoup plus délicates à mettre en œuvre, notamment pour des

problèmes bi- ou tridimensionnels. Elles sont cependant très utiles pour les transformations isothermes (par exemple solidification d'un corps pur) pour lesquelles l'interface macroscopique est lisse. Une deuxième méthode est basée sur une formulation enthalpique, moyennant une technique d'homogénéisation afin de prendre en compte les phénomènes d'interaction entre phases localisées au voisinage de la zone de changement d'état. Cette technique présente l'avantage de pouvoir traiter facilement les problèmes diphasiques de convection-diffusion. En particulier, elle ne nécessite pas une adaptation particulière du maillage vis-à-vis de l'interface (si elle existe) séparant les phases liquide et solide. Le calcul peut donc être mené suivant un maillage fixe défini au début de la résolution [VOLL, 87], [ELGA, 99]. Par cette méthode, il est possible de traiter aussi bien les problèmes de fusion-solidification des matériaux purs pour lesquels le changement d'état intervient à une température définie, que les alliages binaires caractérisés par un changement d'état étalé entre une température liquidus et solidus elles mêmes fonctions de la composition du matériau [BENN, 87]. Elle peut être utilisée pour résoudre des problèmes multi-dimensionnels [MORV, 94], [CAO, 89]. Cette dernière est couramment utilisée et préférée pour ce genre de problèmes à géométrie complexe. Dans le cadre de notre étude, nous adoptons l'approche enthalpique pour la résolution du problème thermique et nous proposons par analogie à cette dernière, une modélisation pour la résolution du problème de diffusion et du drainage des espèces.

4.2 Simulation

Il s'agit ici de faire son choix vis-à-vis des méthodes de simulation énumérées ci-dessus mais également aux méthodes de formulations numériques des équations et modèles mathématiques à savoir : différences finies, éléments finis, volumes finis ou éléments de frontières. Ce choix se fait alors sous différentes contraintes et considérations entre autre : temps de calcul, outil de simulation numérique à disposition, géométrie particulière etc…

4.2.1 Discrétisation spatiale

Nous adoptons la méthode des éléments finis comme moyen de discrétisation spatiale des équations de la chaleur et des espèces. Cette méthode a l'avantage d'être simple à mettre en œuvre. Les codes de calcul de ce type sont standards et courants. Pour notre part, le code CASTEM 2000 développé au commissariat à l'énergie atomique (C.E.A) a été préféré pour des raisons pratiques et sa disponibilité. Son avantage vient de la souplesse de son langage de programmation (langage Gibiane) qui permet d'incorporer sa propre procédure et son propre schéma de résolution par comparaison à d'autres codes classiques (ABAQUS, FLUENT, AINSYS…). Une raison de plus est que le déplacement des sources mobiles nécessite le développement d'une procédure spécifique rendant, les conditions aux limites applicables sur chaque tranche traversée par les sources de chauffage et de refroidissement. Le déclenchement en déplacement ainsi que l'arrêt de ces sources doivent être intégrés dans la procédure. Ces critères de déclenchement et d'arrêt des sources sont respectivement la fusion totale de la tranche initiale jusqu'au cœur du barreau sur une largeur estimée satisfaisante et l'arrivée de la source de chauffage à l'extrémité haute du barreau ($z = L_b$) ou à une autre position du barreau jugée nécessaire.
Étant donné la symétrie (de la géométrie et des conditions aux limites) notre étude se ramène à un cas axisymétrique en R^+ et Z^+.
Pour obtenir les modèles éléments finis, les équations (3.25) et (3.44) sont écrites sous formes variationnelles faibles.

4.2.1.1 Discrétisation spatiale du problème thermique

Pour discrétiser l'équation de l'énergie nous passons par une formulation variationnelle. On choisit un espace des champs de températures ou d'enthalpies adimensionnelles admissibles tel que :

$W^{ad} = [H^+ \text{ et } T^+ \in H^1 / H^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = H_i^+ \text{ et } T^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = T_i^+ \ ]$

$\forall \omega \in W^{ad}$ avec ω fonction de forme on a :

$$\int_0^\tau \int_\Omega \left\{ \frac{\partial H^+}{\partial t^+} - \Delta T^+ \right\} \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt = 0 \qquad (4.1)$$

Le Théorème de la divergence permet d'écrire :

$$\int_0^\tau \int_\Omega \Delta T^+ \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt = \int_0^\tau \int_\Omega div(\nabla T^+ \omega(R^+, Z^+, t^+)) d\Omega dt - \int_0^\tau \int_\Omega \nabla T^+ . \nabla \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt$$

$$= \int_0^\tau \int_{\partial\Omega} \nabla T^+ . \vec{n}\, \omega(R^+, Z^+, t^+) dS dt - \int_0^\tau \int_\Omega \nabla T^+ . \nabla \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt$$

Avec : $\partial\Omega = \partial\Omega_1 + \partial\Omega_2 + \partial\Omega_3 + \partial\Omega_4 + \partial\Omega_5 + \partial\Omega_6$

Or : $\begin{cases} \nabla T^+ . \vec{n} = 0 & sur\ \partial\Omega_3, \partial\Omega_4, \partial\Omega_5, \partial\Omega_6 \\ \nabla T^+ . \vec{n} = q_c^+ & sur\ \partial\Omega_1 \\ \nabla T^+ . \vec{n} = q_f^+ & sur\ \partial\Omega_2 \end{cases}$

Finalement, la formulation variationnelle du problème thermique s'écrit :

$$\int_0^\tau \int_\Omega \frac{\partial H^+}{\partial t^+} \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt + \int_0^\tau \int_\Omega \nabla T^+ . \nabla \omega(R^+, Z^+, t^+) d\Omega dt =$$

$$\int_0^\tau \int_{\partial\Omega_1} q_c^+ \omega(R^+, Z^+, t^+) dS dt + \int_0^\tau \int_{\partial\Omega_2} q_f^+ \omega(R^+, Z^+, t^+) dS dt \quad \text{et ceci } \forall \omega \in W^{ad} \qquad (4.2)$$

L'équation de l'énergie discrétisée est de la forme :

$$M_T \dot{H}^+ + K_T T^+ = F \qquad (4.3)$$

Où M_T est la matrice de capacité, K_T est la matrice de conductivité et F le second membre des flux thermiques ($q_c^+ \, et \, q_f^+$).

Cette équation est linéaire dans chacune des phases solide et liquide. Par contre, dans le mélange, elle présente une non linéarité due au fait que la matrice de conductivité K_T dépend de la fraction de la phase liquide f_l et par conséquent un schéma explicite est préférable.

4.2.12 Discrétisation spatiale du problème de concentration

L'équation de diffusion est semblable à celle de la thermique, sans surprise on aura la même formulation même si les coefficients pourraient être très différents de la thermique.
De la même manière, on choisit un espace des champs de concentration adimensionnelle admissible tel que :

$W_c^{ad} = [U^+ \in H^1 / U^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = 1/k]$

$\forall \Psi \in W_c^{ad}$ avec Ψ fonction de forme on a :

$$\int_0^\tau \int_\Omega \left\{[(1-f_l)k+f_l]\frac{\partial U^+}{\partial t^+}+(1-k)U^+\frac{\partial f_l}{\partial t^+}\right\}\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt = \int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews}\left\{div[(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)grad\,U^+]\right\}\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt \quad (4.4)$$

Par le Théorème de la divergence on a :

$$\int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews}\left\{div[(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)grad\,U^+]\right\}\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt =$$

$$\int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews} div[(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)\nabla U^+\psi(R^+,Z^+,t^+)]d\Omega dt -$$
$$\int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews}(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)\nabla U^+.\nabla\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt$$
$$= \int_0^\tau \int_{\partial\Omega} \frac{\tilde{d}}{lews}(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)\nabla U^+.\vec{n}\,\psi(R^+,Z^+,t^+)dSdt -$$
$$\int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews}(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)\nabla U^+.\nabla\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt$$

Avec : $\partial\Omega = \partial\Omega_1+\partial\Omega_2+\partial\Omega_3+\partial\Omega_4+\partial\Omega_5+\partial\Omega_6$

Or : $\nabla U^+.\vec{n}=0$ partout sur $\partial\Omega$

Finalement, la formulation variationnelle du problème de concentration s'écrit :

$$\int_0^\tau \int_\Omega [(1-f_l)k+f_l]\frac{\partial U^+}{\partial t^+}\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt + \int_0^\tau \int_\Omega \frac{\tilde{d}}{lews}(\frac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l)\nabla U^+.\nabla\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt$$
$$+\int_0^\tau \int_\Omega [(1-k)U^+\frac{\partial f_l}{\partial t^+}]\psi(R^+,Z^+,t^+)d\Omega dt = 0 \qquad \text{et ceci } \forall\psi \in W_c^{ad} \quad (4.5)$$

L'équation de concentration discrétisée est de la forme :

$$A_{c1}M_{c1}\dot{U}^+ + B_{c1}K_{C1}U^+ + A_{C2}M_{C2}U^+ = 0 \quad (4.6)$$

Où M_{c1} et M_{c2} sont des matrices de ''capacité '', K_C est la matrice de ''conductivité ''

Avec : $\begin{cases} A_{C1} = [(1-f_l)k+f_l] \\ B_{C1} = \dfrac{\tilde{d}}{lews}(\dfrac{(1-f_l)k}{\tilde{d}}+f_l) \\ A_{C2} = (1-k)\dfrac{\partial f_l}{\partial t^+} = (1-k)\dfrac{(f_l^{n+1}-f_l^n)}{\Delta\tau} \end{cases}$

On pose : $\begin{cases} M_C = A_{C1}M_{C1} \\ K_C = B_{C1}K_{C1} \\ M_{Cf} = A_{C2}M_{C2} \end{cases}$

Alors l'équation (4.6) s'écrit :

$$M_c \dot{U}^+ + (K_C + M_{Cf})\, U^+ = 0 \tag{4.7}$$

De la même manière que l'équation de l'énergie, l'équation des espèces est linéaire dans chacune des phases solide et liquide et perd sa linéarité dans la zone de mélange du fait que M_c, K_C et M_{Cf} dépendent de la fraction de la phase liquide f_l. Un schéma explicite est donc préférable.

4.2.2 Discrétisation temporelle

4.2.2.1Discrétisation temporelle du problème thermique

La période d'intégration TT_i du problème thermique est discrétisée en N intervalles décrit par la variable n = 0,…, N.

Le pas de temps est alors fixé à $\Delta\tau = \frac{TT_i}{N}$. Nous adoptons la notation suivante :

$$\begin{cases} \tau_n = n.\Delta\tau \\ H_n^+ = H^+(\tau_n) \\ \tau_0 = 0 \end{cases} \tag{4.8}$$

Pour $\dot{H}^+$ et T^+ la discrétisation est tels que :

$$\begin{cases} \dot{H}^+ = \dfrac{H_{n+1}^+ - H_n^+}{\Delta\tau} \\ T^+ = T_n^+ \end{cases} \tag{4.9}$$

L'équation (4.3) au temps τ_n, devient alors :

$$M_T \frac{H_{n+1}^+ - H_n^+}{\Delta\tau} + K_T\, T_n^+ = \widetilde{F}_n \tag{4.10}$$

En ce qui concerne le terme $\widetilde{F}_n$ des flux thermiques, des sources volumique et de contact, il ne s'agit pas d'une inconnue de problème, il est donné et sa discrétisation n'a pas d'importance majeure. Pour ne pas compliquer la formulation, nous choisissons tout simplement de prendre $\widetilde{F}_n = F_n$

Dans ce cas, l'équation de l'énergie discrétisée devient :

$$\frac{M_T}{\Delta\tau} H_{n+1}^+ = \frac{M_T}{\Delta\tau} H_n^+ - K_T T_n^+ + F_n \tag{4.11}$$

On pose :

$$\begin{cases} A_T = \dfrac{M_T}{\Delta\tau} \\ B_T = K_T \end{cases} \tag{4.12}$$

Finalement on obtient :

$$A_T H_{n+1}^+ = A_T H_n^+ - B_T T_n^+ + F_n \tag{4.13}$$

Pour que ce schéma soit stable sur le pas de temps $\Delta\tau$, un critère de stabilité doit être vérifié. En effet, le pas de temps $\Delta\tau$ doit être inférieur à un temps critique qui dépend du maillage (taille de la maille) et de propriétés du matériau caractérisées ici par A_T et B_T. Nous revenons en détail sur ce critère de stabilité.

4.2.2.2 Discrétisation temporelle du problème de concentration

La période d'intégration de l'équation de diffusion est la même que celle de la thermique soit (TT_i). Elle est discrétisée en N intervalles décrit par la variable n = 0, 1…, N. Le pas de temps est égale à celui de la thermique soit : $\Delta\tau = \frac{TT_i}{N}$. De la même manière, nous adoptons pour les espèces la notation suivante :

$$\begin{cases} \tau_n = n.\Delta\tau \\ U_n^+ = U^+(\tau_n) \\ \tau_0 = 0 \end{cases} \tag{4.14}$$

$\dot{U}^+$ et U^+ se discrétisent de la façon suivante :

$$\begin{cases} \dot{U}^+ = \frac{U_{n+1}^+ - U_n^+}{\Delta\tau} \\ U^+ = U_n^+ \end{cases} \tag{4.15}$$

Injecté dans l'équation (4.7) au temps τ_n, ce résultat donne :

$$M_C \frac{U_{n+1}^+ - U_n^+}{\Delta\tau} + (K_C + M_{Cf})U_n^+ = 0$$

Finalement, on obtient l'équation des espèces discrétisée pour la variable U^+ :

$$[\frac{M_C}{\Delta\tau}]U_{n+1}^+ = [\frac{M_C}{\Delta\tau} - K_C - M_{Cf}]U_n^+ \tag{4.16}$$

4.2.3 Stabilité des schémas numériques

Les deux schémas numériques pour la thermique et les espèces sont de type explicite. Il sera donc nécessaire de choisir un pas de temps pour la thermique et un pas de temps pour les espèces afin que le critère de stabilité soit vérifié pour les deux schémas. Mais, étant donné que le problème des espèces est couplé à la thermique et la résolution s'effectue au même temps, un seul pas de temps sera adopté pour les deux. Ce pas de temps sera le plus petit des deux vérifiant la stabilité.

Étant donné la géométrie axisymétrique du barreau, le type de maillage est alors bidimensionnel. Dans ce cas, la taille de la maille est Δr_M^+ suivant $\vec{r}$ et Δz_M^+ suivant $\vec{z}$. Deux cas sont envisageables pour la détermination du pas de temps. Si $\Delta r_M^+ \leq \Delta z_M^+$ alors le pas de temps pour la thermique doit vérifier le critère de stabilité :

$$\frac{\Delta\tau_{Ther}}{\beta(\Delta r_M^+)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{4.17}$$

Avec $\beta \geq 1$, facteur de proportionnalité entre H^+ et T^+ défini tel que : $H^+ = \beta T^+$ dans tout le domaine. Le cas le plus défavorable est $\beta = 1$, lorsque il s'agit du domaine solide

Dans le cas contraire, ce critère de stabilité s'écrit comme suit :

$$\frac{\Delta\tau_{Ther}}{\beta(\Delta z_M^+)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{4.18}$$

Ce critère reste alors vérifié dans le mélange et dans le liquide.

De la même manière, le pas de temps du problème des espèces se calcule à partir de l'équation des espèces adimensionnelle et vérifiant les deux critères de stabilité suivants :

Si $\Delta r_M^+ \leq \Delta z_M^+$ le pas de temps est déterminé à partir de l'expression :

$$\frac{\Delta \tau_{espe}}{\gamma.(\Delta r_M^+)^2} \leq \frac{1}{2}$$

Avec : $\frac{Lews}{\tilde{d}} \leq \gamma \leq Lews$

Le cas le plus défavorable correspond à $\gamma = \frac{Lews}{\tilde{d}}$, lorsque il s'agit du domaine liquide

Dans le cas où $\Delta z_M^+ \leq \Delta r_M^+$, ce critère de stabilité s'écrit :

$$\frac{\Delta \tau_{espe}}{\gamma(\Delta z_M^+)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{4.19}$$

Ce critère reste aussi vérifié dans le mélange et dans le solide.
On constate alors que le pas le plus petit est celui de la thermique. En effet, le nombre de Lewis dans le solide (Lews) est de l'ordre de 10^8 pour les métaux, et plus important encore, pour les semi-conducteurs (de l'ordre de 10^{12}). Et de ce fait, on aura dans tous les cas, γ très supérieur à l'unité.
Les deux critères de stabilité pour la thermique et les espèces font apparaître deux pas de temps différents avec tout de même un pas de temps plus fin pour la thermique. Le choix d'un pas de temps unique pour la résolution de deux problèmes conduit à adopter celui vérifié par le critère du problème thermique et qui lui aussi vérifiera le critère sur les espèces. Le pas de temps adopté pour la résolution complète, si on suppose que $\Delta z_M^+ = \Delta r_M^+$, est tel que :

$$\frac{\Delta \tau}{(\Delta r_M^+)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{4.20}$$

4.2.4 Résolution numérique

La résolution de ces équations discrétisées s'effectue comme suit :

• Équation de l'énergie:
- détermination des grandeurs énergétique et thermique ; calcul des champs d'enthalpies massiques par la méthode classique de résolution de l'équation de la chaleur en formulation enthalpique avec un schéma explicite.
- Déduire les champs de températures à partir des champs d'enthalpies massiques moyennant, des tests sur ces dernières aux points considérés du solidus et du liquidus dans le cas général. Il est rappelé que dans le cadre de notre étude (hypothèses de faibles concentrations de l'ordre de ppm), ces points correspondent au début et à la fin de fusion.
- Déduire la fraction de la phase liquide locale f_l à partir de l'enthalpie massique H^+.

• Équation de concentration:
- La fraction de la phase liquide locale f_l déduite à partir du calcul thermique est introduite dans l'équation de diffusion discrétisée
- détermination des champs de concentrations.

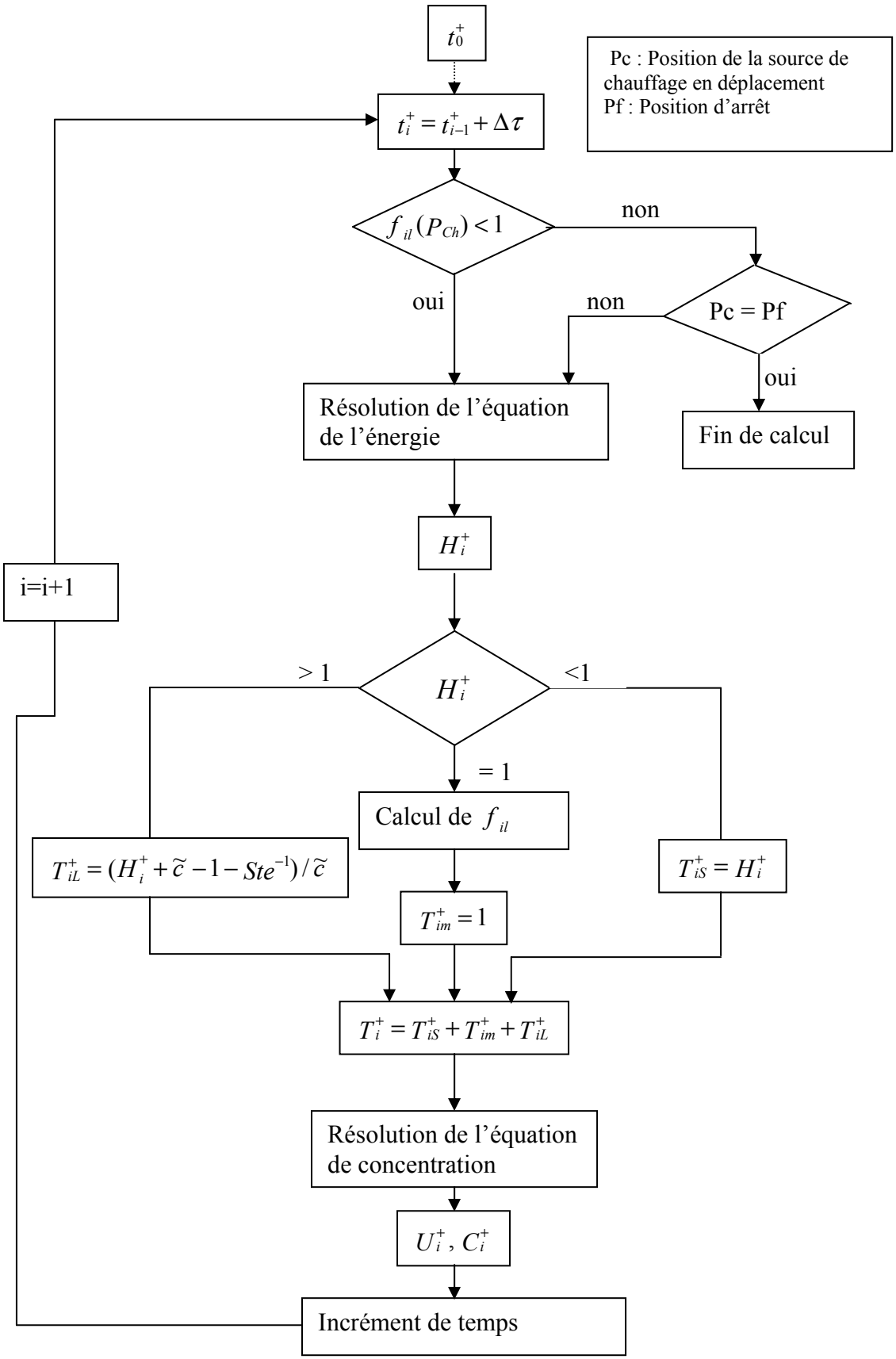
Les calculs pour la thermique et pour les espèces sont effectués simultanément à chaque incrément de temps. La thermique se résout indépendamment du problème d'espèces, en revanche le calcul des espèces est couplé au calcul thermique via la fraction de la phase liquide locale f_l. Un seul pas de temps est adopté pour les deux problèmes. Étant donné que

les schémas de résolution sont explicites un critère de stabilité sera respecté. Dans tout le calcul, un seul pas de temps est adopté.

Connaissant la température T_{i-1}^{+}, l'enthalpie H_{i-1}^{+} et « l'activité chimique » U_{i-1}^{+} à l'instant t_{i-1}^{+}, nous calculons les solutions à l'instant d'après t_i^{+} de la manière suivante :

1. Lecture des paramètres et des données adimensionnels liés aux problèmes thermique et d'espèces à la température T_{i-1}^{+} et à la concentration C_{i-1}^{+}.
2. On définit un point P_{Ch} sur l'axe du barreau tel que une distance de ($\Delta z^{+}/4$) séparant ce point et le point P_C, situé, lui aussi sur l'axe du barreau, et qui correspond en fait à la projection du point de milieu (centre de la tranche : $\Delta z^{+}/2$) où la source de chauffage est appliquée. Le but de ce choix est d'avoir une largeur de zone fondue sur l'axe du barreau qui s'étale sur la moitié de celle prise sur la paroi afin de garantir par la suite le drainage des impuretés au niveau de l'axe.
   Si la fraction de la phase liquide locale f_l au point P_{Ch} est égale à l'unité, alors toute la tranche du barreau est fondue et on procède au déplacement des sources de chauffage et de refroidissement, sinon nous passons directement à l'étape suivante.
3. Résolution de l'équation de l'énergie
   - Pour en déduire l'incrément de l'enthalpie ΔH_i^{+} et l'enthalpie $H_i^{+} = H_{i-1}^{+} + \Delta H_i^{+}$.
   - Pour en déduire la température T_i^{+} en relation avec H_i^{+} selon qu'on est en solide, mélange ou liquide. Des tests sur les enthalpies sont effectués pour l'identification des zones (voir organigramme figure 4.1).
   - Calculer la fraction de la phase liquide locale f_l et en particulier celle au point P_{Ch}
4. Résolution de l'équation de concentration
   - Pour en déduire l'incrément de « l'activité chimique » ΔU_i^{+} et l'activité chimique $U_i^{+} = U_{i-1}^{+} + \Delta U_i^{+}$.
   - Pour calculer la concentration C_i^{+} en relation avec l'activité chimique U_i^{+}
5. Un premier test d'arrêt en déplacement des sources est défini. Lorsque la position atteinte par la source de chauffage arrive au point considéré d'arrêt « Parr » on arrête le calcul.
6. Un second test d'arrêt, lorsque la fraction fondue f_l au point P_{Ch} est différente de l'unité

L'organigramme qui suit explique les différentes étapes du problème couplé.



Les indices S, m, L désignent respectivement : solide, mélange, liquide

Figure 4.1 : Organigramme de résolution du calcul thermique et espèces pour un seul passage des sources

Chapitre 5

Étude d'une tranche avec source immobile

5.1 Introduction

En fait, le processus de purification se fait en deux temps : Un temps de préchauffage avec source fixe jusqu'à la fusion au cœur du barreau, puis le processus de purification à proprement dit avec une source mobile, se déplaçant avec une vitesse uniforme et constante. Dans cette simulation nous essayons d'identifier à partir du modèle proposé les deux paramètres, nombre de Lewis effectif Le_{eff} et rapport de coefficients de diffusion massiques liquide/solide effectif $\tilde{d}_{eff}$, qui peuvent représenter au mieux le processus réel de purification par zone refining. Pour cela, nous allons fixer les paramètres thermiques en choisissant par exemple le cas du matériau silicium contenant une très faible concentration uniforme $C_i = C_0$ d'impuretés en germanium. Cela revient à considérer un alliage binaire Silicium-Germanium à très faibles concentrations dont le coefficient de partage à l'équilibre est $k_0 = 0.33$ [MORV, 84]. Dans la première phase de préchauffage d'une tranche fixe, le coefficient de partage effectif k qui régit le drainage des impuretés en zone fondue peut être considéré égale au coefficient de partage à l'équilibre k_0. En effet plusieurs expressions du coefficient k se trouvent dans la littérature [BURT, 53], [WANG, 97], font intervenir la vitesse de déplacement de zone fondue, l'épaisseur de la couche de diffusion massique, le coefficient de diffusion massique, le coefficient de partage à l'équilibre k_0, la viscosité du liquide, les conditions de refroidissement, la vitesse de l'interface et d'autres facteurs. Pour les alliages à base de silicium [MORV, 84] k et k_0 ont des valeurs proches, avec k légèrement supérieur à k_0 sauf par exemple pour des alliages Silicium-Arsenic (SiAs) ou Silicium-Antimoine (SiSb) où leurs coefficients de partage effectifs dans le cas de la fusion au plasma réactif haute fréquence baissent d'un facteur de l'ordre de 100 à 1000 par rapport à k_0. Nous allons donc supposer par hypothèse que les deux coefficients k et k_0 sont égaux et adopter cette hypothèse pour toute l'étude.

5.2 Simulation d'un cas avec un nombre de Lewis (Lews) et un rapport de coefficient de diffusion $\tilde{d}$ réels : cas de l'alliage SiGe

L'objet de cette étude est dans un premier temps, analyser le champ thermique et le champ de concentration obtenus par les deux modèles proposés (thermique et espèces) en simulant un cas réel d'un matériau à purifier avec des données réelles prises dans la littérature et dans un deuxième temps, conclure sur la validité et la représentativité du modèle de diffusion pour ce processus de purification bien particulier. Les deux paramètres essentiels qui gouvernent l'équation de diffusion sont : le nombre de Lewis dans le solide (Lews) et le rapport de coefficients de diffusion liquide/solide $\tilde{d}$. À priori ces deux paramètres ne sont pas propres pour ce processus de purification et doivent être corrigés pour que l'approche proposée soit valide. Nous allons donc prendre le cas du matériau silisicium-germanium, comme cas d'application et regarder le comportement numérique de cette approche vis-à-vis de ce processus de purification réel tel qu'il est décrit par la théorie de zone melting classique [PFAN, 58].

5.2.1 Coefficient de diffusion des impuretés dans le silicium liquide

Le coefficient de diffusion des impuretés dans le métal liquide permet de prévoir les transferts de matière dans cette phase. Il intervient dans l'équation des espèces et dans le rapport $\tilde{d}$. La variation du coefficient de diffusion des impuretés dans le silicium liquide au-delà du point de fusion a été calculée à l'aide de l'expression [MORV, 84] :

$$D_l = \frac{7{,}4.10^{-8}.(M)^{0,5}.T}{\mu.V_L^{0,6}}$$

D_l : Coefficient de diffusion de l'impureté dans le silicium en (cm²/s)
M : Masse molaire du métal en (g/mole)
T : Température en (Kelvin)
T_{eb} : Température d'ébullition en (Kelvin)
μ : Viscosité du métal liquide en (centipoise)
V_L : Volume molaire de l'impureté à son point d'ébullition normale en (cm^3/mole)
Avec $V_L = M\,V_m$
V_m : Volume massique du germanium déterminée au point d'ébullition
V_m = 0,1821+17,1.10^{-6}(T_{eb} - T_f) [TDIN, (M65-7)]
Dans le cas de notre matériau SiGe, D_l se calcule à partir des données prises dans la littérature tableau 5.1 en prenant une température de liquide un peu plus que la température de fusion du silicium pur soit T= 1775 K

M	T	μ [TDIN (M66-6)]	T_f	T_{eb}	D_l (cm²/s)	D_l (m²/s)
72.59	1775	6.88	1210.4	3107	3.132610^{-5}	3.132610^{-9}

Tableau 5.1 : Données pour le calcul du coefficient de diffusion du germanium dans le silicium liquide

5.2.2 Nombre de Lewis dans la phase liquide

Le choix d'une température pour déterminer le coefficient de diffusion dans la phase liquide et les hypothèses avancées pour le coefficient de diffusivité thermique a_l supposé constant nous permet de définir un nombre de Lewis moyen tel que :

$$Lewl = \frac{a_l}{D_l} = \frac{2{,}91.10^{-5}}{3{,}1326.10^{-9}} = 9{,}289.10^3$$

5.2.3 Coefficient de diffusion des impuretés dans le silicium solide

Le coefficient de diffusion des impuretés dans le métal solide permet de prévoir les transferts de matière dans la phase solide. Il intervient dans l'équation des espèces et dans le rapport $\tilde{d}$. On peut utiliser la relation d'Arrhenius pour calculer ce coefficient. La relation d'Arrhenius pour différentes températures s'écrit :

$$D_s = D_0 \exp(\frac{-Q}{K_B T})$$

Q : Énergie d'activation en (J)
T : Température en Kelvin

D_0 : Facteur de fréquence en (cm²/s)
K_B : Constante de Boltzmann = 1,3805.10^{-23} J/ K
Dans le cas de diffusion du germanium dans le silicium à l'état solide et dans la gamme de température [1030°C-1302°C], la référence [LIDE, 92] fournit les données suivantes :
Q= 4,97 ev = 7,952.10^{-19} J et D_0 =2,5.10^3 cm²/s.
Nous avons supposé par hypothèse que les coefficients de diffusion dans les phases solide et liquide sont constants. De ce fait un choix de température pour le calcul de ces coefficients s'impose. Dans la phase solide et dans la gamme de température citée si dessus on choisit donc une température de 1302 °C. Ce choix permet de favoriser un peu la diffusion dans le solide même si sa valeur reste toujours trop faible.
Le calcul avec ces données donne un coefficient de diffusion dans le solide :
D_s =3,2698.10^{-13} cm²/s ou encore D_s =3,2698.10^{-17} m²/s

5.2.4 Nombre de Lewis dans la phase solide

De même que dans la phase liquide, le choix d'une température pour déterminer le coefficient de diffusion dans la phase solide et les hypothèses avancées pour le coefficient de diffusivité thermique a_s supposé constant nous permet de définir un nombre de Lewis moyen tel que : $Lews = \dfrac{a_s}{D_s} = \dfrac{5{,}04.10^{-5}}{3{,}2698.10^{-17}} = 1{,}5413.10^{12}$

5.2.5 Données du problème

Nous avons adopté un maillage rectangulaire régulier : (13x97) nœuds. Les pas d'espaces d'une maille suivant $\vec{r}$ et $\vec{z}$ ont été choisis égaux : $\Delta r_M^+ = \Delta z_M^+ = 8.33 10^{-2}$; un pas de temps unique pour toute la résolution : $\Delta\tau = 3.10^{-4}$ correspondant à un pas de temps dimensionnel $\Delta t = 5.9 10^{-4} s$. La longueur de référence L est prise égale à 0.01m. Le nombre de Lewis dans le solide ($Lews$=1,54.10^{12}) et le rapport de coefficients de diffusion liquide/solide ($\tilde{d}$ = 9,58.10^7).

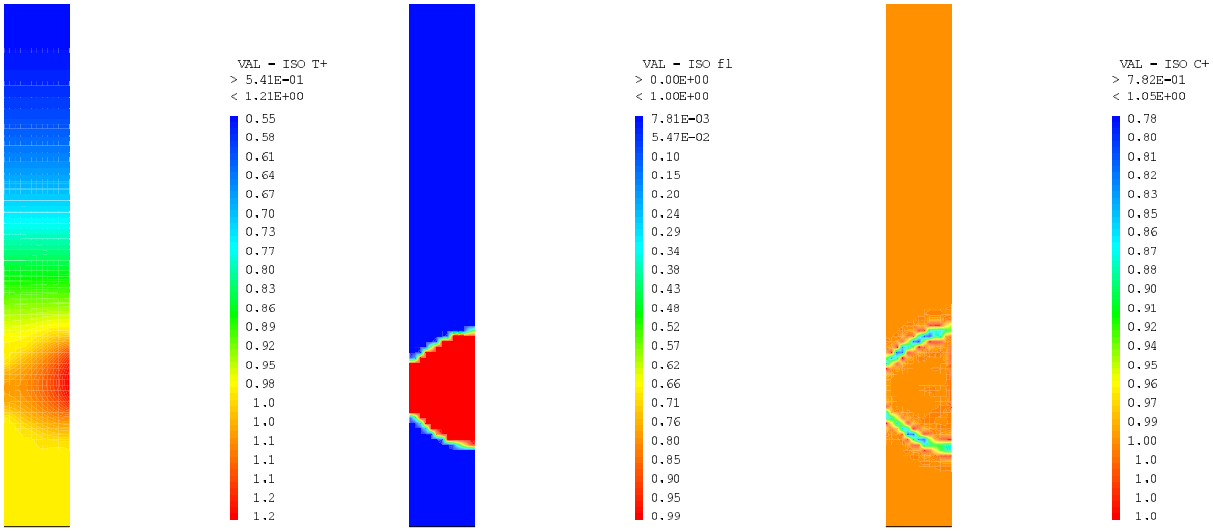
R^+	L_b^+	Δz^+	q_c^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	a_s	a_l	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
1	8	1	0.3	0	1/k	1	$5.04 10^{-5}$	$2.91 10^{-5}$	0.8	0.5964	1.276

Tableau 5.2 : Données pour la simulation d'un cas avec des données réelles

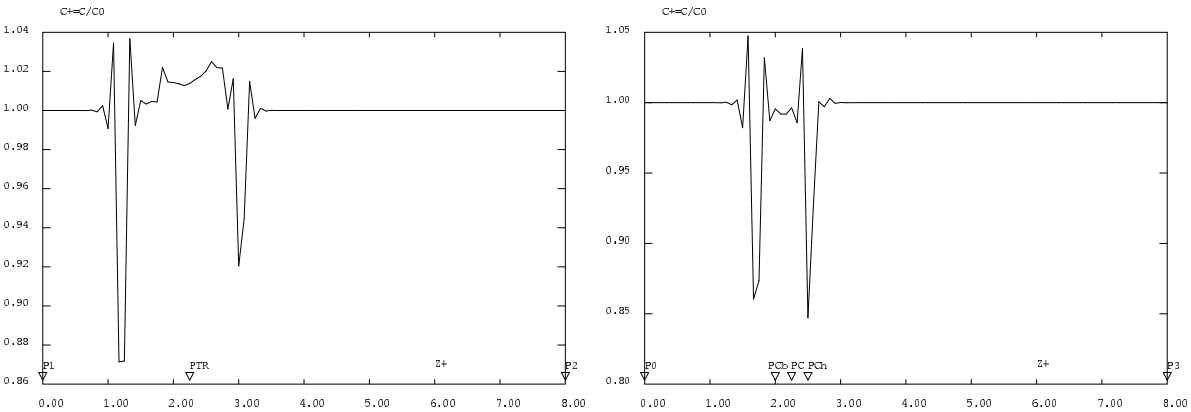
Nous allons analyser l'évolution des grandeurs thermiques et massiques dans une tranche d'un barreau cylindrique lorsque la source de chaleur est immobile. On part dans ce cas d'une température dimensionnelle initiale T_i égale à 20 °C. La condition d'arrêt en chauffage est telle que la fraction fondue de la phase liquide f_l soit égale à 1 au point P_{Ch}, défini sur l'axe du barreau. Ce choix permet d'obtenir une largeur de zone fondue suffisante au niveau de l'axe du barreau afin que le drainage des impuretés s'effectue correctement sur toute la section diamétrale du barreau, comme le montre la figure 5.1.b

5.2.6 Résultats de la simulation

La figure 5.1 montre les isovaleurs de température, les isovaleurs de fraction fondue, les isovaleurs de concentration ainsi que les profils de concentration le long de la paroi et de l'axe du barreau pour la première phase de chauffage : source immobile.



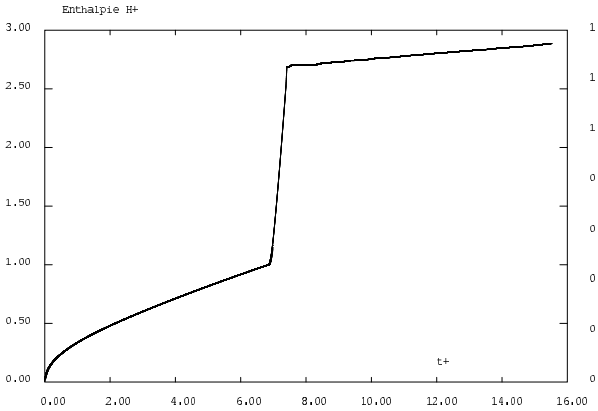
a) Isovaleurs de température T^+ *b) Isovaleurs de fraction fondue* f_l *c) Isovaleurs de concentration* C^+



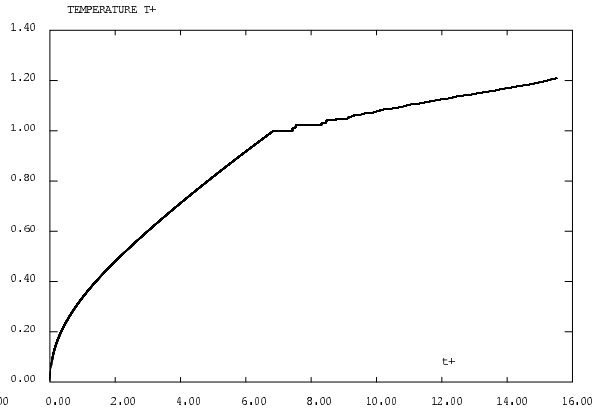
d) Évolution de la concentration C^+ *le long de la paroi du barreau*

e) Évolution de la concentration C^+ *le long de l'axe du barreau*

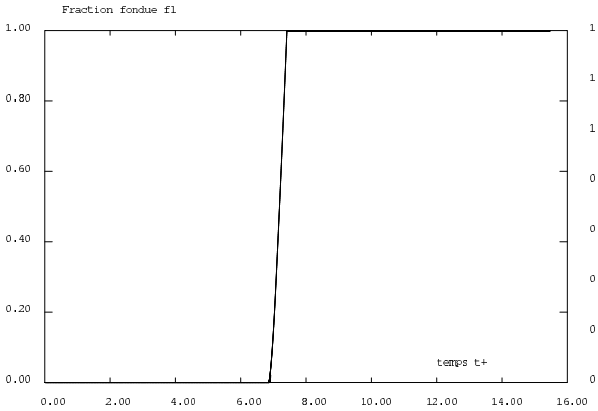
Figure 5.1 : Étude d'une tranche fixe avec condition initiale en température $T^+ = 0$



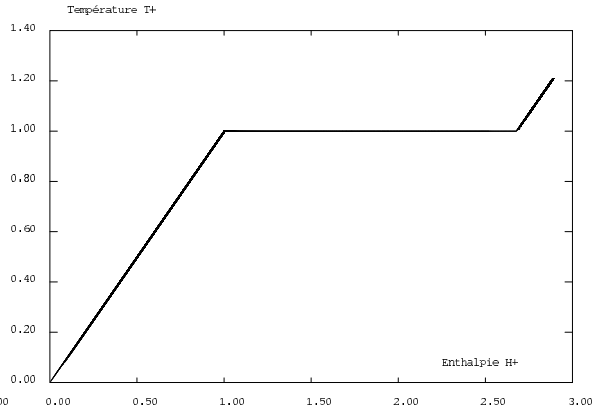
a) Évolution de l'enthalpie H^+ en fonction du temps adimensionnel t^+



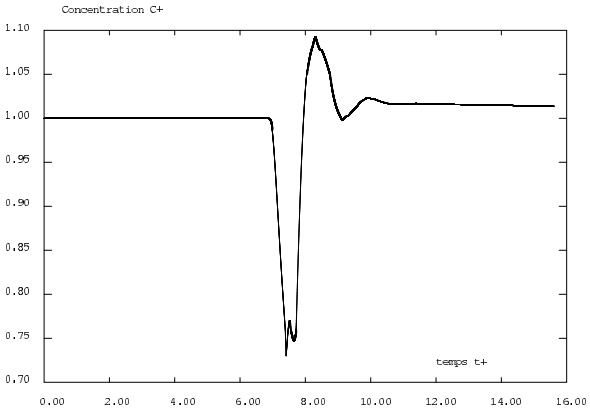
b) Évolution de la température T^+ en fonction du temps adimensionnel t^+



c) Évolution de la fraction fondue f_l en fonction du temps adimensionnel t^+

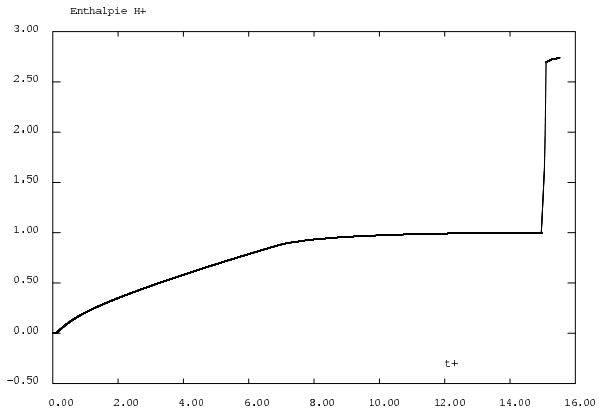


d) Évolution de la température T^+ en fonction de l'enthalpie adimensionnelle H^+

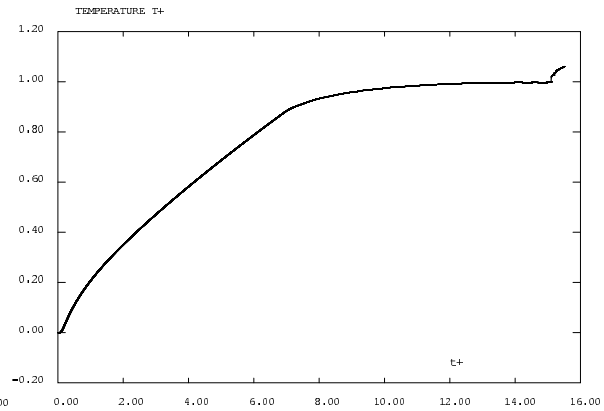


e) Évolution de la concentration C^+ en fonction du temps adimensionnel t^+

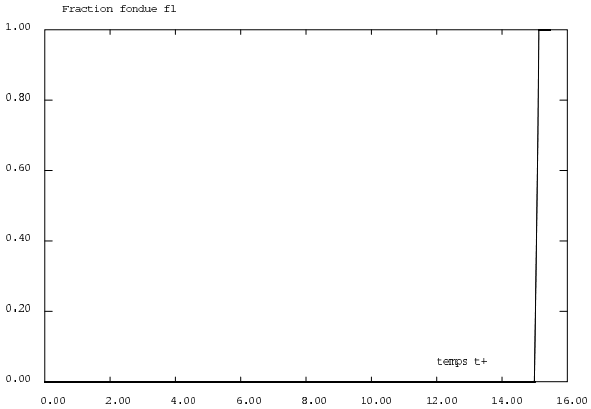
Figure 5.2 : Évolution des grandeurs thermiques et massiques en fonction du temps adimensionnel t^+ en un point PTR défini sur la paroi du barreau.



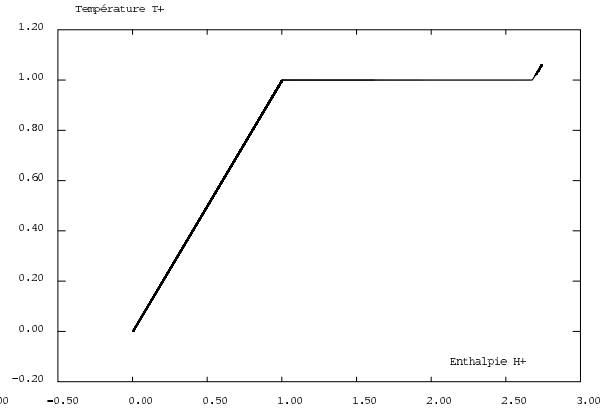
a) Évolution de l'enthalpie H^+ en fonction du temps adimensionnel t^+



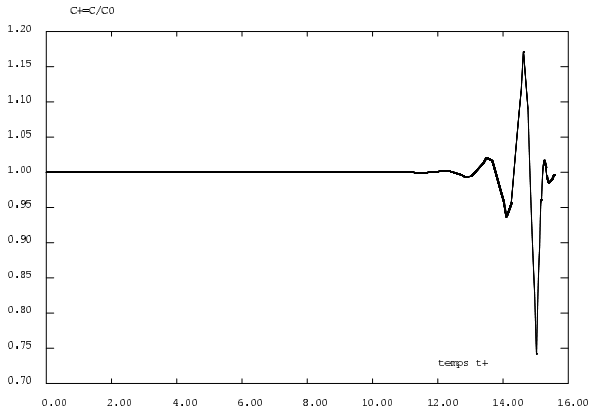
b) Évolution de la température T^+ en fonction du temps adimensionnel t^+



c) Évolution de la fraction fondue f_l en fonction du temps adimensionnel t^+



d) Évolution de la température T^+ en fonction de l'enthalpie adimensionnelle H^+



e) Évolution de la concentration C^+ en fonction du temps adimensionnel t^+

Figure 5.3 : Évolution des grandeurs thermiques et massiques en fonction du temps adimensionnel t^+ en un point PC défini sur l'axe du barreau.

La figure 5.2 (a, b, c) montre l'évolution des grandeurs thermiques en un point (PTR) de la paroi du barreau cylindrique en fonction du temps adimensionnel t^+.
La figure 5.2.d montre l'évolution de la température T^+ en fonction de l'enthalpie massique adimensionnelle en un point (PTR) de la paroi du barreau cylindrique.
La figure 5.2 e montre l'évolution de concentration C^+ en un point (PTR) de la paroi du barreau cylindrique en fonction du temps adimensionnel t^+.
De la même manière, la figure 5.3 (a, b, c, d, e) montre bien l'évolution de grandeurs thermiques et espèces en un point (PC) de l'axe du barreau cylindrique.

5.2.7 Conclusion

Dans ce cas de simulation les résultats obtenus montrent bien que la thermique avec toutefois l'hypothèse avancée de faibles concentrations est correctement représentée. Elle est résolue de façon découplée du fait qu'elle est supposée ne pas être perturbée par la présence des espèces. Par contre la résolution du problème de concentration qui est couplée à la thermique via la fraction de la phase liquide locale f_l, s'avère ne pas être satisfaisante et ne permet pas de représenter correctement le processus de purification à proprement dit. Cela est dû essentiellement à la manipulation de l'équation de diffusion avec un nombre de Lewis très élevé. Ce nombre qui exprime le retard de la diffusion des espèces par rapport à la diffusion thermique n'est pas tout à fait propre à ce processus de purification par zone fondue.
On constate que les profils de concentration le long de la paroi et de l'axe du cylindre figure 5.1.d et figure 5.1.e ne reflètent pas la réalité physique du processus de purification par zone melting tel que nous l'attendions. En effet, le saut de concentration à l'interface solide/liquide $k = C_{SI}/C_{LI}$ n'était pas reproduit et la concentration dans la zone fondue n'a pas trop bougé.
Des fortes oscillations numériques apparaissent au niveau des interfaces liquide solide. Elles sont forcement dues aux très grandes valeurs du nombre de Lewis et du rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$ qui figurent dans l'équation de diffusion massique. Or les outils numériques classiques ne s'apprêtent pas très bien pour des valeurs du nombre de Lewis très grandes. De plus, le couplage des espèces avec la thermique et la particularité du processus rendent les choses plus complexes et laisse penser tout en gardant les méthodes numériques classiques d'adopter des valeurs un peu artificielles pour le nombre de Lewis et $\tilde{d}$ lorsque ces derniers sont élevés.

5.3 Effet du nombre de Lewis et du rapport de diffusion $\tilde{d}$

L'objectif de cette étude est d'analyser le comportement de notre modèle de diffusion vis-à-vis de la méthode numérique employée et d'en tirer meilleur parti afin qu'il puisse représenter au mieux le processus de purification étudié.

Pour que le processus de purification soit représenté par l'approche proposée et atteindre notre objectif qui consiste à comprendre le comportement de ce processus, nous allons procéder à déterminer des paramètres utiles à affecter au modèle et qui correspondent en fait à un matériau bien donné et pas forcement au cas du SiGe. Ces derniers se résument aux nombres de Lewis dans les phases solide et liquide ($Lews$ et $Lewl$) et au rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$. Nous avons adopté la stratégie qui consiste à faire varier ces paramètres sur des gammes allant des plus faibles valeurs aux valeurs très importantes. Ceci permet de cerner au mieux les paramètres représentatifs de ce procédé. Le choix de ces gammes tient naturellement compte de la particularité du procédé. En effet la condition imposée par la thermique et le couplage thermique-espèces laisse penser que le temps caractéristique pour la diffusion et le drainage des espèces est presque le même que celui pour la thermique.

Les valeurs du nombre de Lewis ($Lews$) et du coefficient de diffusion D_s, dans la phase solide, calculées pour une température donnée, dans le cas de l'alliage Silicium-germanium, montrent bien la difficulté de manipuler l'équation de diffusion des espèces avec des coefficients tels que : $Lews$ et $\tilde{d}$ très élevés. Cela tient compte bien entendu de la spécificité du procédé étudié. L'étude du cas réel a montré que la concentration n'a pas trop bougé lorsque la thermique est arrêtée. Ce qui est tout a fait prévisible car la diffusion des espèces n'a pas le temps nécessaire pour se réaliser, si on est limité par le transfert thermique.

On choisit pour la variation du nombre de Lewis ($Lews$) la plage [10 à 10^8] et pour la variation de $\tilde{d}$ la plage [10 à 10^4]. Il est inutile d'aller au-delà de10^8 pour $Lews$ et au-delà de 10^4 pour $\tilde{d}$. Cela n'a pas d'influence sur la nouvelle répartition des espèces.

5.3.1 Données pour la simulation

Dans cette étude et pour la suite de toute cette partie nous prenons une température initiale T_i proche de la température de fusion ce qui se fait généralement dans la pratique. Cela nous permet aussi de gagner sur le temps de calcul numérique qui suivra, vu le nombre important de cas à étudier. Nous allons donc prendre T_i inférieur de 1°C par rapport à la température de fusion T_{fr}, ce qui correspond à une température adimensionnelle $T_i^+ = 0.99929$. Enfin et étant donné qu'on commence le chauffage à partir d'une température assez proche de la température de fusion on pourra considérer que les diffusivités dans le liquide et dans le solide sont égales et que le rapport des chaleurs spécifiques $\tilde{c}$ est égale à 1.

R^+	L_b^+	Δz^+	q_c^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	a_s	a_l	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
1	8	1	0.3	0.99929	1/k	1	2.9110^{-5}	2.9110^{-5}	1	0.5964	1

Tableau 5.3 : Données pour la simulation de l'effet de Lews et de $\tilde{d}$

Nous pouvons aussi raisonner sur le nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$) et $\tilde{d}$ car d'après les données du tableau (5.3), le terme $\frac{\tilde{d}}{Lews}$ de l'équation (3.44) est en fait $\frac{1}{Lewl}$

Les différents cas de combinaisons du nombre de Lewis ($Lewl$) et $\tilde{d}$ sont les suivants :

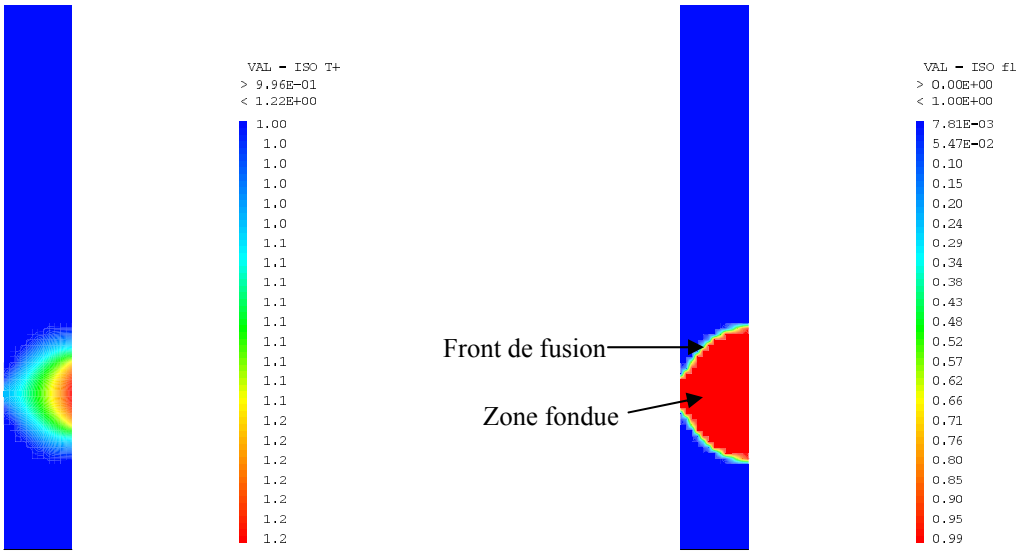
Cas n°	$\tilde{d}$	$Lews$	$Lewl$
1	10	10	1
2	20	20	1
3	50	50	1
4	10	20	2
5	20	40	2
6	50	100	2
7	10	100	10
8	20	200	10
9	50	500	10
10	10	10^4	10^3
11	20	2.10^4	10^3
12	50	5.10^4	10^3
13	10	10^5	10^4
14	10^4	10^8	10^4

Tableau 5.4 : Différents cas simulés

5.3.2 Résultats de la simulation

5.3.2.1 Isovaleurs de température et de fraction fondue

Les champs de température et de fraction fondue figure 5.4 (a, b) ne sont pas perturbés par les très faibles concentrations et par conséquent la partie thermique est identique pour les différents cas étudiés 1 à 14.
La figure 5.4 b montre la géométrie de la zone fondue et la forme du front de fusion associée.

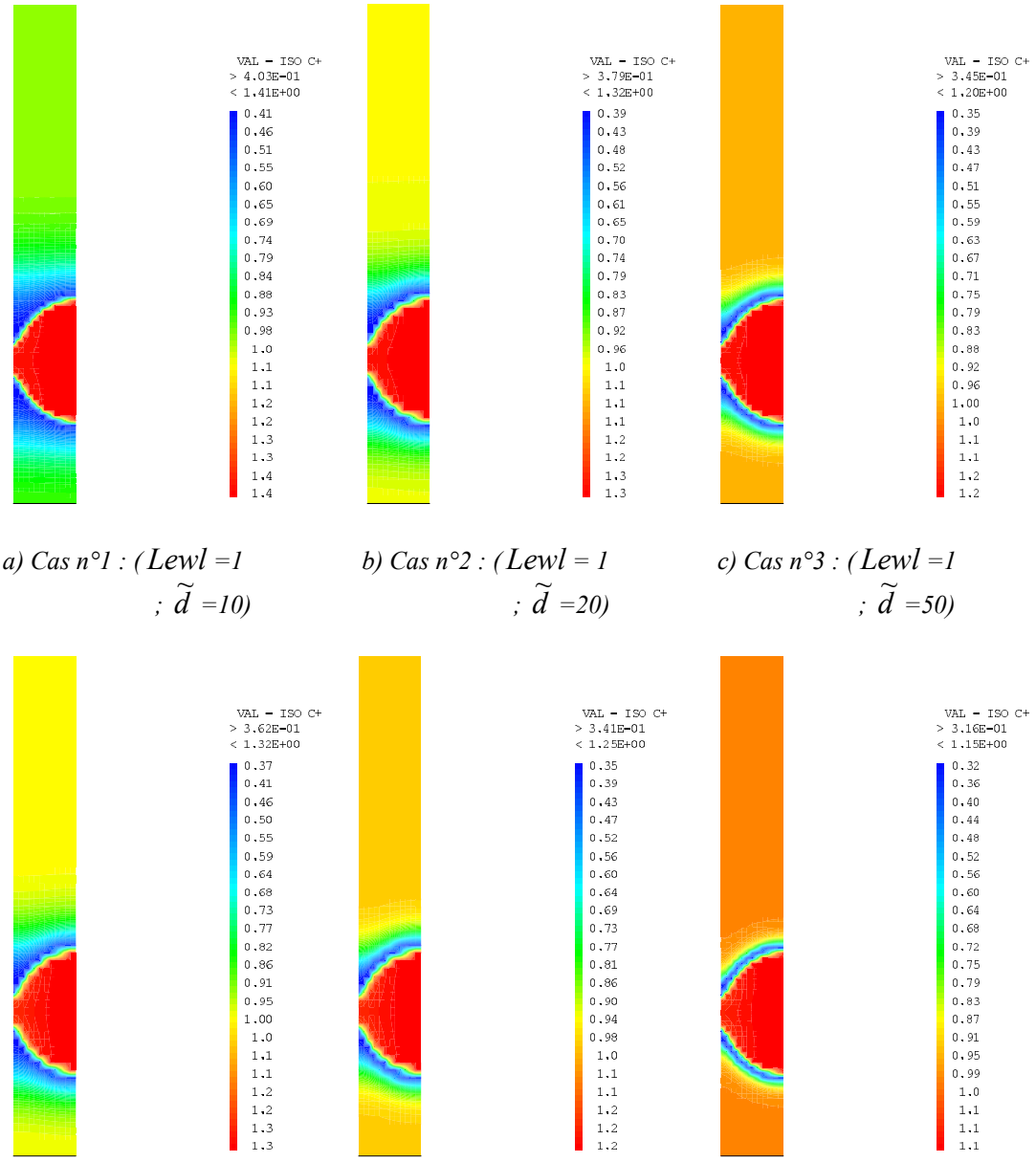


a) Isovaleurs de température T^+ *b) Isovaleurs de fraction fondue* f_l

Figure 5.4 : Fusion d'une tranche d'un barreau cylindrique avec source de chaleur immobile : a) Température b) Fraction fondue

5.3.2.2 Isovaleurs de concentration

Les figures 5.5 (a, b, c) montrent qu'en fixant un nombre de Lewis ($Lewl$) et en faisant varier le rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$, la diffusion des espèces se fait sur des couches de plus en plus réduites. Les isovaleurs de concentration C^+ montrent cette tendance.

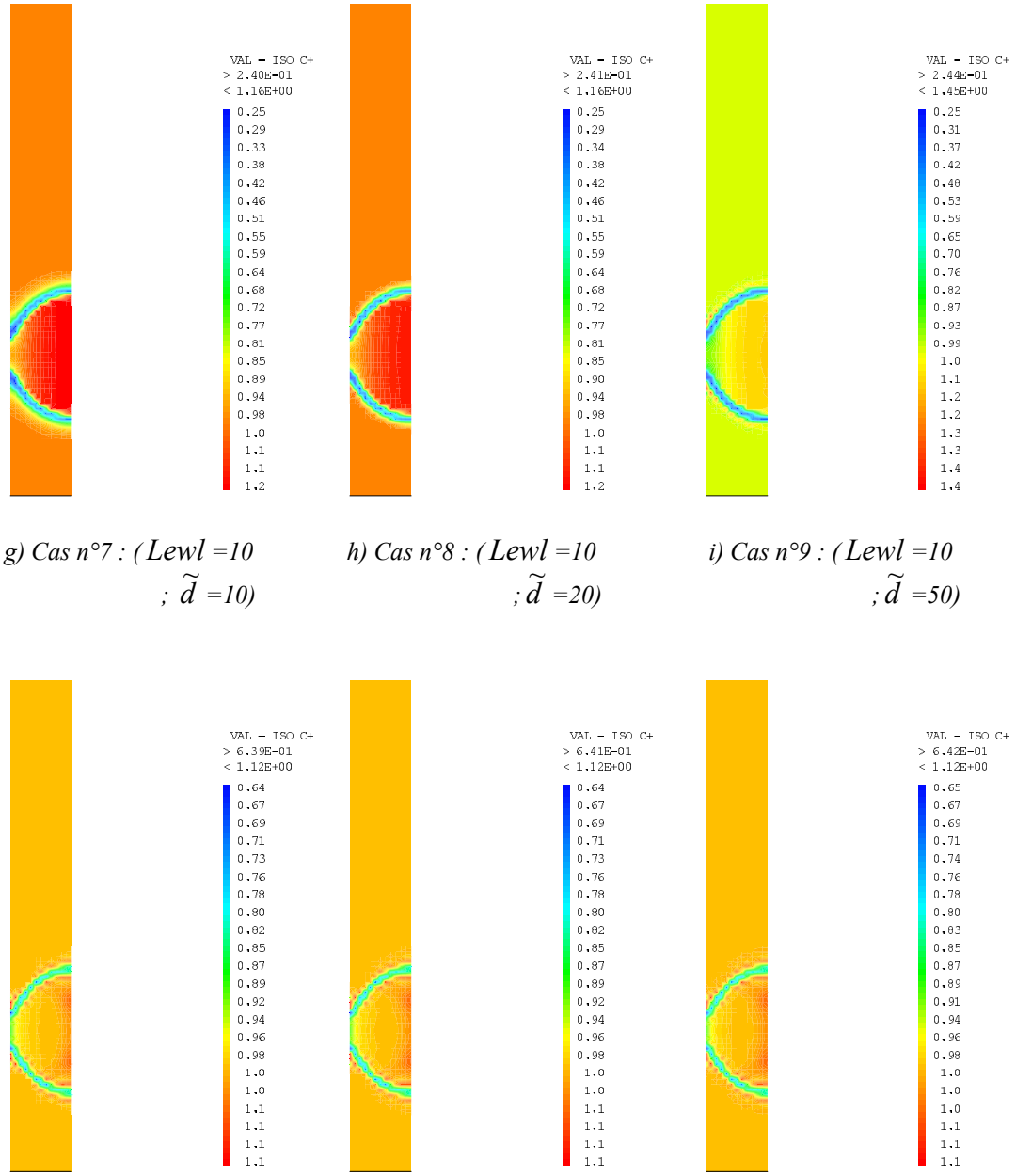


a) Cas n°1 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =10) *b) Cas n°2 : ($Lewl$ = 1 ; $\tilde{d}$ =20)* *c) Cas n°3 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =50)*

d) Cas n°4 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =10) *e) Cas n°5 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =20)* *f) Cas n°6 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =50)*

Figure 5.5: Isovaleurs de concentration C^+ : Effet du nombre de Lewis ($Lewl$) et de $\tilde{d}$; Cas de la fusion d'une tranche d'un barreau avec source immobile.

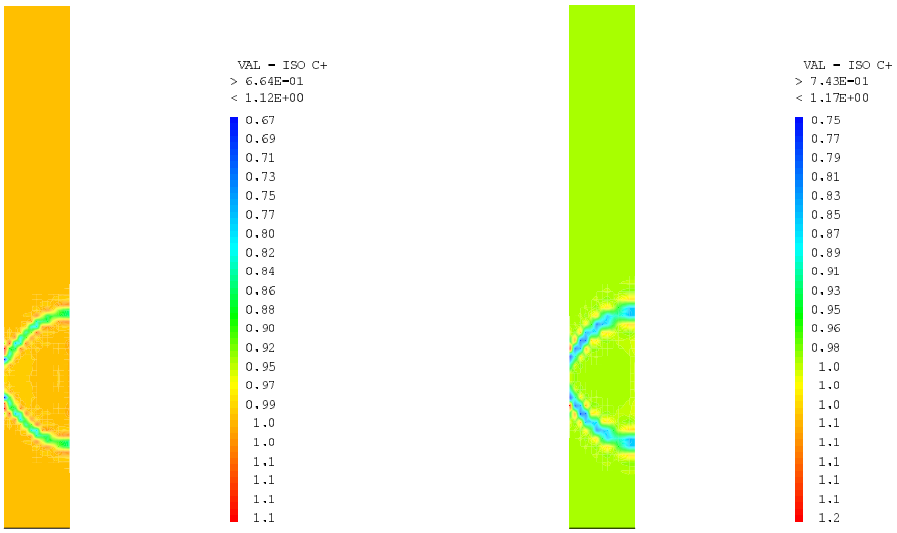
De la même façon si on fixe le rapport de coefficients de diffusion $\tilde{d}$ et en faisant varier le nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$) on constate que plus ce nombre et grand et plus la diffusion des espèces se fait sur des couches encore plus étroites.



g) Cas n°7 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =10) *h) Cas n°8 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =20)* *i) Cas n°9 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =50)*

j) Cas n°10 : ($Lewl$ =10^3 ; $\tilde{d}$ =10) *k) Cas n°11 : ($Lewl$ =10^3 ; $\tilde{d}$ =20)* *l) Cas n°12 : ($Lewl$ =10^3 ; $\tilde{d}$ =50)*

Figure 5.6: Isovaleurs de concentration C^+ : Effet du nombre de Lewis ($Lewl$) et de $\tilde{d}$; Cas de la fusion d'une tranche d'un barreau avec source immobile



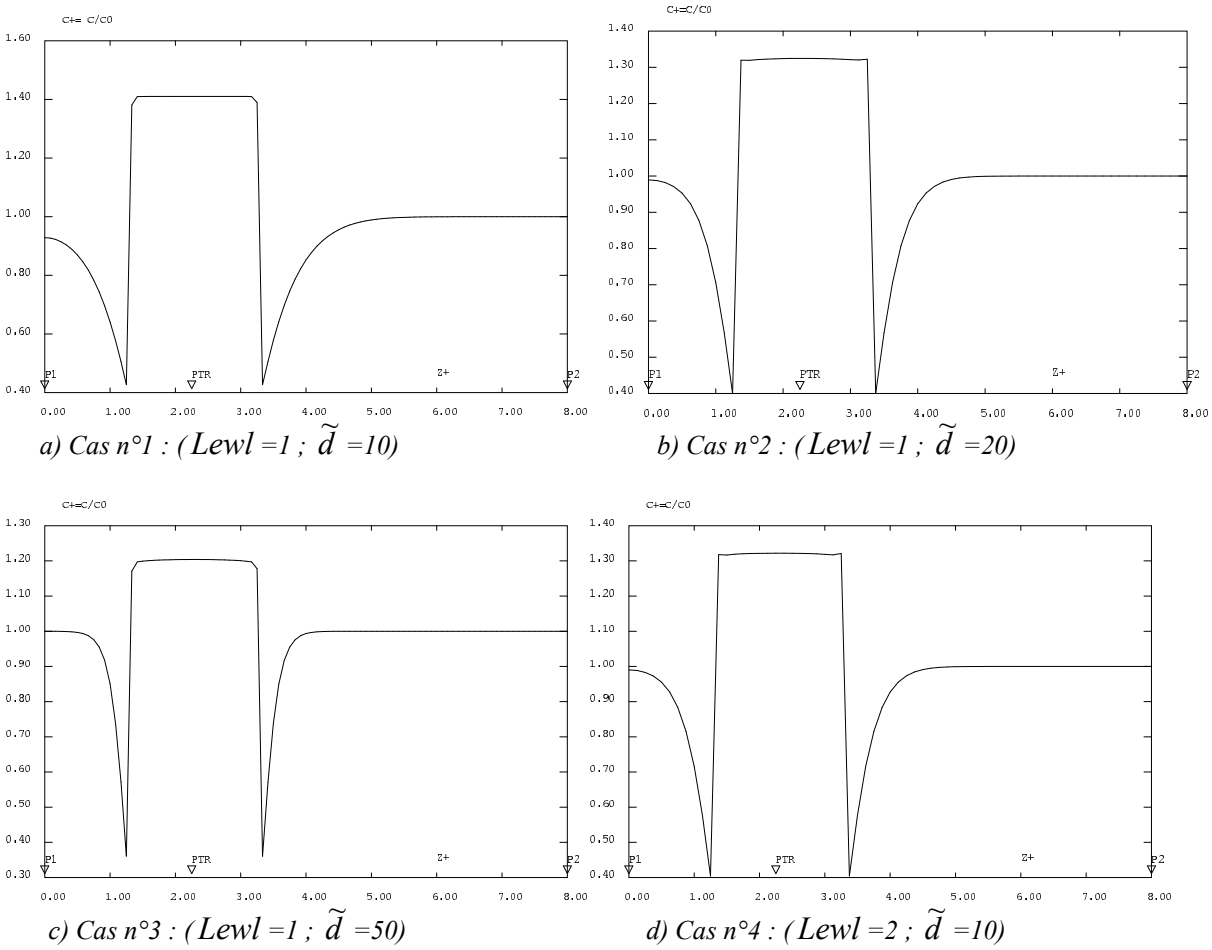
m) Cas n°13 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d} = 10$) *n) Cas n°14 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d} = 10^4$)*

Figure 5.7: Isovaleurs de concentration C^+ : Effet du nombre de Lewis ($Lewl$) et de $\tilde{d}$; Cas de la fusion d'une tranche d'un barreau avec source immobile

L'effet combiné du nombre de Lewis $Lewl$ et du rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$ sur le champ de concentration C^+ est montré sur les figures (5.5, 5.6 et 5.7). Le cas de la figure 5.7.m avec $Lewl = 10^4$ et $\tilde{d} = 10$ illustre bien l'influence de ces deux paramètres lorsque l'un est maximum et l'autre est minimum, bien entendu sur les gammes que nous avons déjà fixées.

5.3.2.3 Profils de concentration le long de la paroi du barreau

Le tracé du champ de concentration C^+ sur la paroi du barreau montre l'effet du nombre de Lewis $Lewl$ et du rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$ sur la distribution de l'impureté. La diffusion d'impuretés est meilleure pour un $Lewl = 1$ et $\tilde{d}$ est minimum dans la gamme choisie figure 5.8.a. Pour un $Lewl$ fixé la concentration dans le liquide diminue avec l'augmentation du rapport $\tilde{d}$.



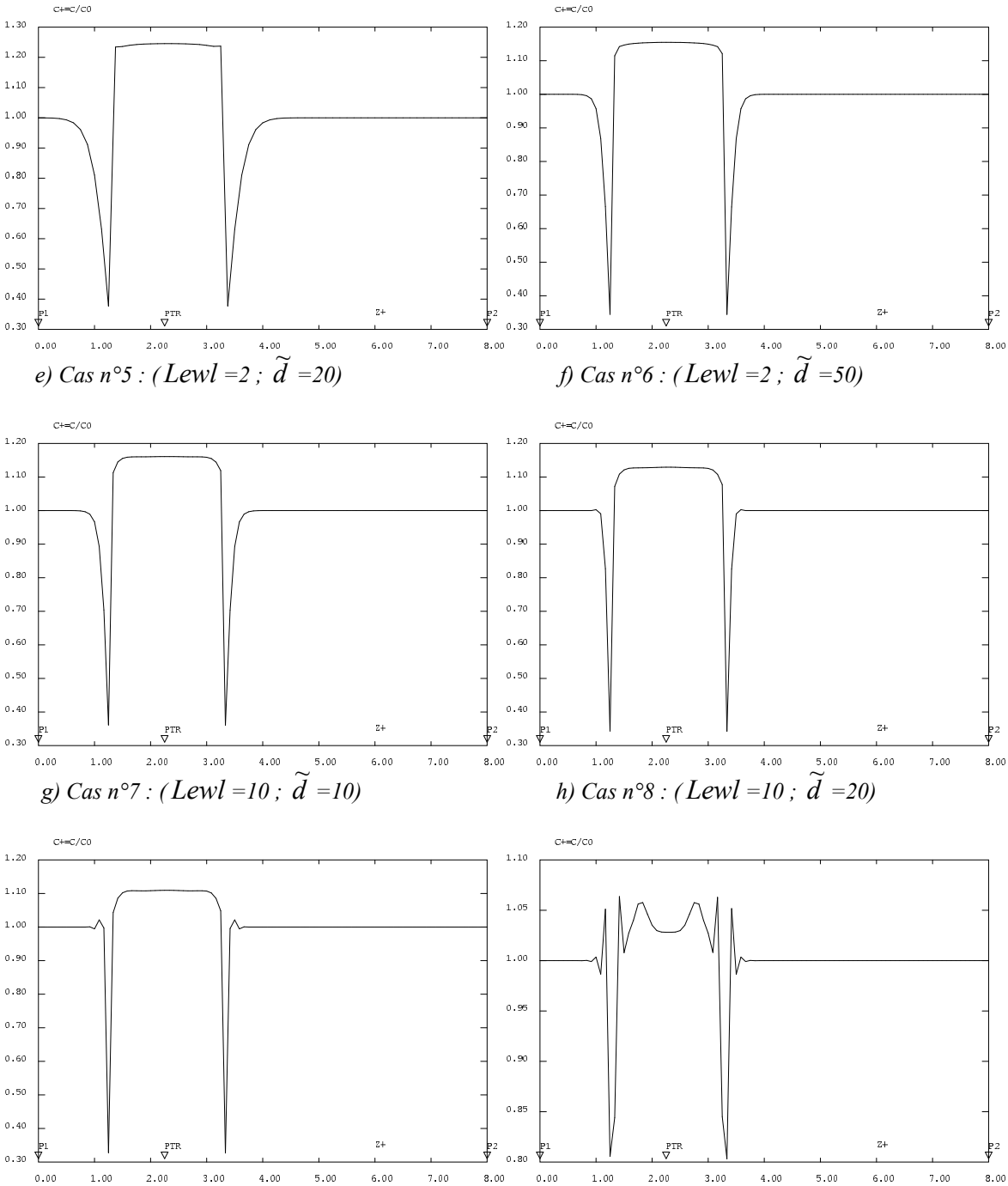
a) Cas n°1 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =10)

b) Cas n°2 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =20)

c) Cas n°3 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =50)

d) Cas n°4 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =10)

Figures 5.8 : Profils de concentration adimensionnelle C^+ le long de la paroi du barreau (tranche fixe)



e) Cas n°5 : (Lewl =2 ; $\tilde{d}$ =20)

f) Cas n°6 : (Lewl =2 ; $\tilde{d}$ =50)

g) Cas n°7 : (Lewl =10 ; $\tilde{d}$ =10)

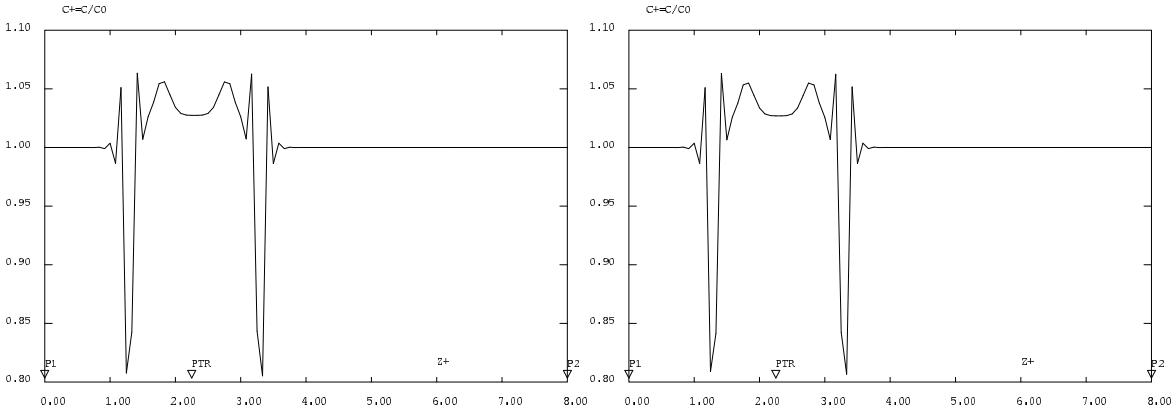
h) Cas n°8 : (Lewl =10 ; $\tilde{d}$ =20)

i) Cas n°9 : (Lewl =10 ; $\tilde{d}$ =50)

j) Cas n°10 : (Lewl =10^3 ; $\tilde{d}$ =10)

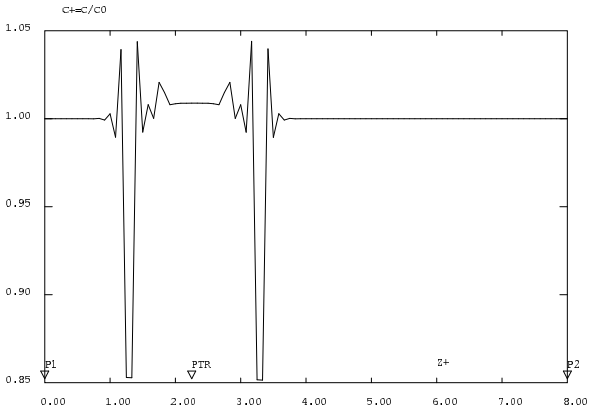
Figure 5.9 : Profils de Concentration adimensionnelle C^+ le long de la paroi du barreau (tranche fixe)

Plus le nombre de Lewis dans le liquide (*Lewl*) est grand et plus la diffusion des espèces est lente dans le liquide et le coefficient de partage k_0 n'est pas reproduit au niveau de l'interface solide/liquide.

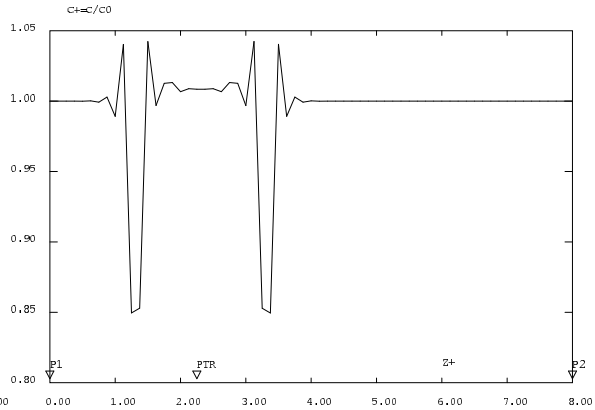


k) Cas n°11 : ($Lewl = 10^3$; $\tilde{d}$ =20)

l) Cas n°12 : ($Lewl = 10^3$; $\tilde{d}$ =50)



m) Cas n°13 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d}$ =10)



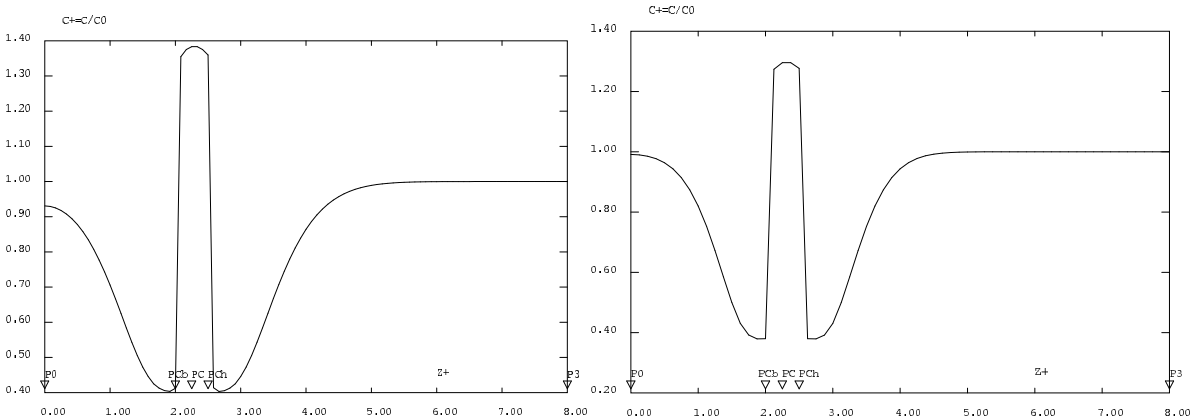
n) Cas n°14 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d} = 10^4$)

Figure 5.10 : Profils de concentration adimensionnelle C^+ le long de la paroi du Barreau (fusion d'une tranche fixe)

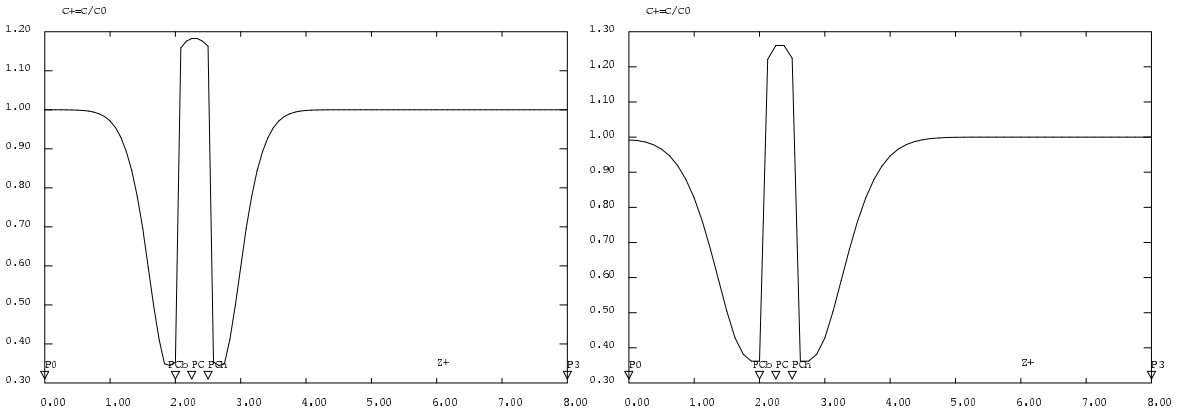
À partir d'un nombre de Lewis $Lewl$ =10 et d'un rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$ =20 on constate l'apparition des oscillations au voisinage de l'interface et dans la phase liquide figures (5.9 et 5.10). Ces oscillations sont dues probablement au numérique lorsque le nombre de Lewis combiné avec le rapport de diffusion devient important. La diffusion n'est pas complète dans la phase liquide et la diffusion des espèces prend du retard par rapport à la diffusion thermique.

5.3.2.4 Profils de concentration le long de l'axe du barreau

Les figures (5.11, 5.12, 5.13) montrent le profil de la concentration C^+ le long de l'axe du barreau. L'effet du nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$) et du rapport des coefficients de diffusion $\tilde{d}$ sur la distribution de l'impureté est par analogie, le même que sur la paroi. Les effets bidimensionnels dus au retard entre la surface et le cœur du barreau font que la largeur de la zone fondue au niveau de l'axe est plus petite et par suite, le profil de concentration le long de l'axe se trouve sensiblement modifié avec toutefois constatation d'une zone de diffusion plus au moins étendue pour le solide qui se resserre avec l'augmentation des paramètres $Lewl$ et $\tilde{d}$, et d'une zone étroite pour le liquide qui se comporte d'une façon similaire que la zone de diffusion dans le solide vis-à-vis ces derniers paramètres.

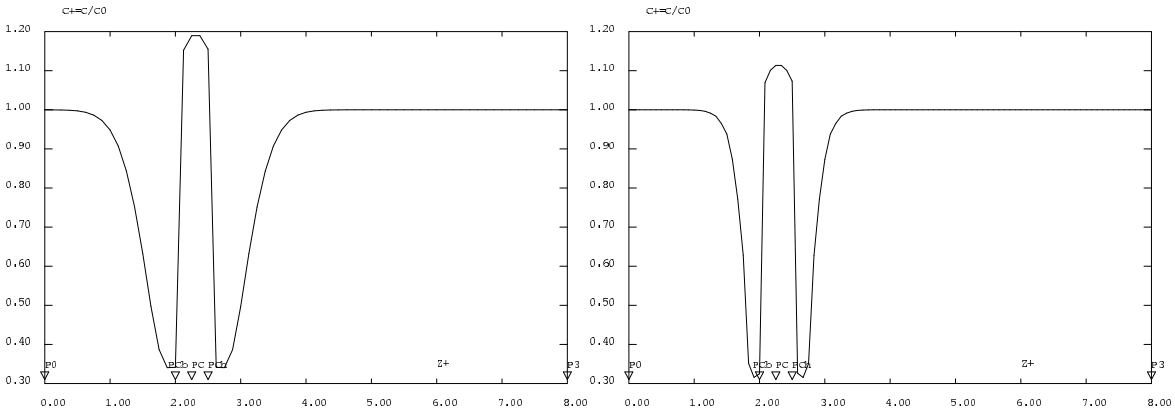


a) Cas n°1 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =10) *b) Cas n°2 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =20)*



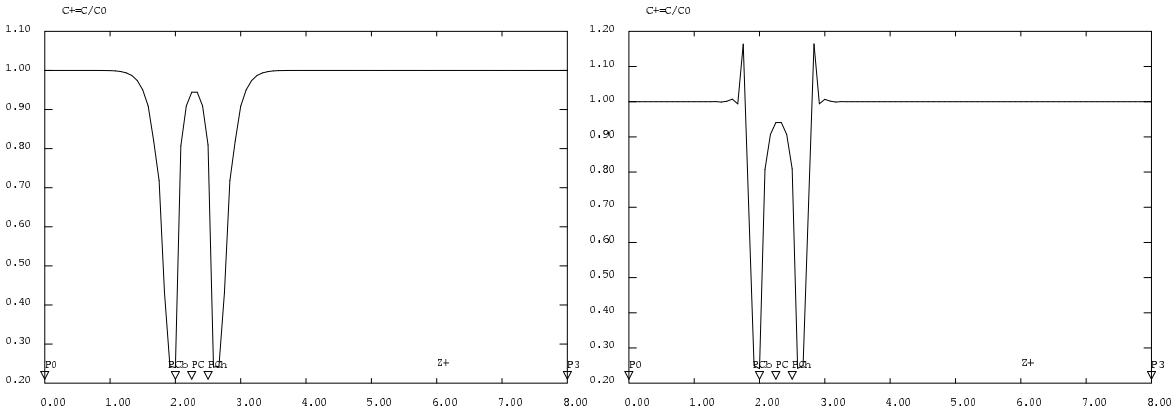
c) Cas n°3 : ($Lewl$ =1 ; $\tilde{d}$ =50) *d) Cas n°4 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =10)*

Figure 5.11 : Profils de concentration adimensionnelle C^+ le long de l'axe du barreau (fusion d'une tranche)



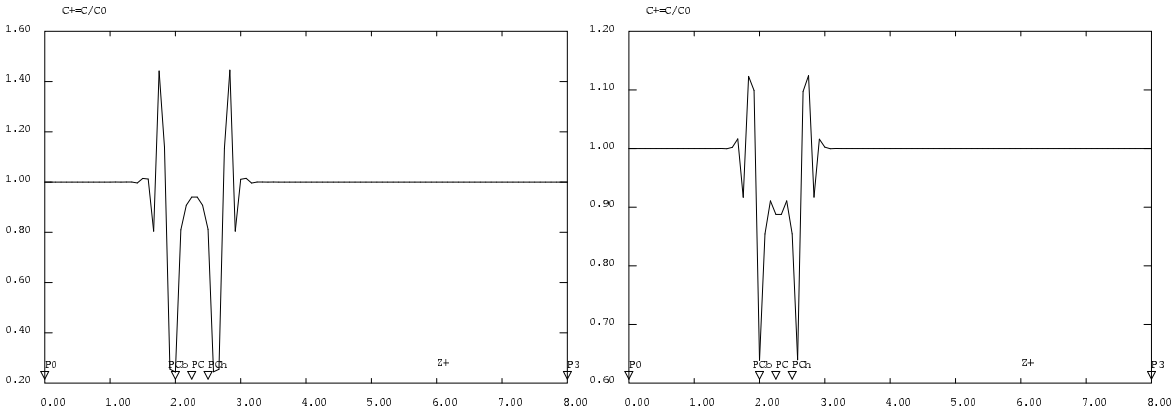
e) Cas n°5 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =20)

f) Cas n°6 : ($Lewl$ =2 ; $\tilde{d}$ =50)



g) Cas n°7 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =10)

h) Cas n°8 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =20)

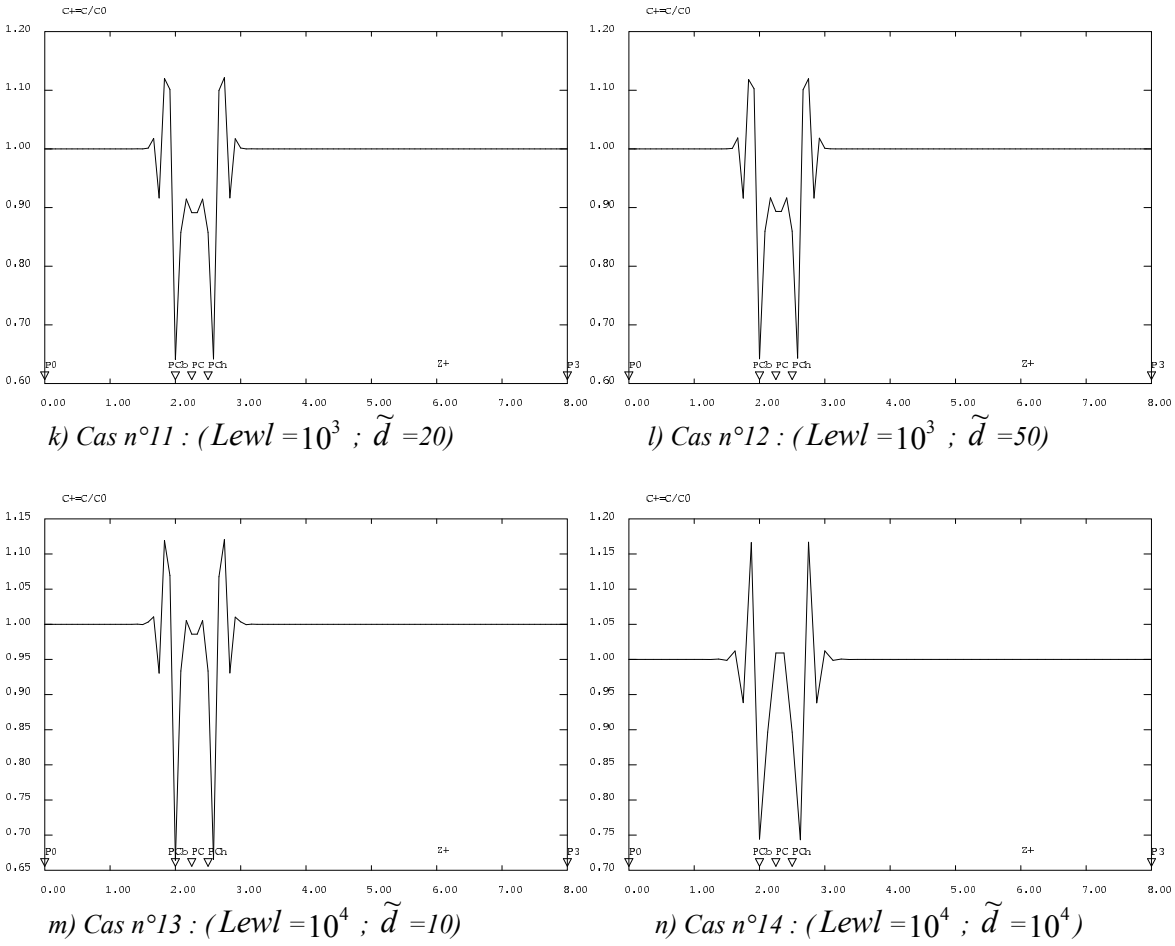


i) Cas n°9 : ($Lewl$ =10 ; $\tilde{d}$ =50)

j) Cas n°10 : ($Lewl$ =10^3 ; $\tilde{d}$ =10)

Figure 5.12 : Profils de concentration adimensionnelle C^+ le long de l'axe du barreau (fusion d'une tranche fixe)

Plus le nombre de Lewis $Lewl$ est grand et plus la diffusion des espèces est lente dans le liquide et le coefficient de partage k_0 n'est pas reproduit au niveau de l'interface solide/liquide.



k) Cas n°11 : ($Lewl = 10^3$; $\tilde{d}$ =20)

l) Cas n°12 : ($Lewl = 10^3$; $\tilde{d}$ =50)

m) Cas n°13 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d}$ =10)

n) Cas n°14 : ($Lewl = 10^4$; $\tilde{d} = 10^4$)

Figure 5.13 : Profils de concentration adimensionnelle C^+ le long de l'axe du barreau (fusion d'une tranche fixe)

5.3.3 Conclusion sur la fusion d'une tranche avec source immobile

Au terme de cette étude, nous allons donc pouvoir sélectionner et choisir parmi les différents cas simulés (1 à 14), des valeurs associées aux deux paramètres, nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$) et rapport des coefficients de diffusion massique $\tilde{d}$, susceptibles de mieux représenter le processus de purification étudié. Le résultat de la simulation du cas n° 1 pour un $Lewl = 1$ et $\tilde{d} = 10$ paraît bien donner des valeurs plus proches au profil de concentration attendue et surtout au saut de concentration au niveau d'interfaces liquide/solide.

Ces valeurs choisies sont en fait propres à un matériau bien donné, elles seront affectées à notre modèle et adoptées d'une façon définitive pour toute l'étude en déplacement (processus de purification à proprement dit) qui suivra.

Chapitre 6

Étude en déplacement : Purification

6.1 Introduction

Le processus de fusion se fait en deux phases. La première phase est la fusion entière jusqu'au cœur du barreau d'une tranche avec source de chauffage immobile et la deuxième phase, consiste à drainer les impuretés d'une extrémité du barreau à l'autre en faisant translater les sources. Cette deuxième phase fait intervenir une source de refroidissement qui sera nécessaire pour le refroidissement et la solidification d'une portion de la tranche déjà en fusion et remplit la même fonction pour les autres tranches à fondre. Le déplacement de deux sources (chauffage et refroidissement) se fait simultanément et avec la même vitesse.

Dans le chapitre 5 nous avons étudié la première phase, cela nous a permis de choisir les valeurs de paramètres du nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$) et du rapport des diffusions massiques ($\widetilde{d}$) à affecter à notre modèle pour représenter au mieux le processus de purification « zone refining » et atteindre notre objectif. Dans le présent chapitre nous allons adopter ces deux valeurs d'une façon définitive et étudier l'influence de chacune des grandeurs associées au processus de purification. Le comportement et l'efficacité de ce dernier sont manifestement liés:

- à la vitesse de déplacement des sources (vitesse de drainage des impuretés).
- aux densités de flux de chauffage (q_c^+) et de refroidissement (q_f^+).
- à la largeur de la tranche du barreau à fondre (largeur de la source de chauffage).
- à la géométrie du barreau.

Pour réduire le nombre de cas à étudier, nous allons dans un premier temps fixer la géométrie du barreau: rayon (R^+) et longueur (L_b^+). Et par la suite en phase finale nous regardons l'influence de la géométrie en faisant varier le rayon (R^+) ou encore le rapport d'aspect géométrique (L_b^+ / R^+).

Pour atteindre les objectifs visés nous avons suivi les étapes successives suivantes:

1. Étudier l'influence de la vitesse de déplacement V_S des sources sur le processus de purification dans le cas où les densités de flux de chauffage et de refroidissement sont égales ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$) même ceci reste non réaliste. Cette étude permet de dégager une vitesse V_S parmi les vitesses de translation des sources déjà étudiées et qui sera adoptée pour la suite de l'étude à partir de l'étape 3.

2. Étudier l'influence de la vitesse de déplacement V_S des sources sur le processus de purification dans le cas où les densités de flux de chauffage et de refroidissement sont différentes ($q_c^+ > -q_f^+$). Cette étude nous permet de comparer les deux étapes (1 et 2) et de faire un choix parmi les deux configurations étudiées : ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$) et ($q_c^+ > -q_f^+$). Ce choix sera adopté pour la suite de l'étude à partir de l'étape 3.

3. Étudier l'influence de l'intensité de flux (chauffage et refroidissement) pour une configuration ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$) sur le processus de purification. Cette étude permet de faire un choix sur q_c^+ et q_f^+ qui sera adopté d'une façon définitive pour l'étape 4

4. Étudier l'influence de la largeur de la tranche à fondre Δz^+ sur le processus de purification.

5. Étudier l'effet du rapport d'aspect géométrique (L_b^+ / R^+) sur le processus de purification.

6.2 Effet de la vitesse de déplacement des sources sur les champs de température et de concentration

6.2.1 Cas où les densités de flux de chauffage et de refroidissement sont égales ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$)

Dans le processus de purification par fusion de zone ou encore zone fondue, la vitesse de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement est la grandeur la plus importante pour obtenir un résultat de purification satisfaisant. Elle est généralement lente et varie dans une gamme plus au moins large, qui dépend de plusieurs paramètres :

- Type de source :
  - Dans le cas des fours à induction (zone melting classique), la gamme de Vitesse varie entre 0.1 cm/h et 40 cm/h.
  - Dans la technologie à plasma la vitesse de déplacement peut dépasser le 120 cm/h [MORV, 84].
- Type de matériau.
- Conditions de chauffage et de refroidissement.
- Géométrie du barreau.

6.2.1.1 Données pour la simulation

Dans ce cas de simulation nous avons fixé les dimensions du barreau cylindrique, rayon adimensionnel R^+=1 et longueur adimensionnelle L_b^+ = 8. Le maillage est maintenu pour toute l'étude : (13x97) nœuds avec des pas d'espaces suivant $\vec{r}$ et $\vec{z}$ tels que : $\Delta r_M^+ = \Delta z_M^+ = 8.33 10^{-2}$. Un pas de temps $\Delta\tau = 3 10^{-4}$ correspondant en fait à un pas de temps dimensionnel $\Delta t = 5.9 10^{-4} s$. La longueur de référence L est prise égale à 0.01m. Le tableau 6.1 fournit les différentes données du problème.

$Lewl$	$\tilde{d}$	$\tilde{c}$	q_c^+	q_f^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	Δz^+
1	10	1	0.3	-0.3	0.99928	1/k	1	1

Tableau 6.1: Données pour la simulation *: Effet de la vitesse de déplacement des sources ; Cas où* ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$)

Dans cette étude nous avons fixé tous les paramètres gouvernant le processus de purification et nous nous sommes intéressé uniquement à l'étude de l'effet de la vitesse de déplacement des sources. L'objectif de cette étape est de trouver pour des telles conditions et des données bien définies (géométrie, densité de flux, matériau, largeur de zone fondue…) la gamme de vitesses pour laquelle la purification prend naissance et se manifeste dans le barreau (drainage des impuretés d'une extrémité à l'autre du barreau). Puis choisir dans cette gamme une vitesse estimée favorable pour la purification et qui sera adoptée par la suite, dans les étapes (3, 4 et 5). L'étude a été réalisée avec différentes vitesses de déplacement V_S. Pour tracer et voir la tendance de quelques grandeurs sur l'efficacité de purification nous avons choisi deux points sur l'axe du barreau : point en amont de la position de départ de la source de chauffage (PDEP), situé en tête du barreau et point en aval de la position d'arrêt de la source de chauffage (PARR), situé en queue du barreau. Ces deux points servent pour la saisie des valeurs de différentes grandeurs.
PDS : Position de départ de la source de chauffage
PAS : Position d'arrêt de la source de chauffage

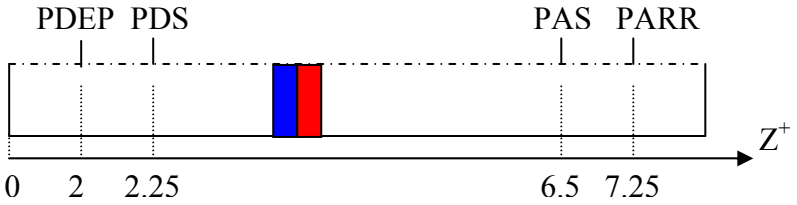


Schéma de différentes coordonnées des points situés sur l'axe du barreau

Les différents cas de l'étude sont résumés dans le tableau 6.2.

6.2.1.2 Résultats de l'étude

L'étude a été réalisée avec des vitesses allant de 30 cm/h à 400 cm/h. Dans cette gamme, 12 cas de vitesses ont été simulés dans les mêmes conditions et avec le même maillage. Pour analyser l'effet de la vitesse sur le drainage des impuretés et sur l'efficacité de la purification nous avons relevé les valeurs de certaines grandeurs thermiques et massiques aux différents points du barreau (axe et paroi). En exploitant Ces résultats on pourra tracer au point (PDEP), la tendance sur le processus de purification. Le tableau 6.2 résume l'ensemble de résultats de cette étude.

Cas n°	Vs Cm/h	Nombre d'itérations sur le temps j	T^{+}_{PTR}	T^{+}_{PC}	T^{+}_{P0}	T^{+}_{P3}	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T^{+}_{PDEP}	C^{+}_{PDEP}	C^{+}_{PARR}
1	30	857885	1.3893	1.2666	0.7453	1.3798	1	1	0.7506	0.5643	2.0966
2	50	514731	1.3978	1.2735	0.7245	1.3900	1	1	0.7346	0.5687	2.0791
3	60	428943	1.4025	1.2799	0.7153	1.3939	1	1	0.7274	0.5731	2.0672
4	70	367665	1.4055	1.2830	0.7084	1.3966	1	1	0.7218	0.5779	2.0561
5	90	285962	1.4078	1.2857	0.7060	1.3974	1	1	0.7184	0.5859	2.0383
6	140	183833	1.3683	1.2460	0.7579	1.3339	1	1	0.7589	0.6038	2.0068
7	150	171577	1.3525	1.2299	0.7730	1.3020	1	1	0.7745	0.6062	1.9983
8	200	128683	1.2746	1.1516	0.8391	0.9961	0	1	0.8404	0.6200	1.9140
9	250	102947	1.2621	1.1392	0.8960	0.9971	0	1	0.8972	0.6236	1.9436
10	300	85789	1.2349	1.1108	0.9420	0.9968	0	1	0.9437	0.6312	1.0882
11	350	73533	1.2000	1.0708	0.9788	0.9970	0	1	0.9809	0.6421	0.6540
12	400	61186	1.1633	1.0000	0.9957	0.9971	0	0	0.9974	0.6563	0.8060
Remarque : Pour le cas n° 12 la source de chauffage est arrêtée à la position z+= 6.29 au lieu de 6.5 : la vitesse de déplacement est trop importante : La fusion au coeur du barreau n'a pas eu lieu ($f_{l_{PCh}} = 0$)											

Tableau 6.2 : Résultats de la purification : Effet de la vitesse de déplacement (V_S)

6.2.1.2.1 Effet de la vitesse de déplacement sur la purification : cas où ($q^{+}_{f} = - q^{+}_{c}$; $q^{+}_{c} > 0$)

L'exploitation des résultats du tableau 6.2 permet de tracer la tendance de la purification sous l'effet de la vitesse de déplacement des sources au point (PDEP). Ces résultats ont été relevés dans les mêmes conditions et après chaque passage des sources. La figure 6.1 montre cette tendance. On constate que la meilleure efficacité pour purifier le matériau étudié est de déplacer les sources avec des faibles vitesses. Mais cela peut être discuté en terme d'énergie mise en jeu dans ce processus de purification. Il suffit de faire une simple comparaison entre les énergies mises en jeu pour deux vitesses différentes. Cette énergie est sensiblement 5 fois plus importante dans le cas d'une vitesse de 30 cm/h que celle correspondante à une vitesse de 150 cm/h. Mais on gagne en contre partie environ 7.4 % sur la purification, si la vitesse était de 30 cm/h.

La courbe de la figure 6.1 présente trois régions :

- région où la vitesse de déplacement est inférieure à 200 cm/h, la purification varie linéairement avec la vitesse de déplacement.

- une petite région intermédiaire : vitesse comprise entre 200 cm/h et 250 cm/h, on peut considérer qu'il n y a pas d'effet de vitesse sur la purification et la distribution de concentration change peu.
- une troisième région : vitesse supérieure à 250 cm/h, la purification reprend linéairement avec une légère diminution de pente.

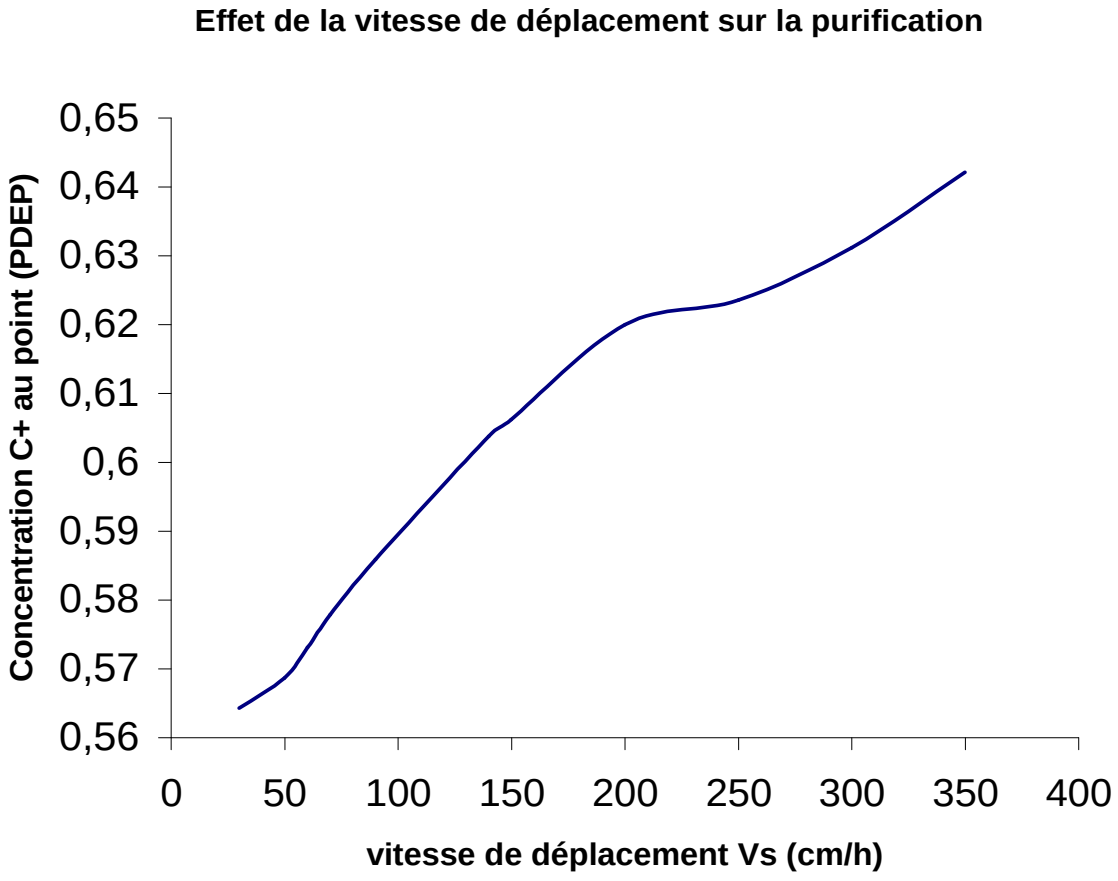


Figure 6.1 : Concentration C^+ au point PDEP (tête du barreau) après la première passe

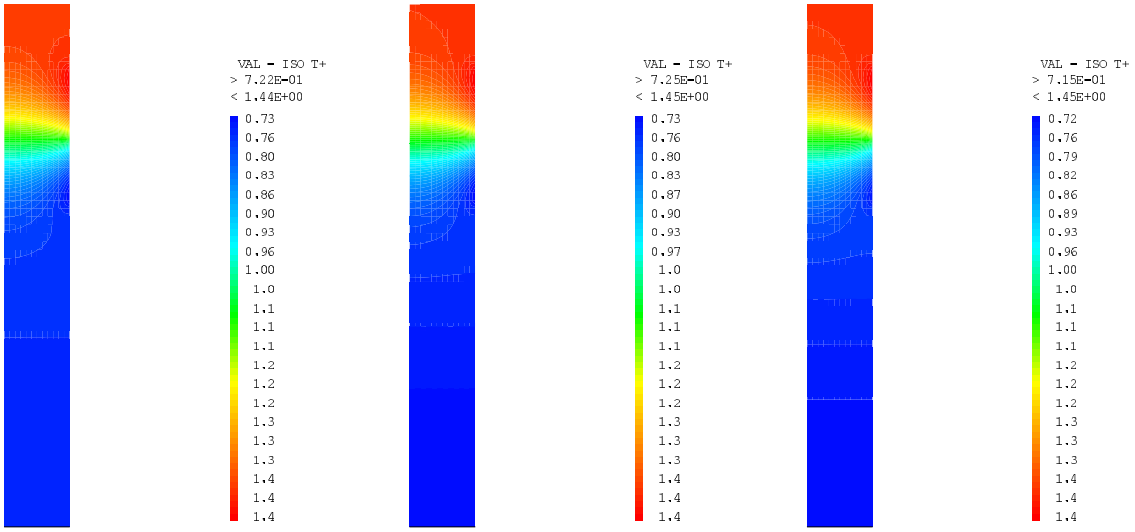
6.2.1.2.2 Effet de la vitesse de déplacement sur le champ de température : cas où (q_f^+=-q_c^+ ; q_c^+>0)

Les résultats du tableau 6.2 montrent que jusqu'à une vitesse de 90 cm/h, les températures aux points PTR et PC situés dans la même section transversale du barreau et qui sont respectivement sur la paroi et sur l'axe du barreau (points liés fictivement à la position de la source de chauffage mobile) augmentent avec la vitesse de déplacement et qu'à partir de la vitesse 140 cm/h, la tendance s'inverse. Ces points restent toujours en fusion pour toutes les vitesses simulées, sauf pour le cas simulé avec la vitesse de 400 cm/h qui parait plus élevée et le point PC sur l'axe du barreau restait à l'état solide. Ce qui explique que cette vitesse de 400 cm/h est très élevée et que la fusion n'arrive pas à atteindre le coeur du barreau. Pour ce cas bien précis la source n'a pas atteint la position d'arrêt prévue et s'est arrêtée à la position $Z^+ = 6.29$. En effet, deux critères d'arrêt en déplacement ont été fixés : un premier test est lorsque la source de chauffage atteint la position $Z^+ = 6.5$ et un second test lorsque la

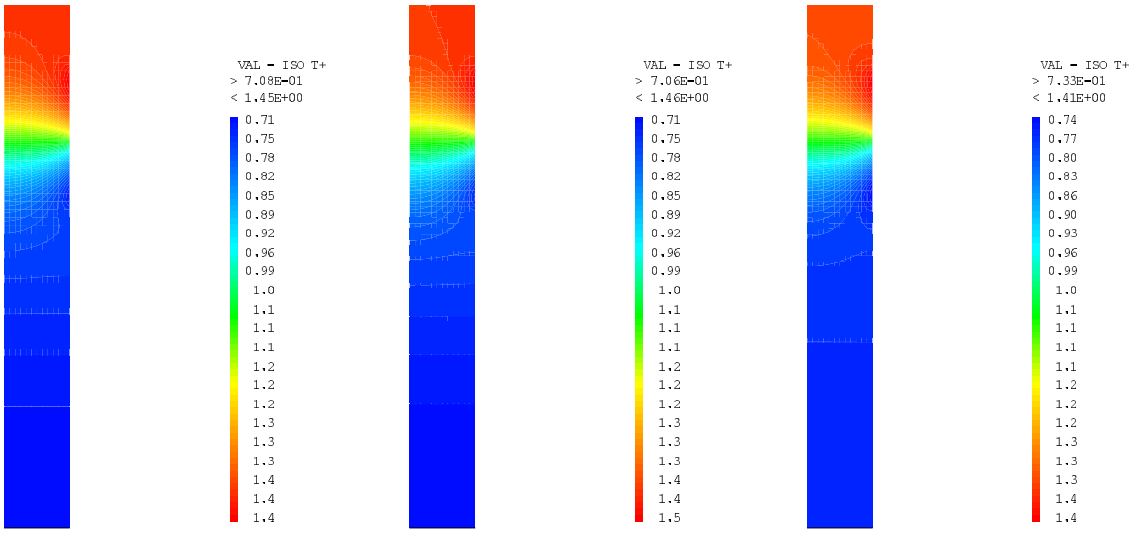
fraction fondue de la phase liquide au point PC_h est inférieure à 1 c'est-à-dire point n'est pas complètement fondu.

6.2.1.2.2.1 Isovaleurs de température

Les isovaleurs de température tracées pour différentes vitesses de translation des sources montrent bien l'effet de la vitesse sur la distribution de la température et le retard entre le cœur et la paroi du cylindre qui augmente avec la vitesse de translation.



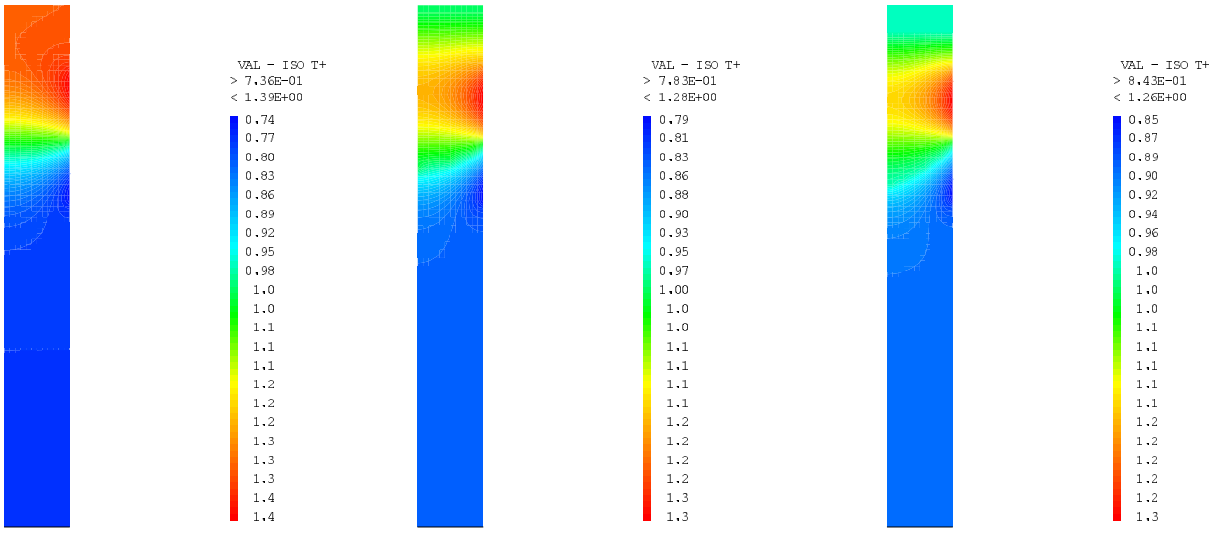
a) V_S = 30 cm/h b) V_S = 50 cm/h c) V_S = 60 cm/h



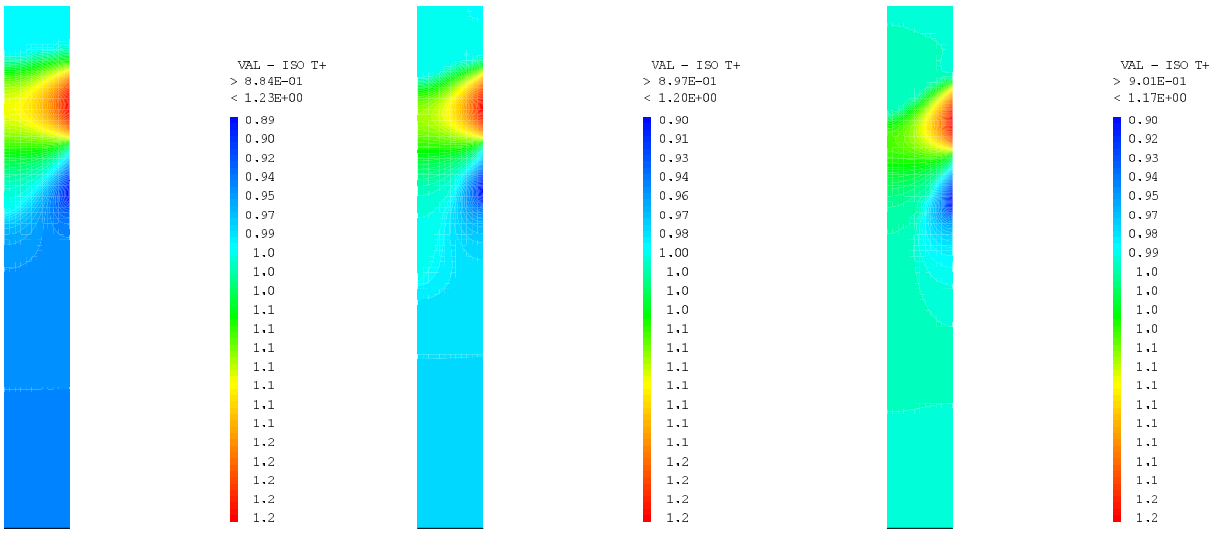
d) V_S = 70 cm/h e) V_S = 90 cm/h f) V_S = 140 cm/h

Figure 6.2 : Isovaleurs de température T^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

Pour des vitesses jusqu'à 150 cm/h la température au point P3 situé sur l'axe (extrémité supérieure du barreau) dépasse la température de fusion et à partir de la vitesse de 200 cm/h ce point reste à l'état solide.



g) V_S = 150 cm/h h) V_S = 200 cm/h i) V_S = 250 cm/h

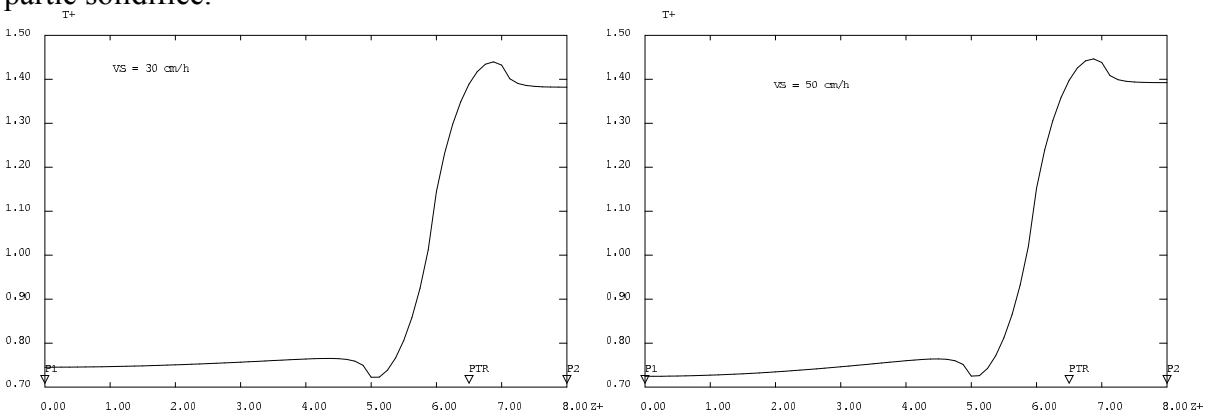


j) V_S = 300 cm/h k) V_S = 350 cm/h l) V_S = 400 cm/h

Figure 6.3 : Isovaleurs de température T^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

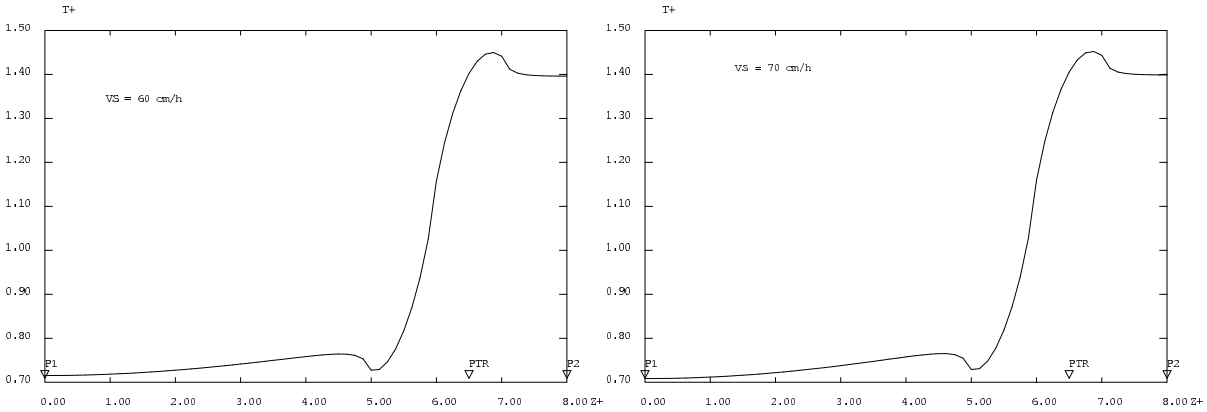
6.2.1.2.2.2 Profils de température le long de la paroi du barreau

Jusqu'à une vitesse de déplacement des sources de l'ordre de 90 cm/h la température dans la portion solidifiée du barreau a tendance à diminuer. Par contre au-delà de cette vitesse, la température à la paroi solidifiée augmente. En effet, dans la première phase « source immobile» seule la source de chauffage dépose de l'énergie dans le barreau et pour des vitesses faibles, la source de refroidissement aura plus de temps à extraire de la chaleur de la partie solidifiée.



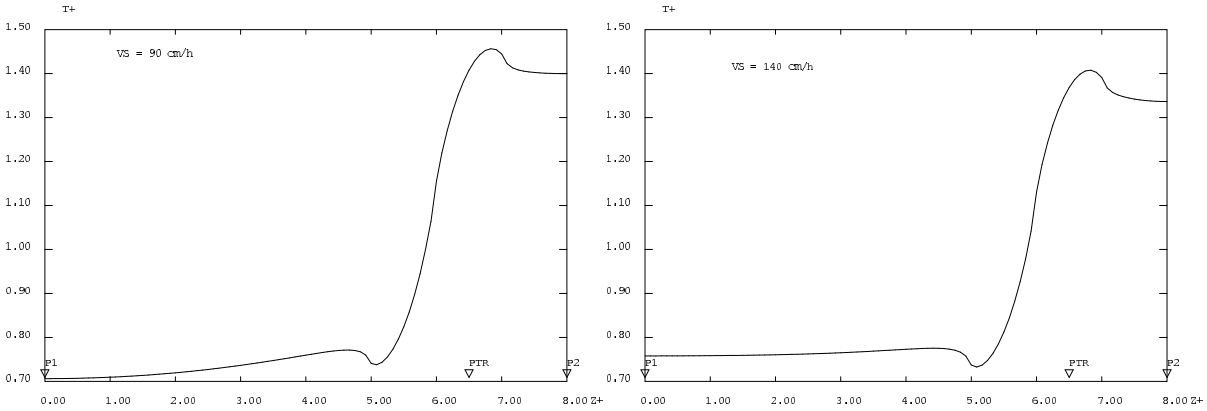
a) V_S = 30 cm/h

b) V_S = 50 cm/h



c) V_S = 60 cm/h

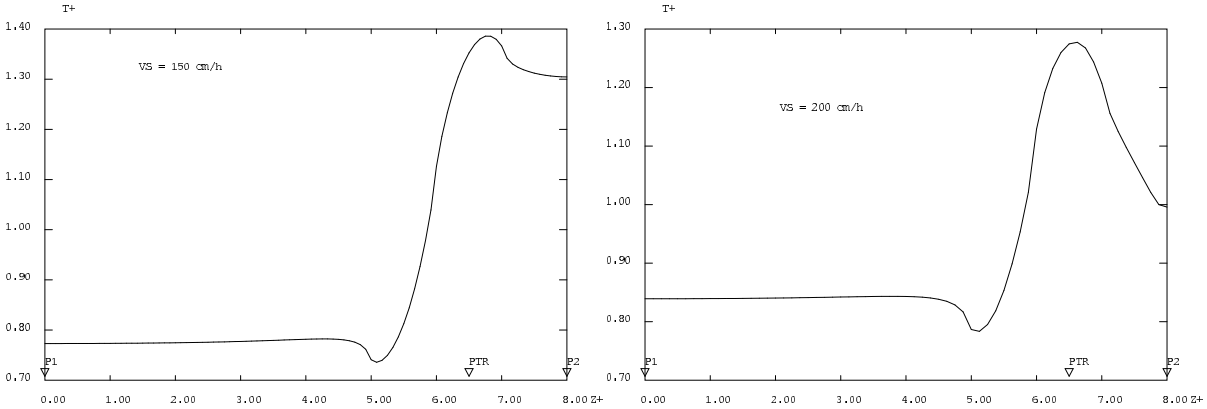
d) V_S = 70 cm/h



e) V_S = 90 cm/h

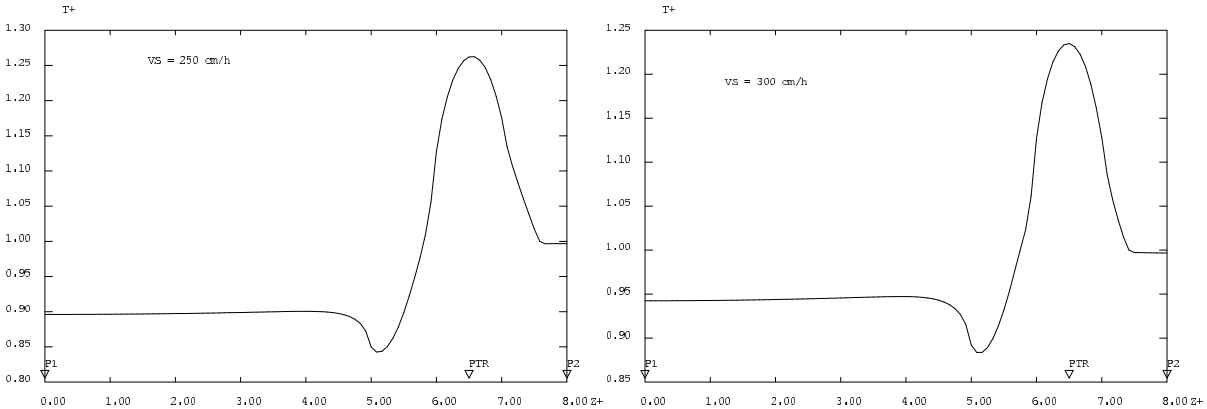
f) V_S = 140 cm/h

Figure 6.4 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement



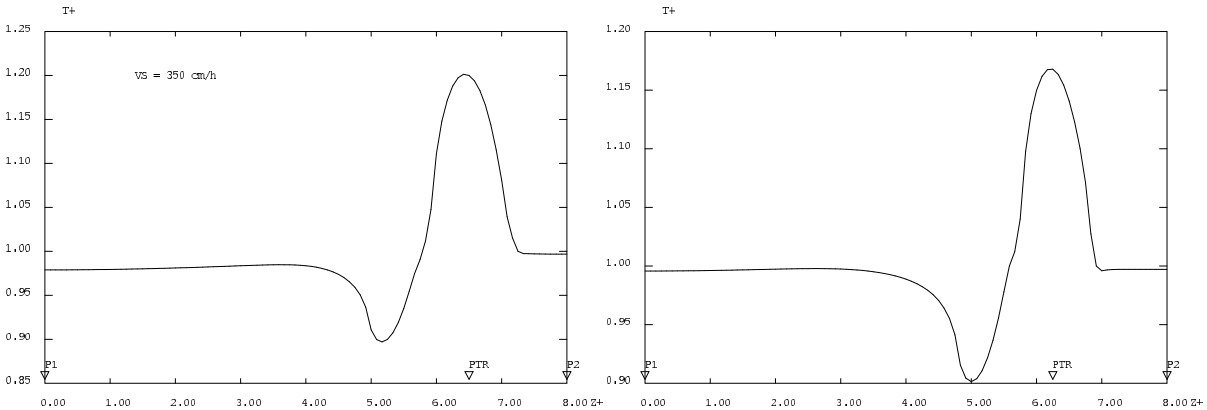
g) V_S = 150 cm/h

h) V_S = 200 cm/h



i) V_S = 250 cm/h

j) V_S = 300 cm/h



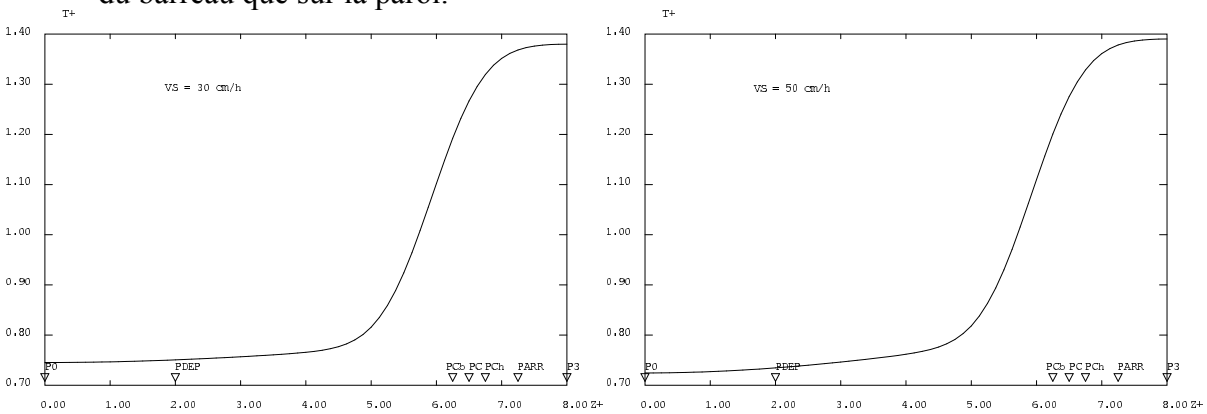
k) V_S = 350 cm/h

ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.5 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

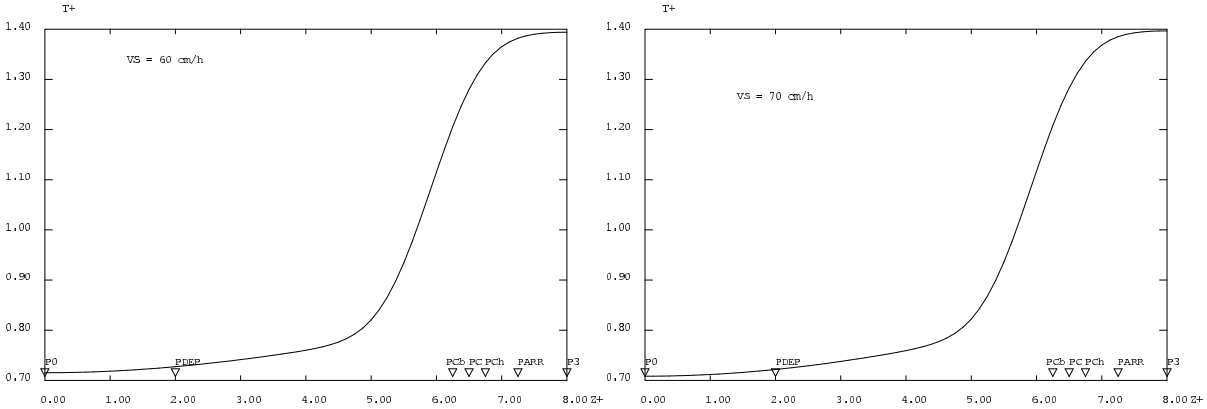
6.2.1.2.2.3 Profils de température le long l'axe du barreau

On observe les mêmes effets de la vitesse de déplacement des sources le long de l'axe du barreau que sur la paroi.



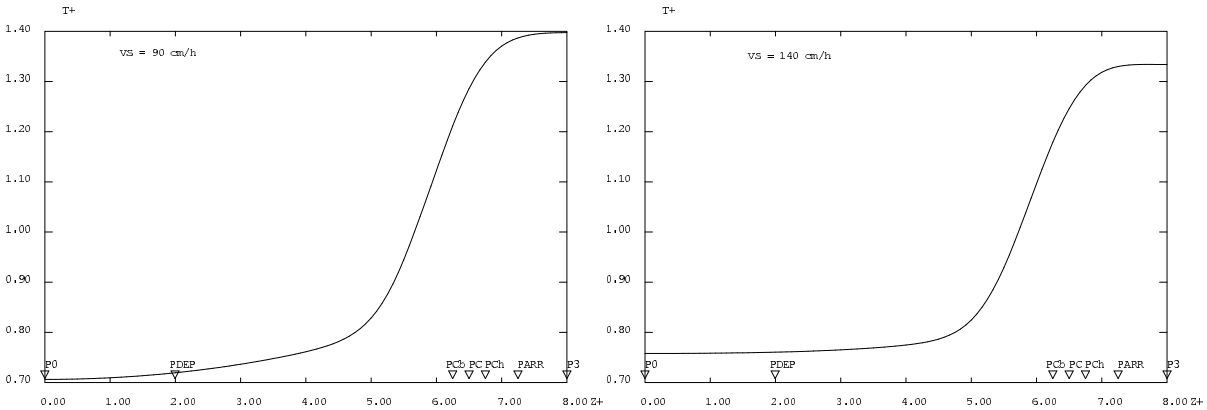
a) V_S = 30 cm/h

b) V_S = 50 cm/h



c) V_S = 60 cm/h

d) V_S = 70 cm/h

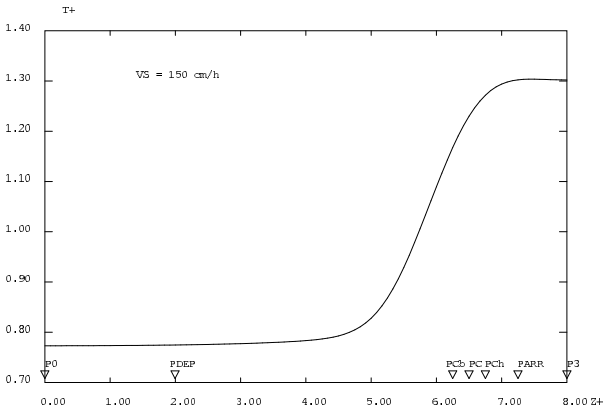


e) V_S = 90 cm/h

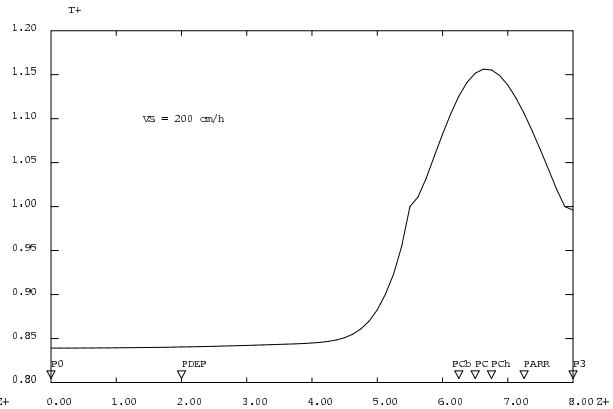
f) V_S = 140 cm/h

Figure 6.6 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

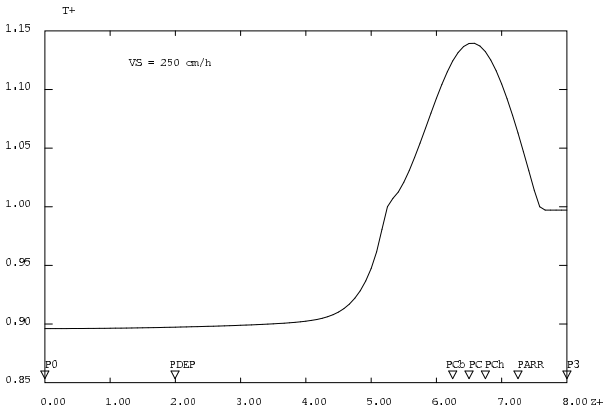
À partir de la vitesse de 200 cm/h, on constate l'apparition de l'effet retardataire de la source de refroidissement qui n'arrive pas à extraire de la chaleur du cœur du barreau. En effet, dans la première phase, la source de chauffage dépose de l'énergie pour fondre la première tranche jusqu'au cœur du barreau et lors du déplacement (deuxième phase), le cœur du barreau reste en fusion alors que la zone en correspondance sur la paroi et qui est en contact avec la source de refroidissement est entrain de se refroidir plus rapidement.



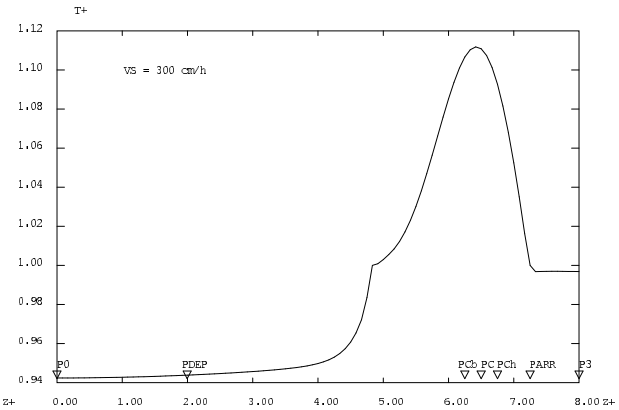
g) V_S = 150 cm/h



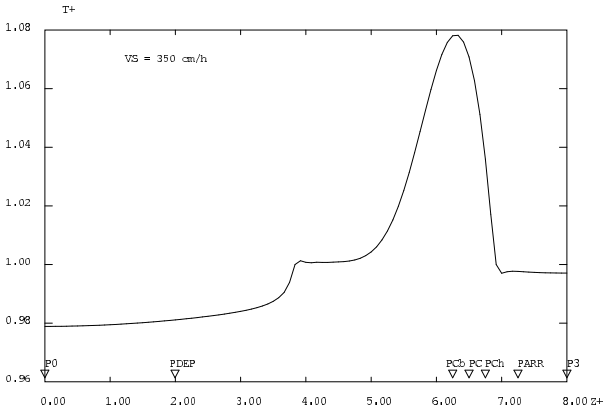
h) V_S = 200 cm/h



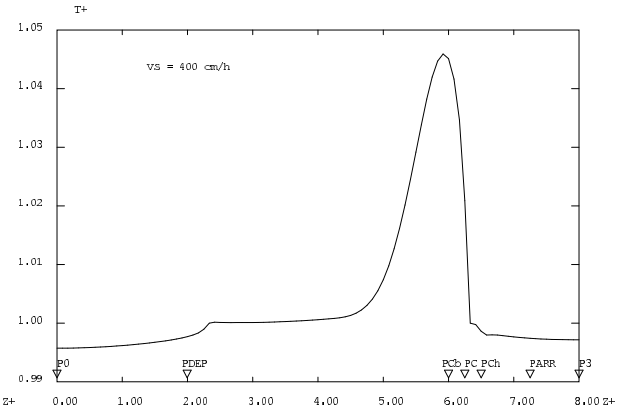
i) V_S = 250 cm/h



j) V_S = 300 cm/h



k) V_S = 350 cm/h

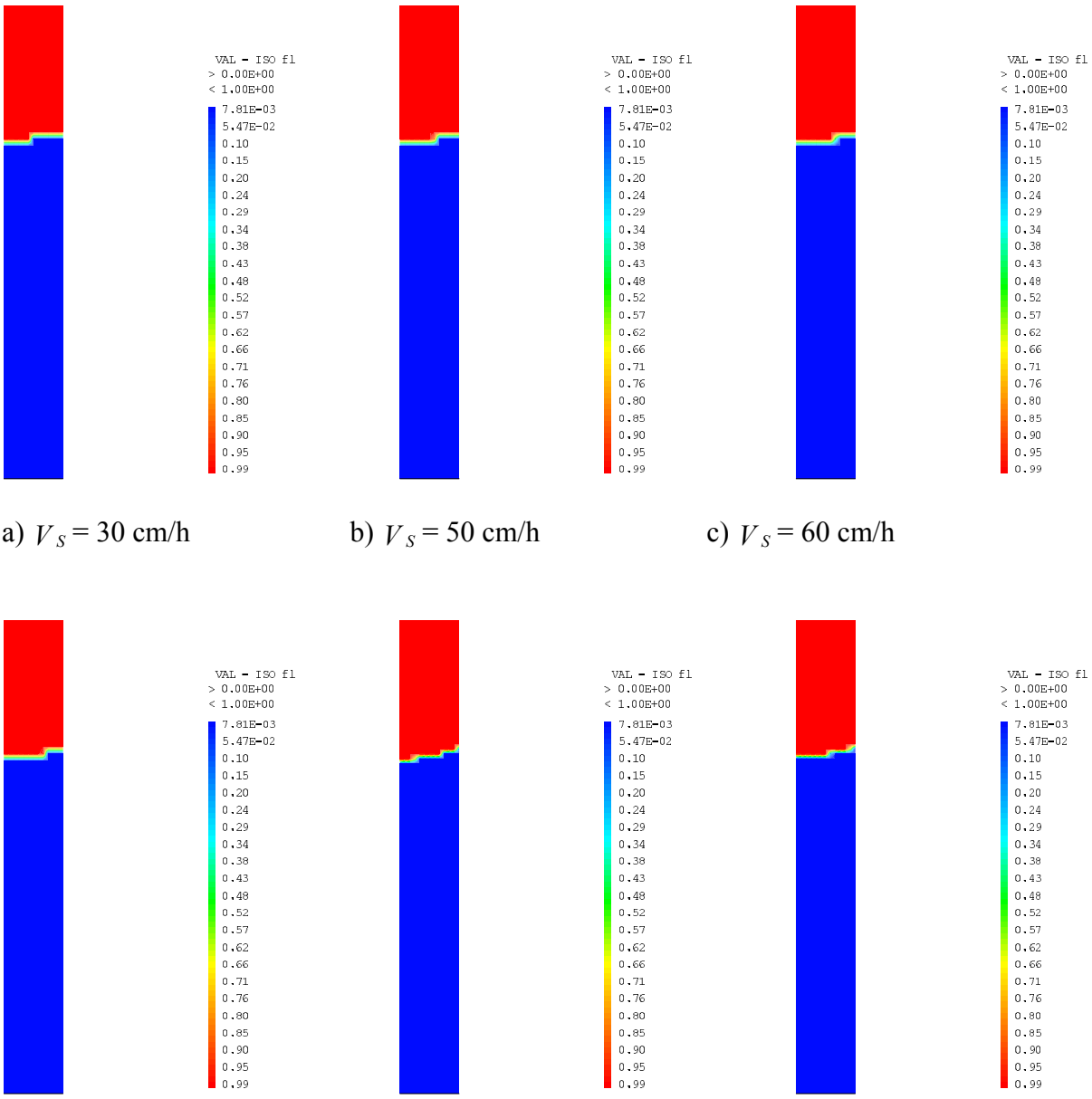


ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.7 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

6.2.1.2.3 Effet de la vitesse de déplacement sur la zone fondue : cas où ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$)

À partir de la vitesse de 200 cm/h la forme de la zone fondue est perturbée, un décalage entre la paroi et l'axe du barreau s'accentue avec la vitesse. Ces effets tridimensionnels de zone fondue influent directement sur la distribution des impuretés et donc sur le degré de purification

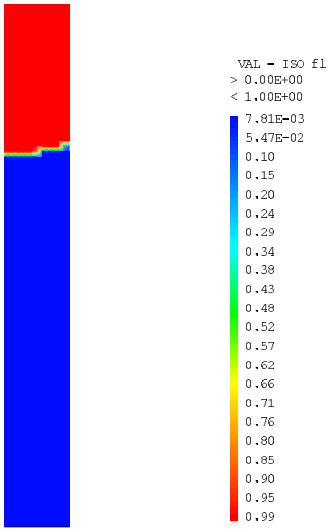


a) V_S = 30 cm/h b) V_S = 50 cm/h c) V_S = 60 cm/h

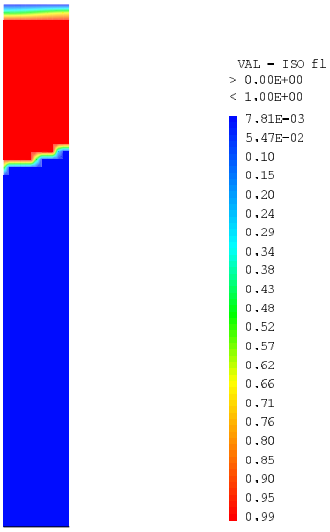
d) V_S = 70 cm/h e) V_S = 90 cm/h f) V_S = 140 cm/h

Figure 6.8 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

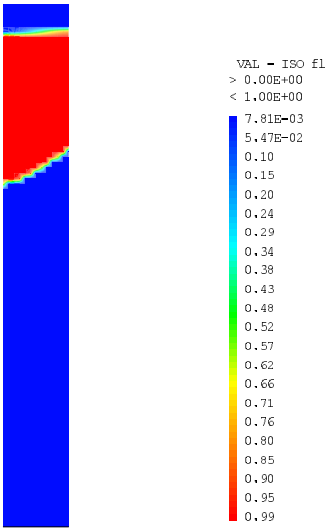
La figure 6.9.h montre qu'à partir de la vitesse de 200 cm/h une tranche toute entière au niveau de l'extrémité supérieure du barreau reste à l'état solide et le front de solidification commence à se déformer et prendra de l'ampleur avec l'augmentation de la vitesse. La source de refroidissement n'arrive pas à extraire de la chaleur et le centre du barreau reste en fusion. Cet effet est très remarquable sur la figure 6.9.ℓ



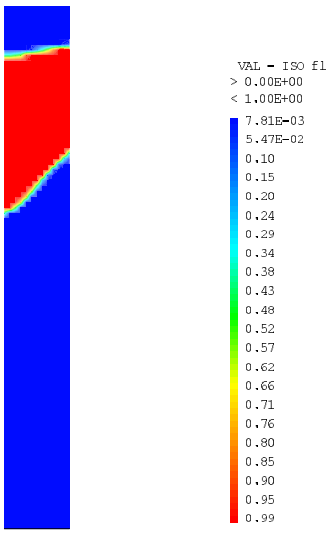
g) V_S = 150 cm/h



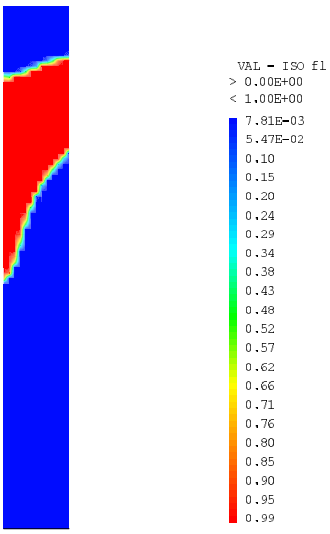
h) V_S = 200 cm/h



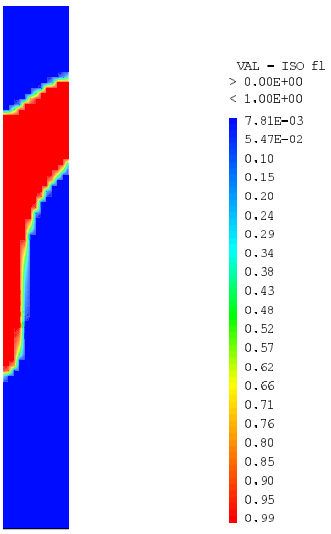
i) V_S = 250 cm/h



j) V_S = 300 cm/h



k) V_S = 350 cm/h



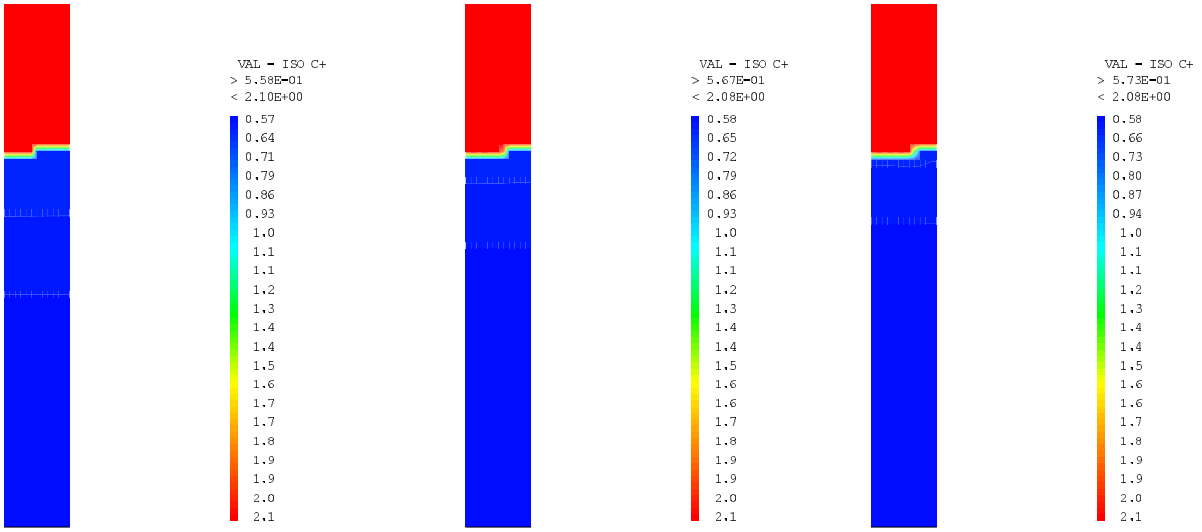
ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.9 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

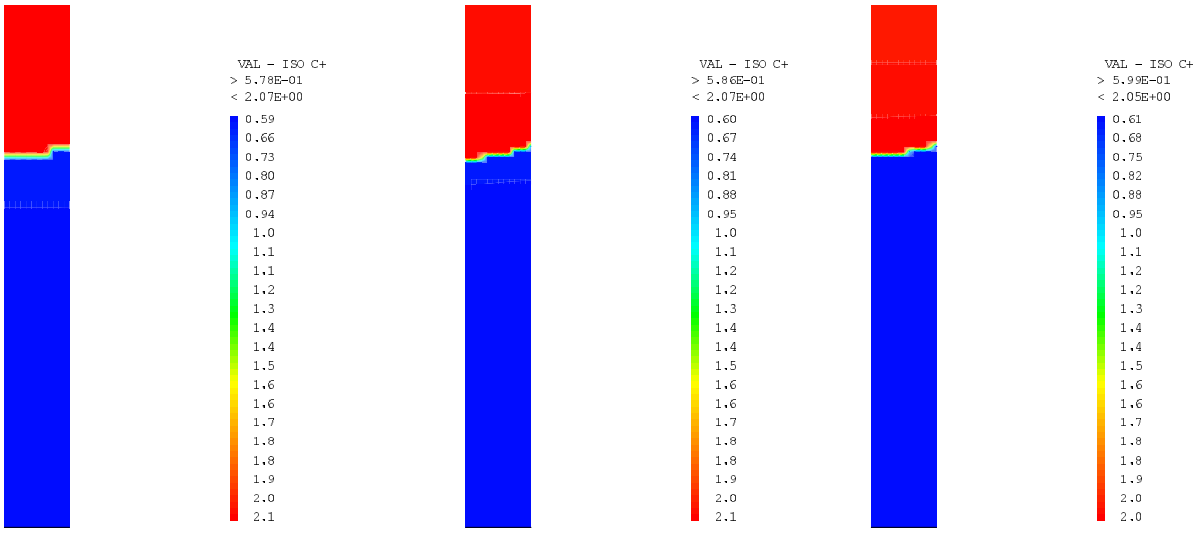
6.2.1.2.4 Effet de la vitesse de déplacement sur le champ de concentration : cas où ($q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$)

6.2.1.2.4.1 Isovaleurs de concentration

À partir de la vitesse de 200 cm/h, on constate presque les mêmes effets sur le champ de concentration que sur la zone fondue, ce qui est parfaitement normal, puisque l'interface solide/liquide (forme du front de fusion) conditionne le drainage des impuretés. Les isovaleurs de concentration (figures 6.10 et 6.11) montrent bien l'influence de la vitesse sur ces derniers et le retard de l'avancement du front de soluté au cœur du barreau par rapport à la paroi.

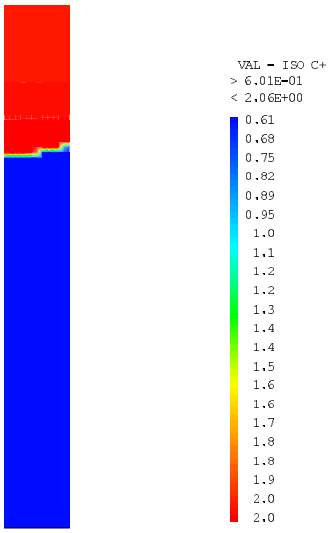


a) V_S = 30 cm/h b) V_S = 50 cm/h c) V_S = 60 cm/h

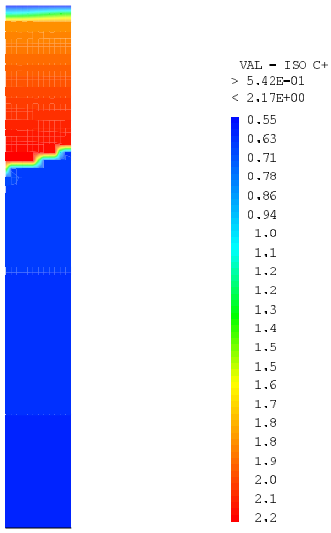


d) V_S = 70 cm/h e) V_S = 90 cm/h f) V_S = 140 cm/h

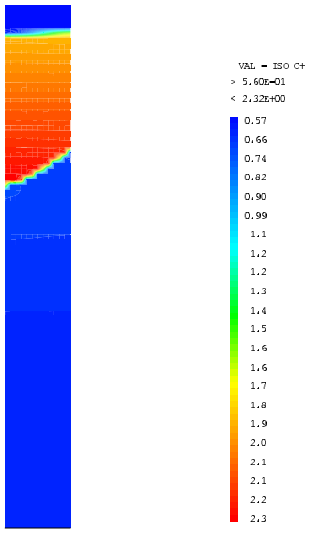
Figure 6.10 : Isovaleurs de Concentration C^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement



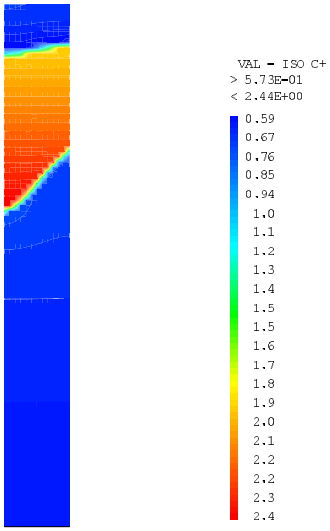
g) V_S = 150 cm/h



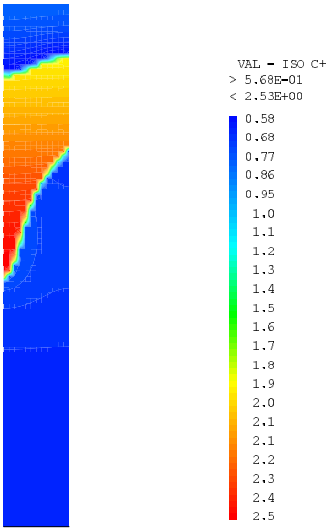
h) V_S = 200 cm/h



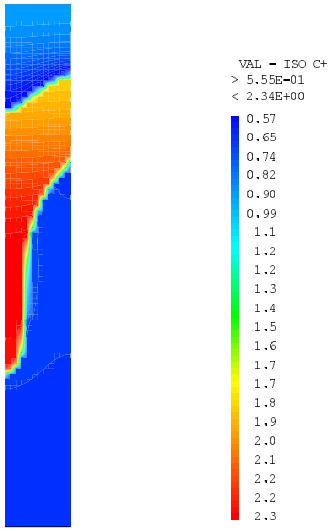
i) V_S = 250 cm/h



j) V_S = 300 cm/h



k) V_S = 350 cm/h



ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.11 : Isovaleurs de Concentration C^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

6.2.1.2.4.2 Profils de concentration le long de la paroi du barreau

Jusqu'à la vitesse de 50 cm/h la diffusion est complète dans la phase liquide (queue du barreau) figure 6.12 (a et b). Au-delà de cette vitesse on constate que la concentration n'est pas uniforme.

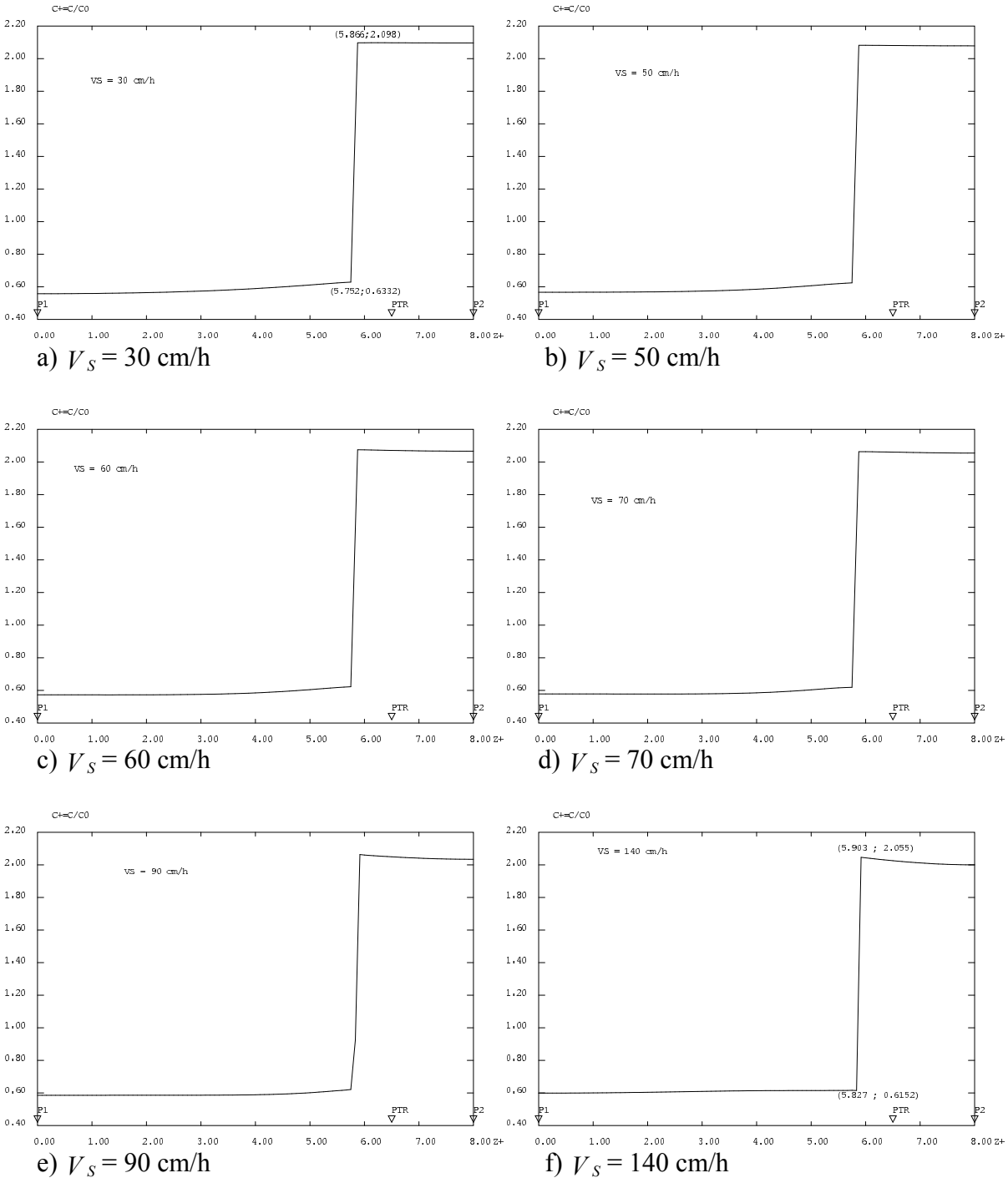
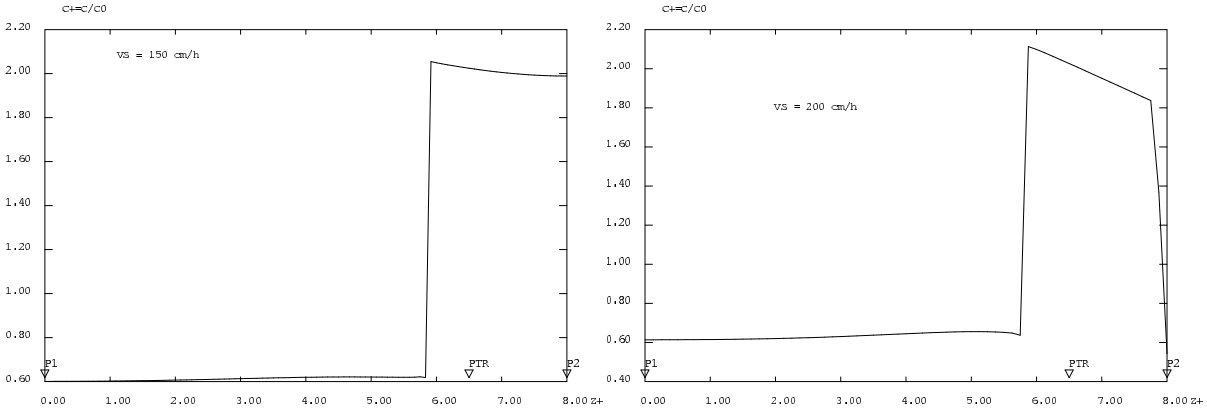
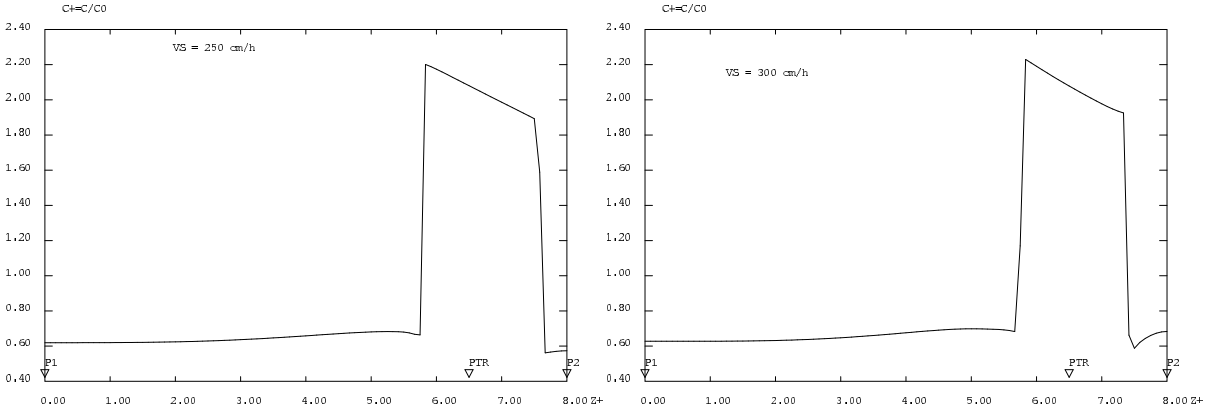


Figure 6.12 : Profils de concentration C^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement



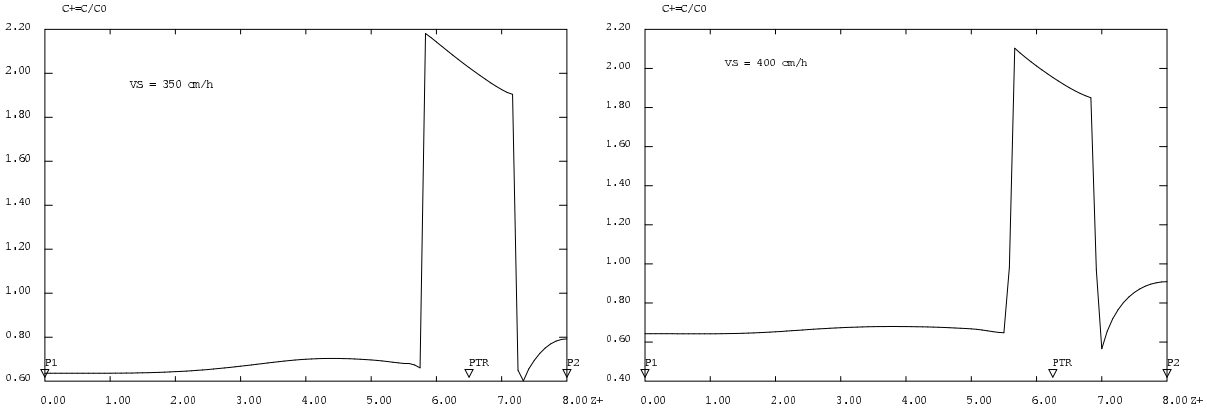
g) V_S = 150 cm/h

h) V_S = 200 cm/h



i) V_S = 250 cm/h

j) V_S = 300 cm/h



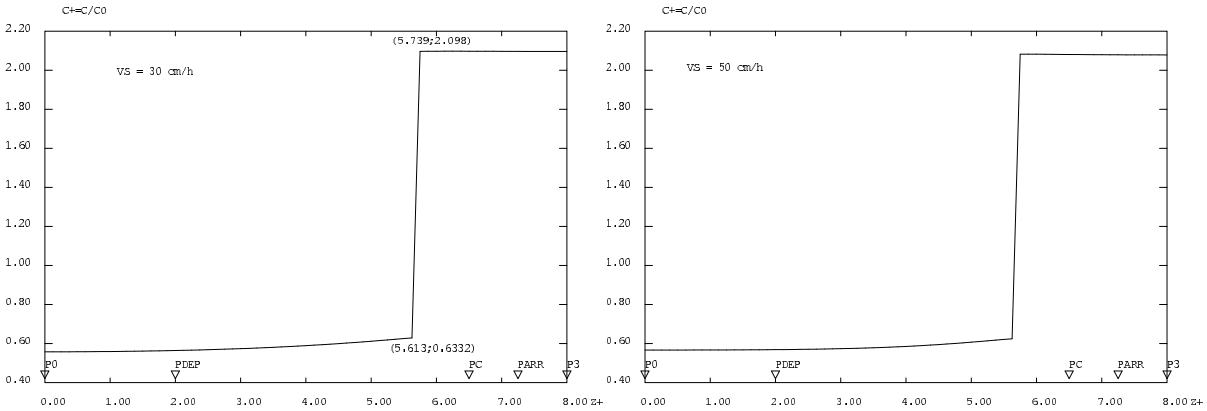
k) V_S = 350 cm/h

ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.13 : Profils de concentration C^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

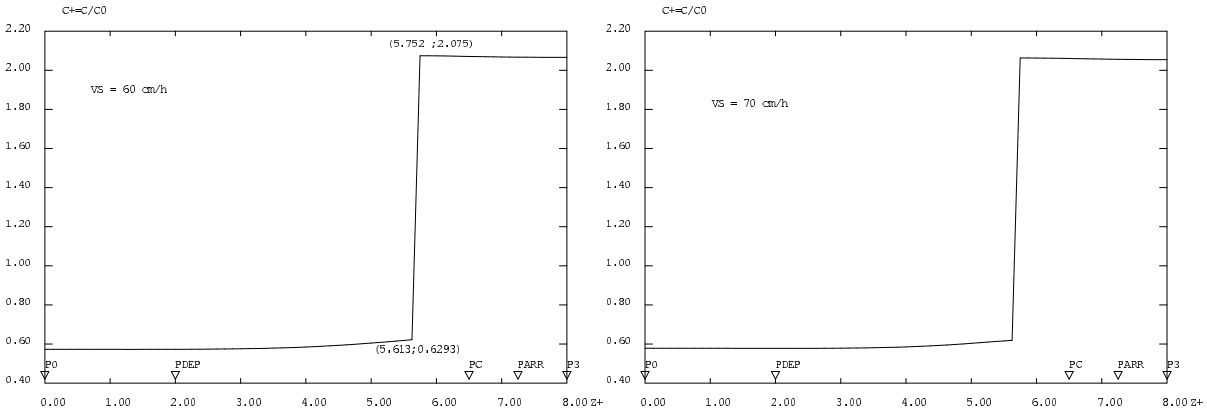
6.2.1.2.4.3 Profils de concentration le long de l'axe du barreau

Les profils de concentration figures (6.14 et 6.15) montrent que jusqu'à une vitesse de traitement de l'ordre de 150 cm/h la longueur purifiée reste sensiblement la même par contre si les sources se déplacent avec des vitesses plus grandes on perd sur la longueur à purifier



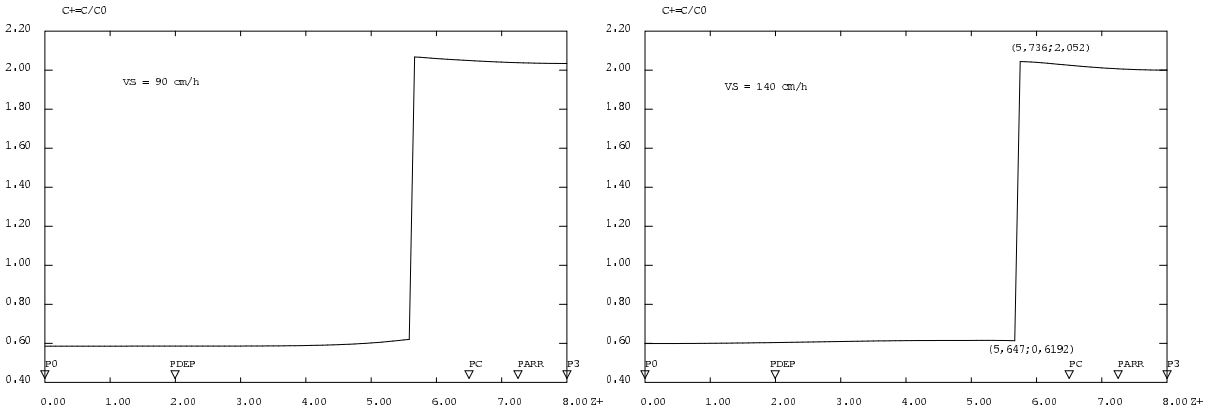
a) V_S = 30 cm/h

b) V_S = 50 cm/h



c) V_S = 60 cm/h

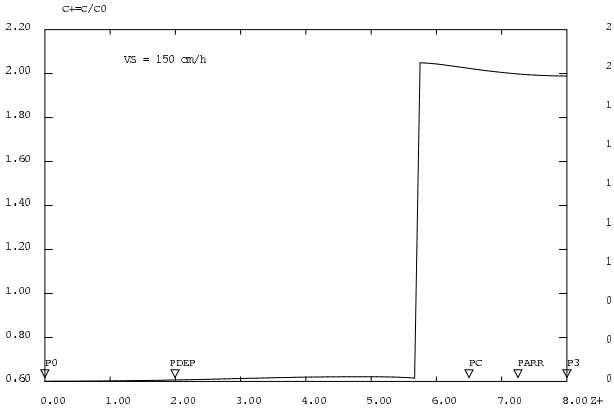
d) V_S = 70 cm/h



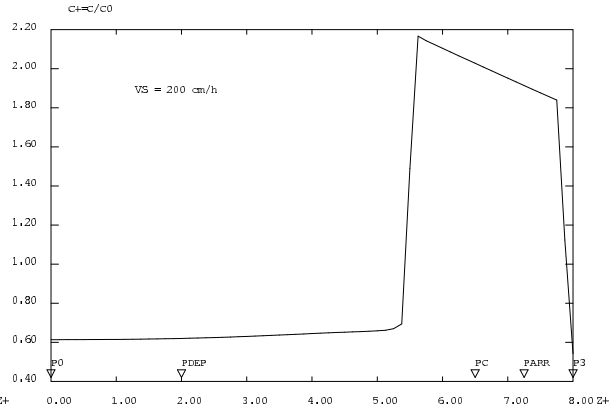
e) V_S = 90 cm/h

f) V_S = 140 cm/h

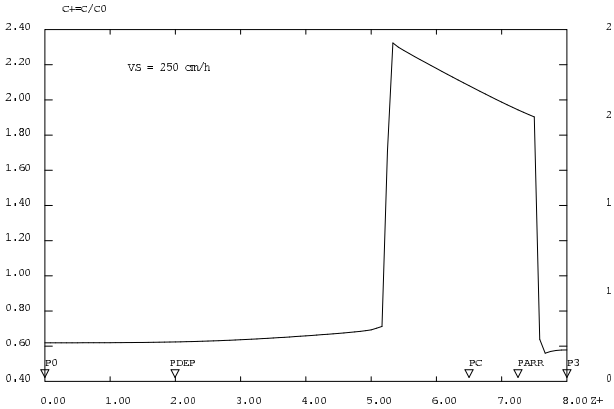
Figure 6.14 : Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement



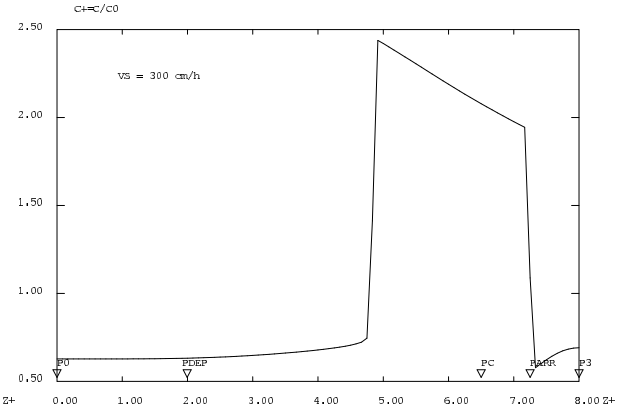
g) V_S = 150 cm/h



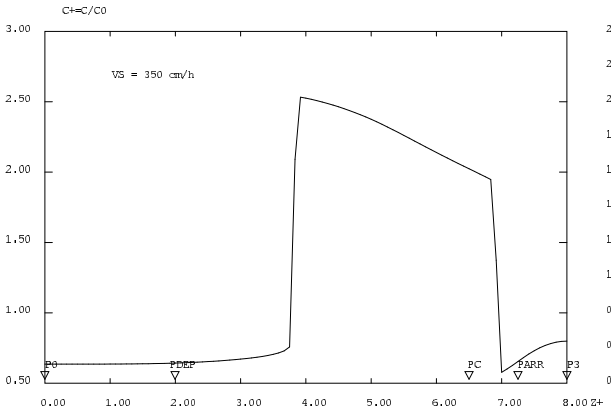
h) V_S = 200 cm/h



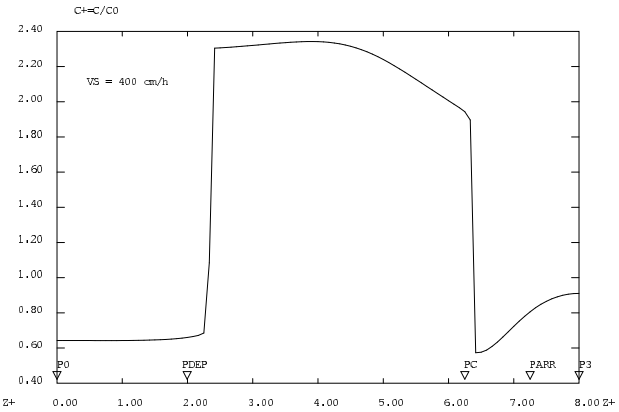
i) V_S = 250 cm/h



j) V_S = 300 cm/h



k) V_S = 350 cm/h



ℓ) V_S = 400 cm/h

Figure 6.15 : Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement des sources de chauffage et de refroidissement

6.2.1.3 Conclusion

La longueur purifiée dépend de plusieurs facteurs : la géométrie du barreau, les conditions de chauffage, les conditions de refroidissement et les paramètres liés au processus. La vitesse de translation des sources est l'une des paramètres la plus importante. Pour une dimension du barreau fixée et des conditions données, Il existe une fourchette des vitesses pour laquelle un résultat de purification est observé. Une vitesse lente permet d'avoir une longueur purifiée meilleure qu'une vitesse rapide par contre nécessite plus d'énergie pour la réalisation de ce processus.

6. 2.2 Cas où les deux densités de flux sont différentes ($q_c^+ > -q_f^+$) ; $q_f^+ < 0$

Dans cette partie de ce chapitre nous allons étudier l'effet de la vitesse de déplacement lorsque on applique deux intensités de flux, chaux et froid différentes avec toutefois un flux de refroidissement inférieur à celui de chauffage. Nous prenons par exemple ($q_c^+ = -1.1\, q_f^+$) avec $q_f^+ < 0$

6.2.2.1 Données pour la simulation

Les données de l'étude précédente sont maintenues, nous allons donc modifier uniquement les conditions de chauffage et de refroidissement. De même le maillage, le pas de temps et les pas d'espaces restent inchangés dans toute l'étude. Le tableau 6.3 fait l'état de modification par rapport à l'étude précédente.

$Lewl$	$\tilde{d}$	$\tilde{c}$	q_c^+	q_f^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	Δz^+
1	10	1	0.3	-0.2727	0.99928	1/k	1	1

Tableau 6.3: Données pour la simulation du cas ($q_c^+ = -1.1\, q_f^+$) avec $q_f^+ < 0$

6.2.2.2 Résultats de l'étude

L'étude a été réalisée avec une gamme de 6 vitesses allant de 80 cm/h à 200 cm/h. De la même manière que l'étude précédente. Les 6 cas de vitesses ont été simulés dans les mêmes conditions et avec le même maillage. Par cette étude, nous essayons de dégager l'effet de la vitesse sur les grandeurs thermiques et massiques et sur le drainage des impuretés, lorsque on utilise une source de refroidissement de puissance inférieure à celle de la source de chauffage. Nous avons relevé les valeurs de certaines grandeurs thermiques et massiques aux différents points du barreau. En exploitant Ces résultats on pourra tracer au point (PDEP) la tendance sur le processus de purification. Le tableau 6.4 résume l'ensemble des résultats de cette étude.

Vs Cm/h	Nombre d'itérations sur le temps j	T^{+}_{PTR}	T^{+}_{PC}	T^{+}_{P0}	T^{+}_{P3}	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T^{+}_{PDEP}	C^{+}_{PDEP}	C^{+}_{PARR}
80	321704	1.6946	1.5715	0.9900	1.6849	1	1	0.9948	0.5014	1.5061
100	257366	1.6670	1.5439	0.9712	1.6574	1	1	0.9783	0.5316	1.6168
120	214472	1.6384	1.5152	0.9499	1.6212	1	1	0.9602	0.5506	1.6888
160	160864	1.5423	1.4198	0.9482	1.4972	1	1	0.9537	0.5749	1.7558
170	151392	1.5074	1.3842	0.9533	1.4466	1	1	0.9577	0.5791	1.7551
200	128683	1.3576	1.2339	0.9695	1.2028	1	1	0.9733	0.5890	1.6834

Tableau 6.4 : Résultats de la purification : Effet de la vitesse de déplacement cas où (q^{+}_{c}=-1.1 q^{+}_{f}) avec q^{+}_{f} <0

6.2.2.2.1 Effet de la vitesse de déplacement sur la purification : cas où (q^{+}_{c}=-1.1 q^{+}_{f}) avec q^{+}_{f} <0

Les résultats du tableau 6.4 permettent de tracer la tendance de la purification sous l'effet de la vitesse de déplacement des sources au point (PDEP). Ces résultats ont été relevés dans les mêmes conditions et après chaque passage des sources. La figure 6.16 montre cette tendance qui est différente de celle de l'étude précédente. La concentration au point (PDEP) varie avec la vitesse d'une façon monotone et la purification diminue avec la vitesse de déplacement des sources.

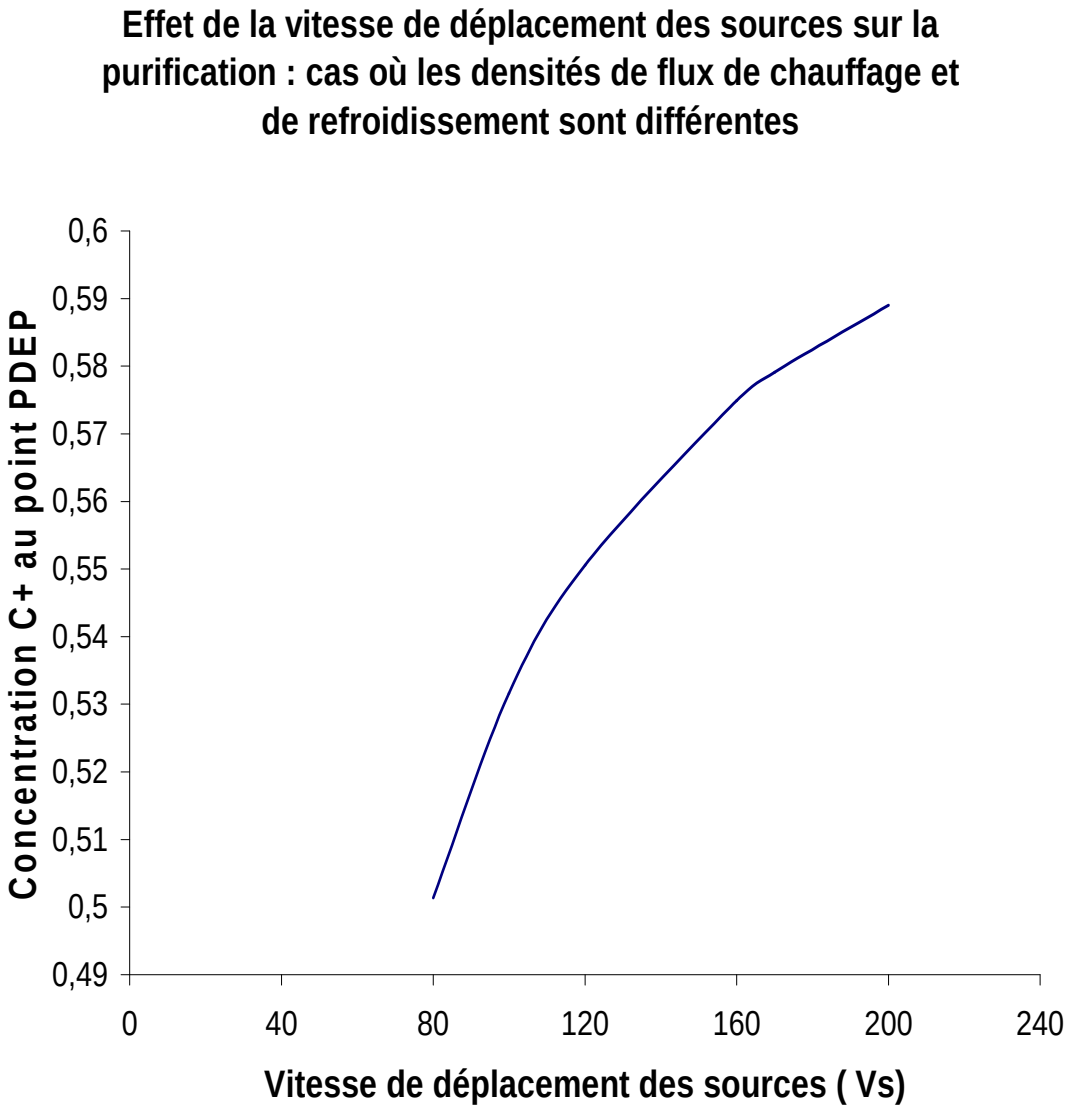


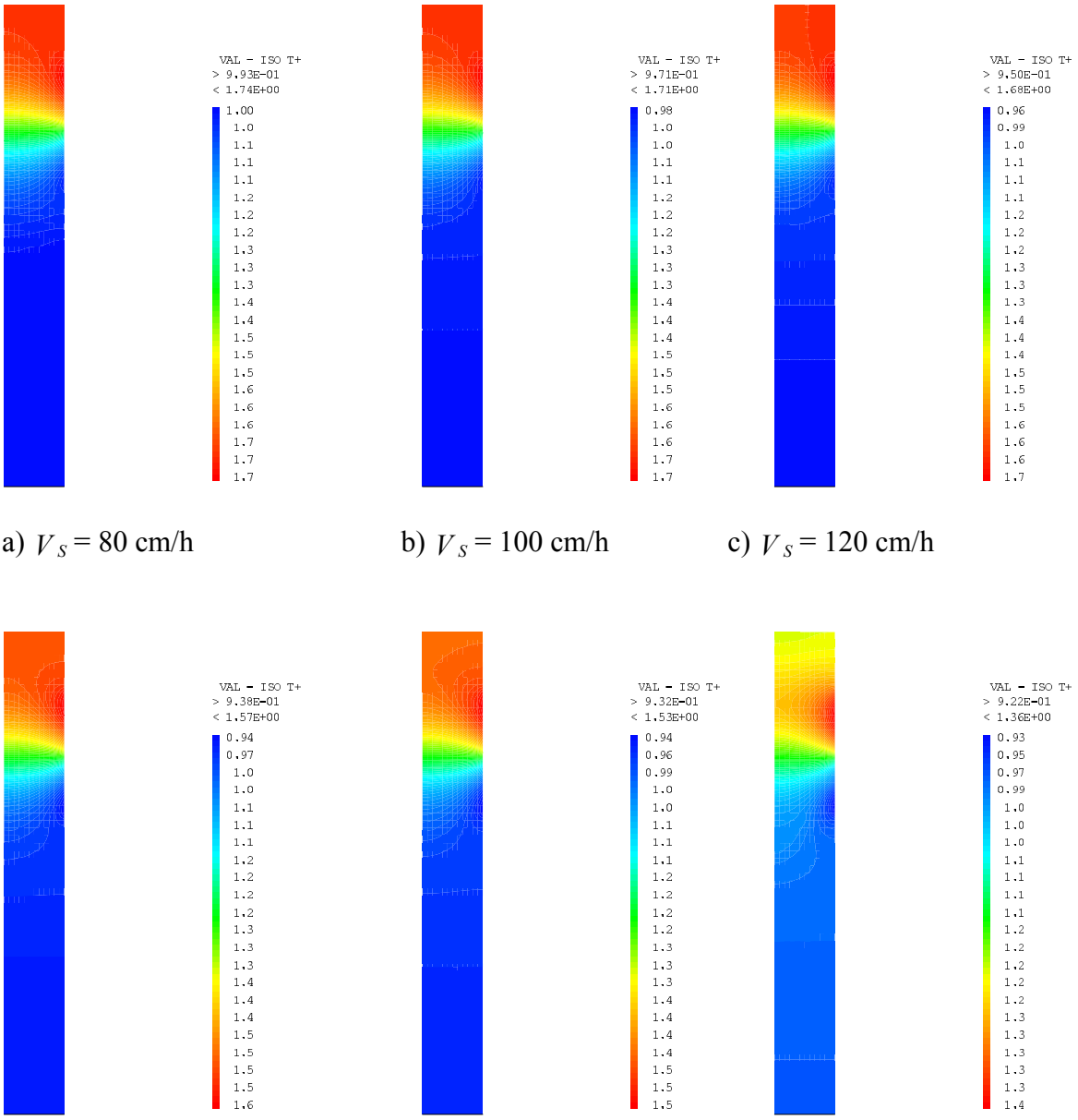
Figure 6.16 : Effet de la vitesse de déplacement sur la purification : cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+ <0

6.2.2.2.2 Effet de la vitesse de déplacement sur le champ de température : cas où q_c^+=-1.1 q_f^+ ; avec q_f^+ <0

Les résultats du tableau 6.4 montrent qu'avec les conditions de chauffage et de refroidissement prises dans cette étude, le barreau chauffe plus que dans le cas précédemment étudié. Les températures aux points (PTR et PC) situés dans la même section transversale du barreau et qui sont respectivement sur la paroi et sur l'axe du barreau (points liés fictivement à la position de la source de chauffage mobile) sont plus élevées et leur tendance sont à la baisse avec l'augmentation de la vitesse de déplacement.

6.2.2.2.2.1 Isovaleurs de température

La figure 6.17 montre les isovaleurs de température tracées pour différentes vitesses de translation des sources. L'effet combiné de la vitesse et d'une densité de flux de refroidissement (plus petite que celle de chauffage), sur la distribution de la température, fait que, le retard entre le cœur et la paroi du cylindre s'accentue et par suite le front de solidification se déforme d'avantage.



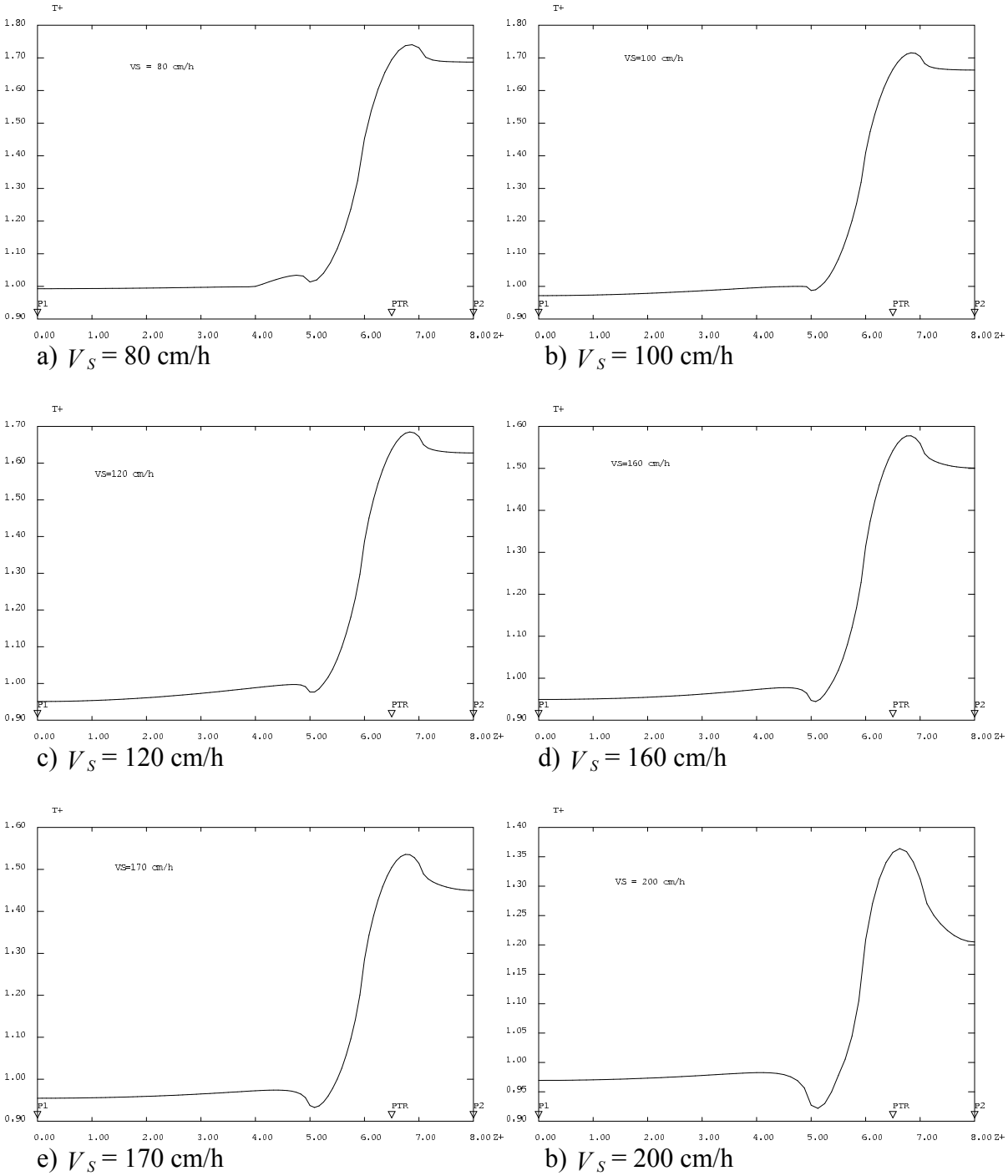
a) V_S = 80 cm/h b) V_S = 100 cm/h c) V_S = 120 cm/h

d) V_S = 160 cm/h e) V_S = 170 cm/h f) V_S = 200 cm/h

Figure 6.17 : Isovaleurs de température T^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement cas où q_c^+=-1.1 q_f^+ avec q_f^+ <0

6.2.2.2.2.2 Profils de température sur la paroi du barreau

La distribution de la température le long de la paroi dépend de la vitesse de translation des sources. Plus cette vitesse est élevée et plus la température est faible, par contre on constate que dans la partie solidifiée après le passage des sources, la température a tendance à augmenter pour des vitesses supérieures à environ 170 cm/h. En effet l'énergie déposée et la chaleur extraite diminuent avec la vitesse, et à partir d'une vitesse bien déterminée la source de refroidissement n'extrait pas assez de chaleur de la portion qui est en train de se solidifier.



a) V_S = 80 cm/h b) V_S = 100 cm/h

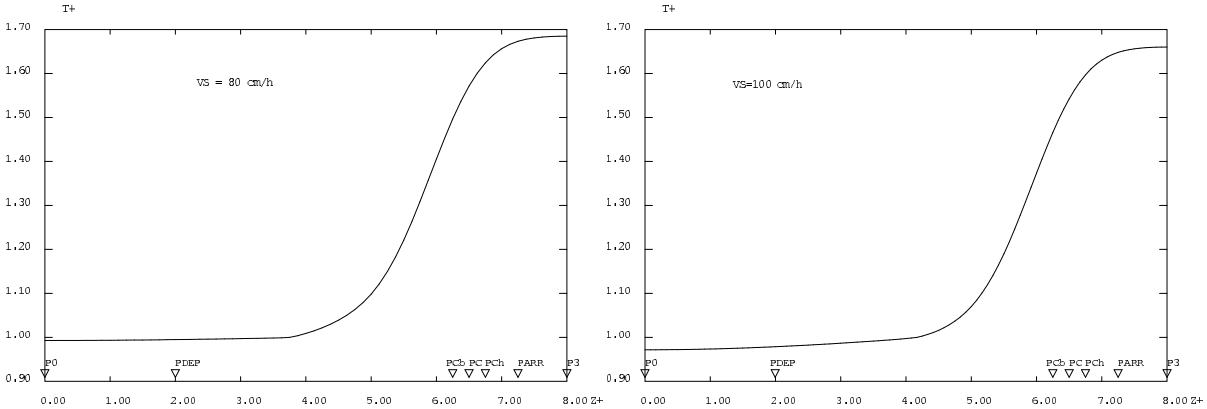
c) V_S = 120 cm/h d) V_S = 160 cm/h

e) V_S = 170 cm/h b) V_S = 200 cm/h

Figure 6.18 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement ; cas où $q_c^+ = -1.1\, q_f^+$ *avec* $q_f^+ < 0$

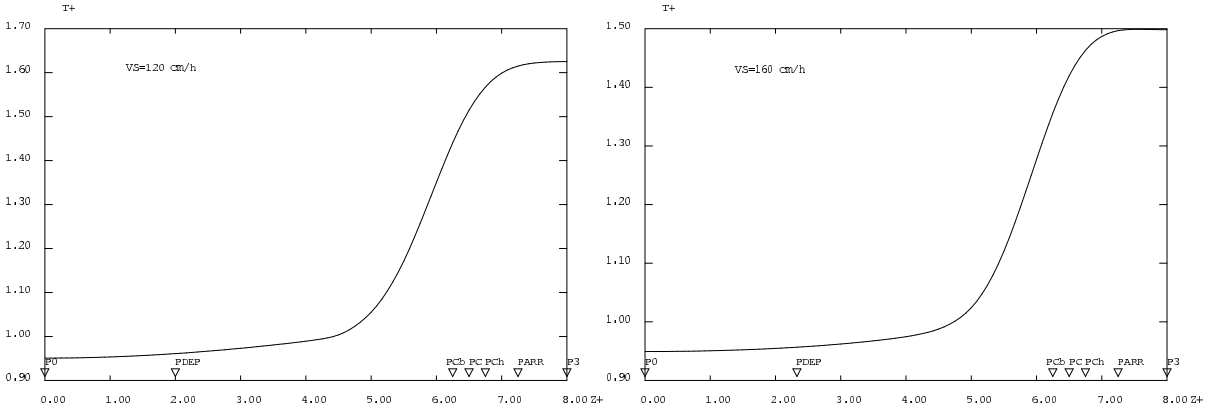
6.2.2.2.2.3 Profils de température sur l'axe du barreau

L'effet de la vitesse sur l'axe du barreau est similaire à celui sur la paroi. Pour la vitesse de 200 cm/h on observe une zone de remontée de température due à un effet de retard du cœur par rapport à la paroi et le front de solidification a tendance à se déformer d'avantage avec l'augmentation de la vitesse de déplacement des sources.



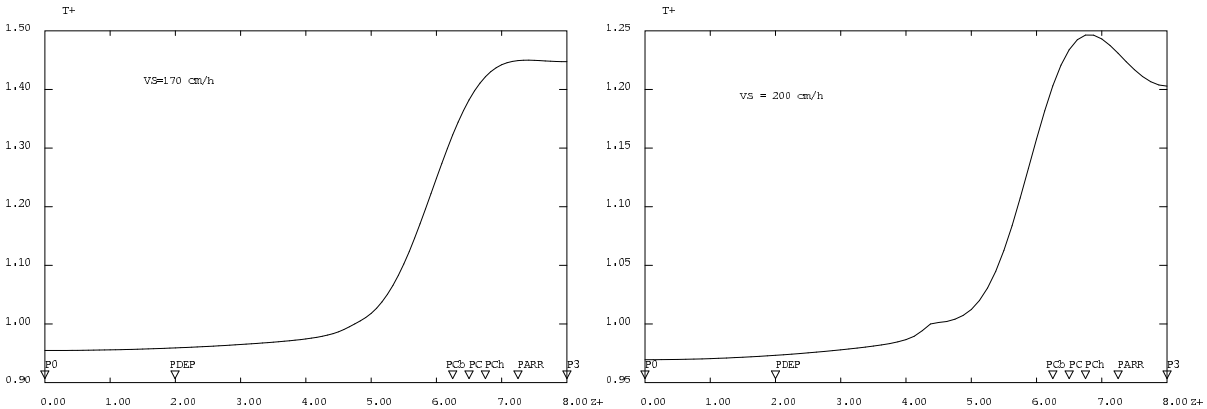
a) V_S = 80 cm/h

b) V_S = 100 cm/h



c) V_S = 120 cm/h

d) V_S = 160 cm/h



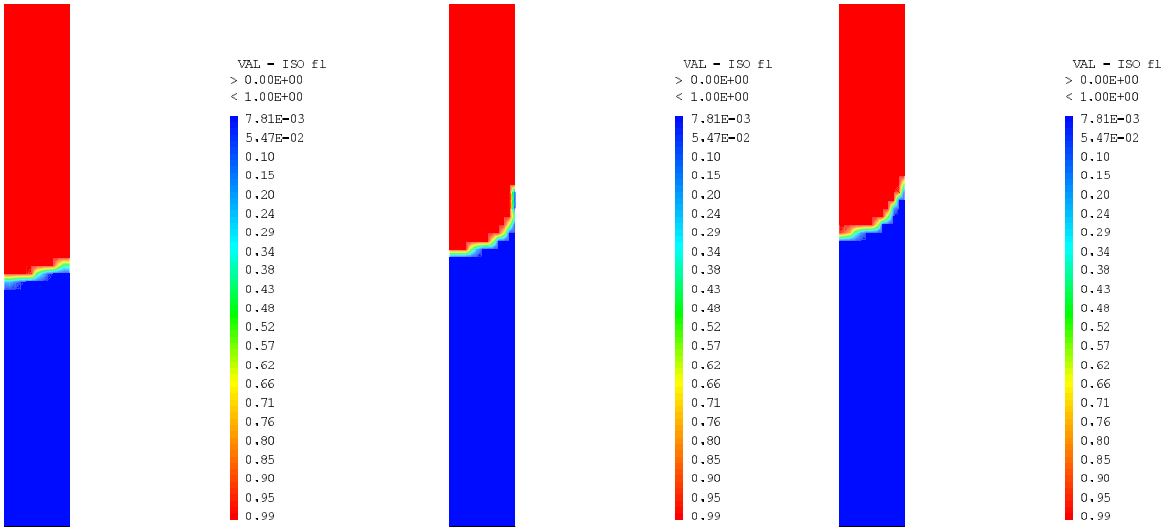
e) V_S = 170 cm/h

b) V_S = 200 cm/h

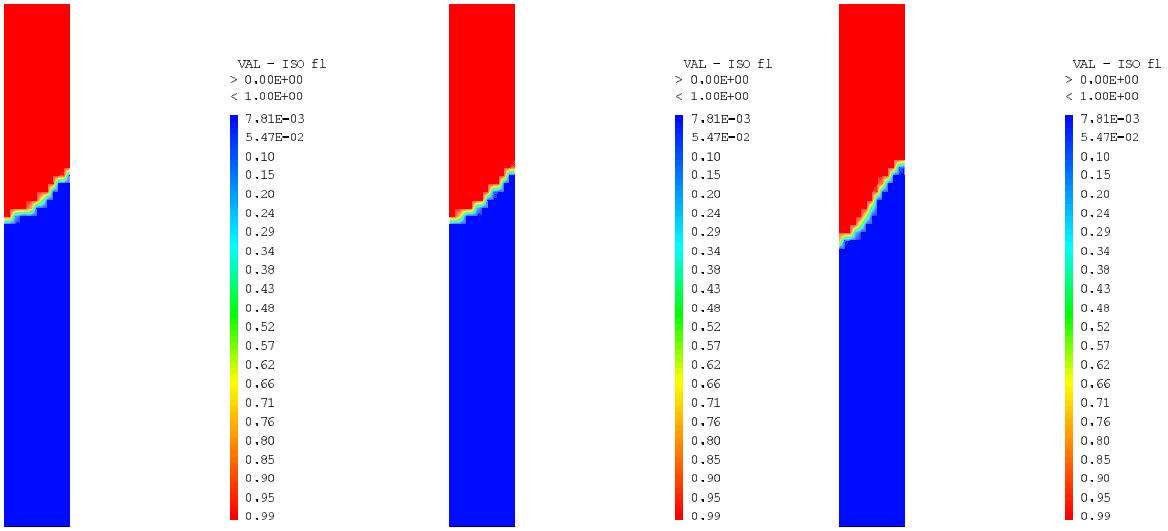
Figure 6.19 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement ; cas où $q_c^+ = -1.1\, q_f^+$ *avec* $q_f^+ < 0$

6.2.2.2.3 Effet de la vitesse de déplacement sur la zone fondue : cas où ($q_c^+ = -1.1\, q_f^+$) *avec* $q_f^+ < 0$

La forme de la zone fondue et le front de solidification paraissent plus affectés que dans l'étude précédente. Le flux de chauffage plus important que le flux de refroidissement envahie le cœur du barreau et le maintient en fusion, ce qui entraîne la déformation du front de solidification (paroi et cœur ne se suivent pas). Ajoutons à ceci l'effet de vitesse qui va dans le même sens. Ces effets bidimensionnels influent directement sur la distribution de l'impureté et donc sur la longueur à purifier ainsi que sur le degré de purification dans le barreau.



a) V_S = 80 cm/h b) V_S = 100 cm/h c) V_S = 120 cm/h



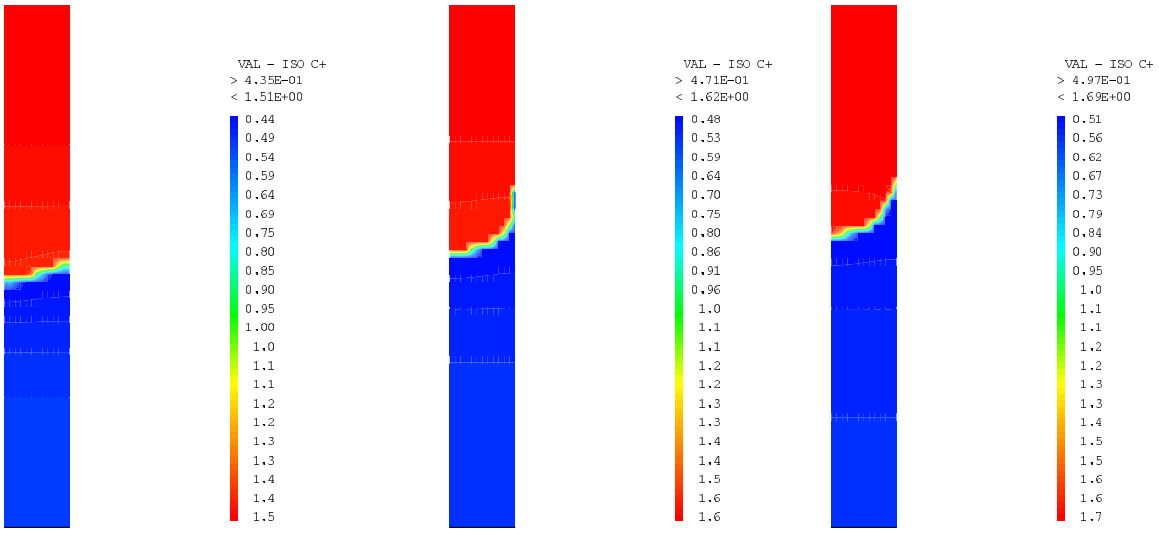
d) V_S = 160 cm/h e) V_S = 170 cm/h f) V_S = 200 cm/h

Figure 6.20 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différentes vitesses de déplacement ; cas où $q_c^+ = -1.1\, q_f^+$ *avec* $q_f^+ < 0$

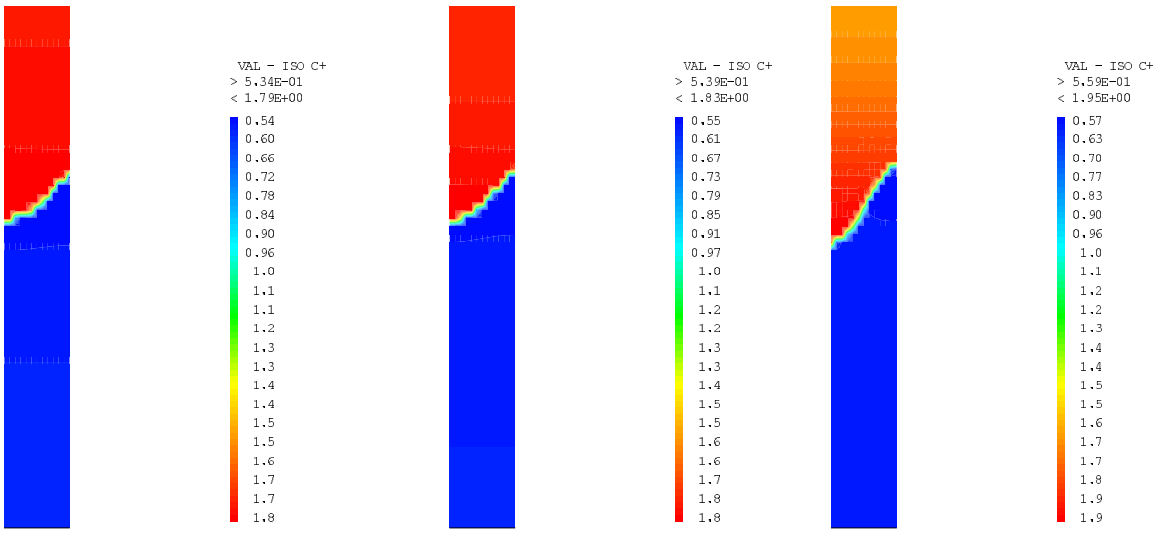
6.2.2.2.4 Effet de la vitesse de déplacement sur le champ de concentration : cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+<0

6.2.2.2.4.1 Isovaleurs de concentration

Les mêmes effets sur la zone fondue se répercutent sur le champ de concentration, ce qui est parfaitement normal, puisque l'interface solide/liquide (forme du front) conditionne le drainage des impuretés. Les isovaleurs de concentration figure 6.21 montrent bien l'influence de la vitesse combinée avec l'effet de l'intensité de la source de refroidissement sur ces dernières.



a) V_S = 80 cm/h b) V_S = 100 cm/h c) V_S = 120 cm/h

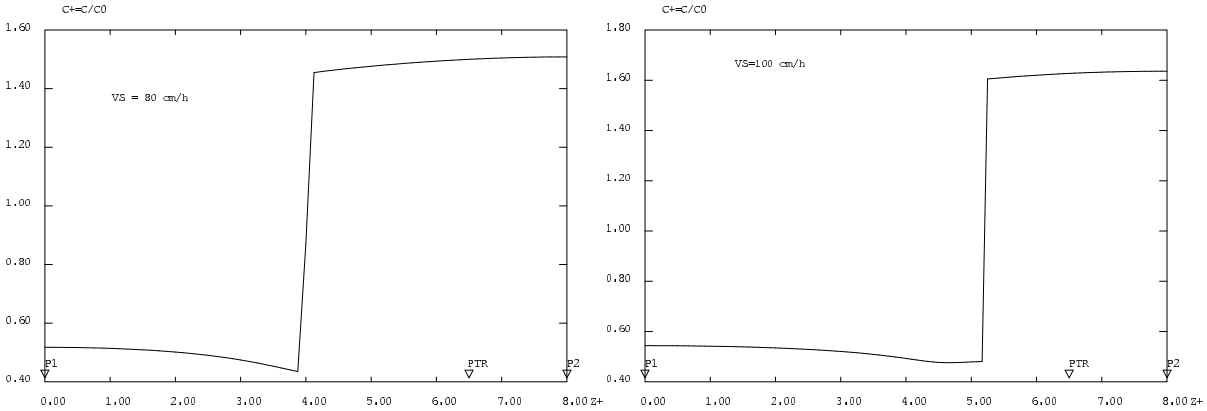


d) V_S = 160 cm/h e) V_S = 170 cm/h f) V_S = 200 cm/h

Figure 6.21 : Isovaleurs de concentration C^+ dans le barreau à différentes vitesses de déplacement cas où q_c^+= -1.1 q_f^+ avec q_f^+ <0

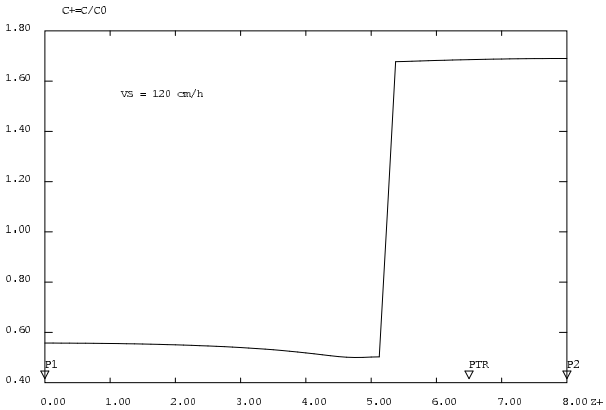
6.2.2.2.4.2 Profils de concentration le long de la paroi du barreau : cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+<0

Sur la paroi du barreau, les profils de concentration montrent que plus la vitesse de déplacement est grande et plus la longueur purifiée est meilleure. Ceci reste bien entendu dans la gamme de vitesses choisie. En effet la source de refroidissement qui sollicite en premier, la peau du barreau, déjà en fusion permet à celle-ci de se solidifier plus rapidement, alors que le cœur du barreau, avec l'inertie thermique est encore en fusion.

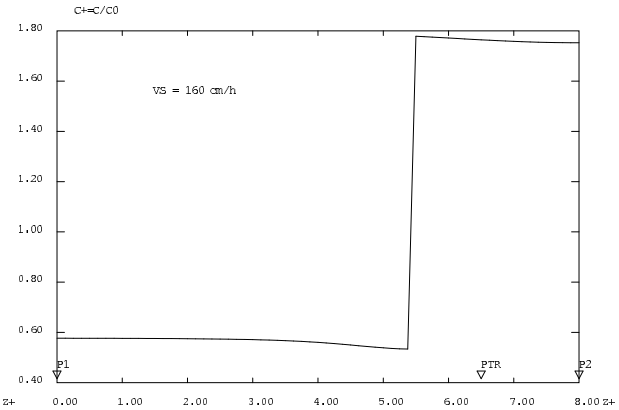


a) V_S = 80 cm/h

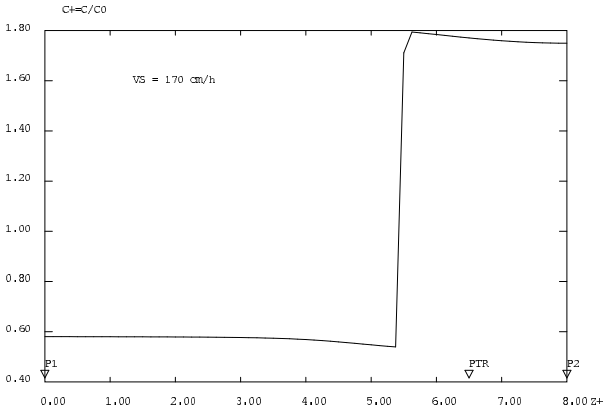
b) V_S = 100 cm/h



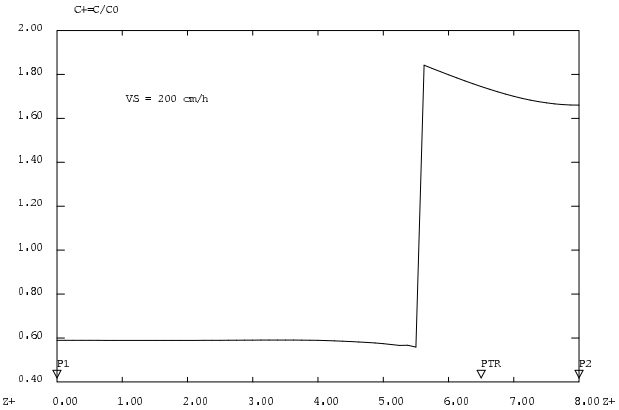
c) V_S = 120 cm/h



d) V_S = 160 cm/h



e) V_S = 170 cm/h

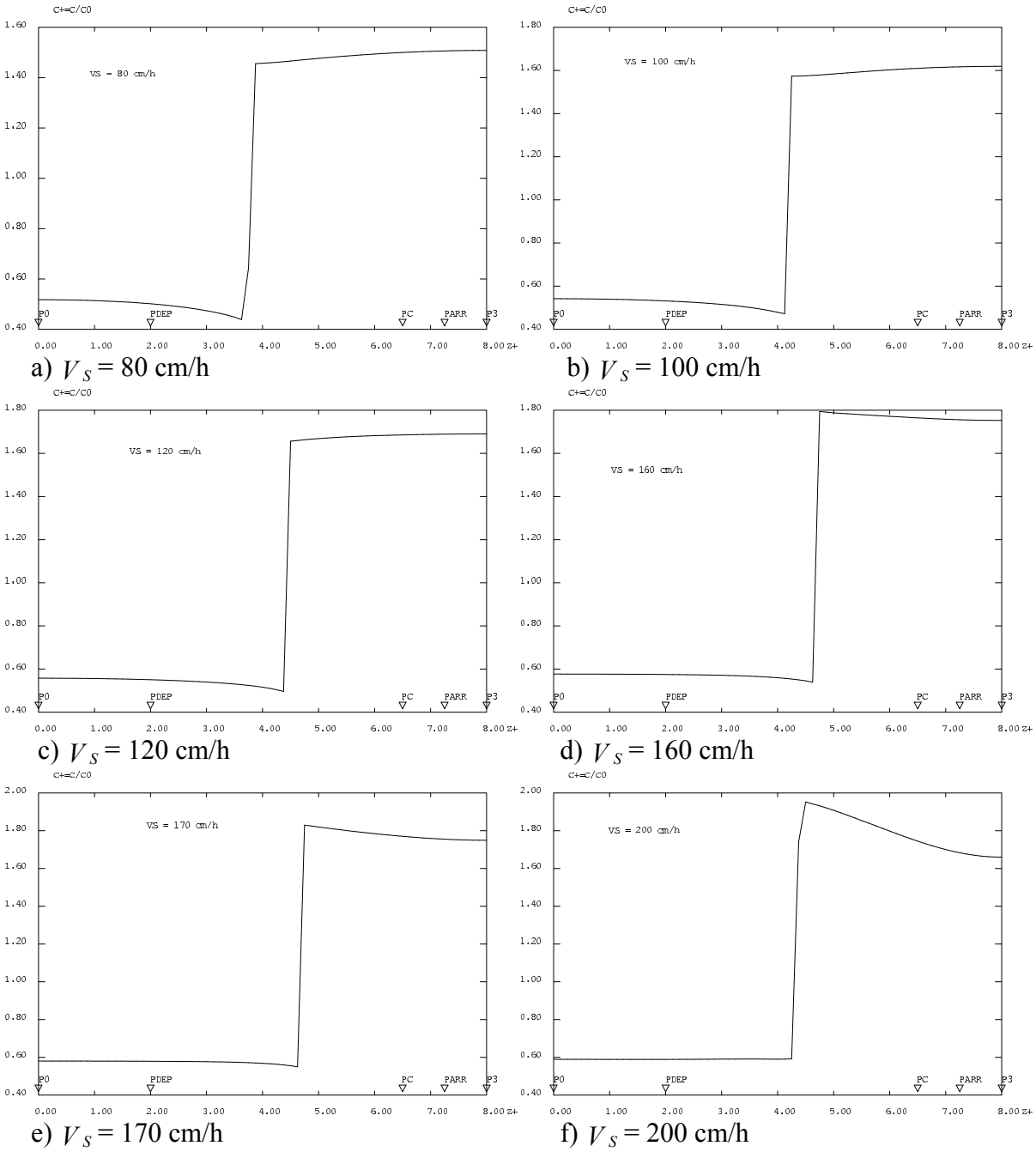


f) V_S = 200 cm/h

Figure 6.22 : Profils de concentration C^+ le long de la paroi du barreau à différentes vitesses de déplacement cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+<0

6.2.2.2.4.3 Profils de concentration le long de l'axe du barreau : cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+<0

Sur l'axe du barreau, l'effet de la vitesse sur les profils de concentration est le même que sur la paroi, par contre on observe sur la figure 6.23.f (vitesse de simulation 200 cm/h) que l'effet est inversé et que la concentration dans la partie solidifiée est presque constante. La longueur purifiée est plus petite que celle observée sur la paroi. Pour des vitesses supérieures à 200 cm/h, les profils de concentration reprennent les mêmes allures que dans le cas de la figure 6.15.



a) V_S = 80 cm/h b) V_S = 100 cm/h

c) V_S = 120 cm/h d) V_S = 160 cm/h

e) V_S = 170 cm/h f) V_S = 200 cm/h

Figure 6.23: Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différentes vitesses de déplacement ; cas où (q_c^+=-1.1 q_f^+) avec q_f^+<0

6.2.3 Conclusion : Choix des puissances de sources et vitesse de déplacement

Une source de refroidissement de puissance inférieure à celle de la source de chauffage améliore relativement la purification sur une longueur du barreau plus au moins courte. Mais cette longueur reste toujours inférieure à celle obtenue si les deux sources sont de mêmes puissances. Lorsque au cours du processus de déplacement les deux sources de chauffage et de refroidissement fournissent des puissances différentes, il se déclenche à partir d'une certaine vitesse une sorte de zone de traînée à l'intérieur du barreau, due à la déformation du front de solidification. Cette zone reste en fusion ce qui engendre un gradient de concentration transversal dans le barreau. Il est clair que cette zone de traînée dépend de plusieurs grandeurs dont la vitesse de déplacement, les puissances de chauffage et de refroidissement mises en jeu, le rayon du barreau et enfin les propriétés du matériau.
Compte tenu des points soulevés ci-dessus nous choisissons pour l'étude qui suivra, une source de refroidissement de puissance égale à celle de la source de chauffage.

En ce qui concerne le choix de la vitesse à adopter, la première étude dans ce présent chapitre a montré qu'en appliquant la même intensité de flux (chauffage et refroidissement), on purifie une longueur légèrement supérieure à celle obtenue par deux sources de puissances différentes. Une petite vitesse favorise la purification par contre nécessite une énergie mise en jeu dans ce processus plus importante. Du point de vue numérique, une vitesse lente augmente le temps de calcul. C'est dans cet esprit qu'un choix de vitesse de déplacement de 150 cm/h sera adopté pour la suite de l'étude. Ce choix est fait de manière à gagner sur le temps de calculs numériques et avoir en même temps une purification dans le barreau jugée satisfaisante.

6.3 Effet de l'intensité de flux sur les champs de température et de concentration

Par cette étude, nous allons mettre en évidence l'influence de l'intensité de chauffage sur la purification. La vitesse de travail adoptée est V_S = 150 cm/h. L'intensité de flux de refroidissement est égale à l'intensité de flux de chauffage ($q^+ = q_f^+ = -q_c^+$; $q_c^+ > 0$). Nous avons choisi pour cette étude une gamme comprenant 5 densités de flux. Le maillage, le pas de temps, les pas d'espaces et toutes les données sont maintenus.

6. 3.1 Données pour la simulation

Les données pour cette étude sont dans le tableau 6.5 suivant :

$Lewl$	$\tilde{d}$	$\tilde{c}$	V_S cm/h	T_i^+	U_i^+	C_i^+	Δz^+
1	10	1	150	0.99928	1/k	1	1

Tableau 6.5: Données de la simulation V_S = 150 cm/h

6.3.2 Résultats de l'étude

L'étude a été menée avec une gamme de 5 densités de flux : [0.2 ; 0.3 ; 0.4 ; 0.5 ; 1]. Les 5 cas ont été simulés dans les mêmes conditions et avec le même maillage. Nous allons observer l'effet de l'intensité de flux (q^+) sur le processus de purification lorsque la vitesse de déplacement des sources est la même pour tous les cas simulés. Nous avons relevé les valeurs de certaines grandeurs thermiques et massiques aux différents points du barreau. En exploitant ces résultats on pourra tracer au point (PDEP), la tendance sur le processus de purification. Le tableau 6.6 résume l'ensemble de cette étude.

q^+	Nombre d'itérations sur le temps j	T^+_{PTR}	T^+_{PC}	T^+_{P0}	T^+_{P3}	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T^+_{PDEP}	C^+_{PDEP}	C^+_{PARR}
0.2	171577	1.1758	1.0938	0.8979	0.9986	0	1	0.8983	0.6197	2.0118
0.3	171577	1.3525	1.2229	0.7730	1.3020	1	1	0.7745	0.6063	1.9983
0.4	171577	1.5496	1.3870	0.6583	1.5200	1	1	0.6683	0.5953	1.9917
0.5	171577	1.7283	1.5244	0.5637	1.6980	1	1	0.5854	0.5882	1.9815
1	171577	2.5074	2.1739	0.2223	2.5480	1	1	0.2681	0.5583	1.9924

Tableau 6.6 : Résultats de la purification : Effet de l'intensité de flux : V_S = 150 cm/h

6.3.2.1 Effet de l'intensité de flux (q^+) sur la purification : V_S = 150 cm/h

Plus l'intensité de flux est importante et plus la purification est meilleure. Cette tendance doit être prise sous réserve que la température en tout point ne dépasse pas une certaine limite compatible avec le comportement thermique du matériau à purifier.

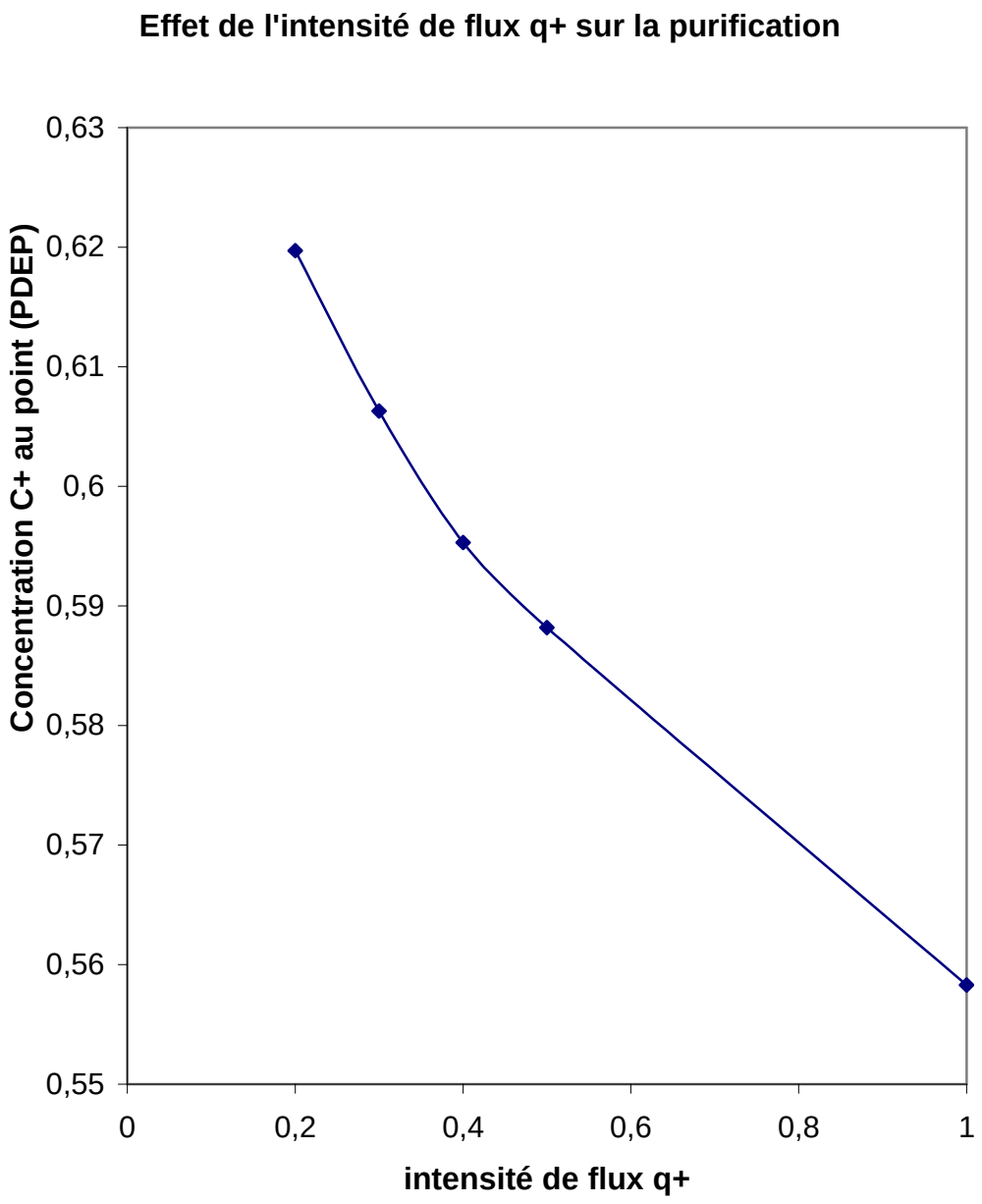


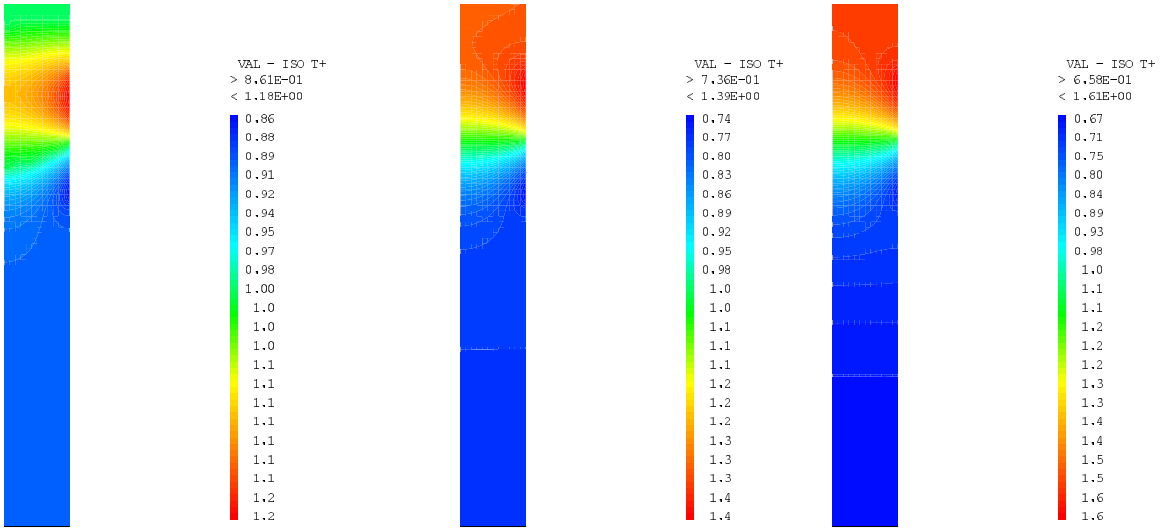
Figure 6.24 : Effet de l'intensité de flux q^+ sur la purification : V_S = 150 cm/h

6.3.2.2 Effet de l'intensité de flux sur le champ de température

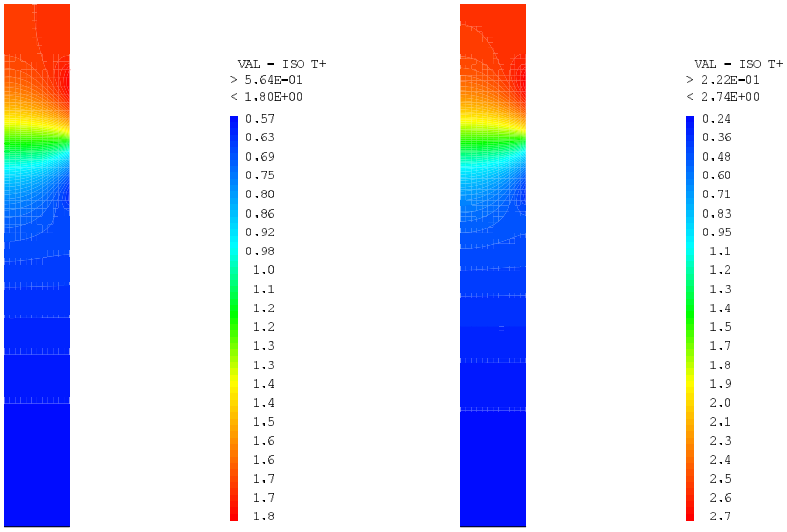
À une vitesse de déplacement fixée, plus l'intensité de flux de chauffage respectivement de refroidissement est importante et plus le barreau chauffe au niveau de la source de chauffage et se refroidit au niveau de la source de refroidissement.

6.3.2.2.1 Isovaleurs de température

La figure 6.25 montre l'effet de l'intensité de flux sur les isovaleurs de température. Pour l'intensité q^+=0.2, l'extrémité au niveau queue du barreau reste après l'arrêt en déplacement des sources, à l'état solide, par contre pour les autres intensités la chaleur diffuse plus rapidement dans le barreau et l'extrémité en question se trouve à l'état liquide et à température plus élevée.



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$ c) $q^+ = 0.4$

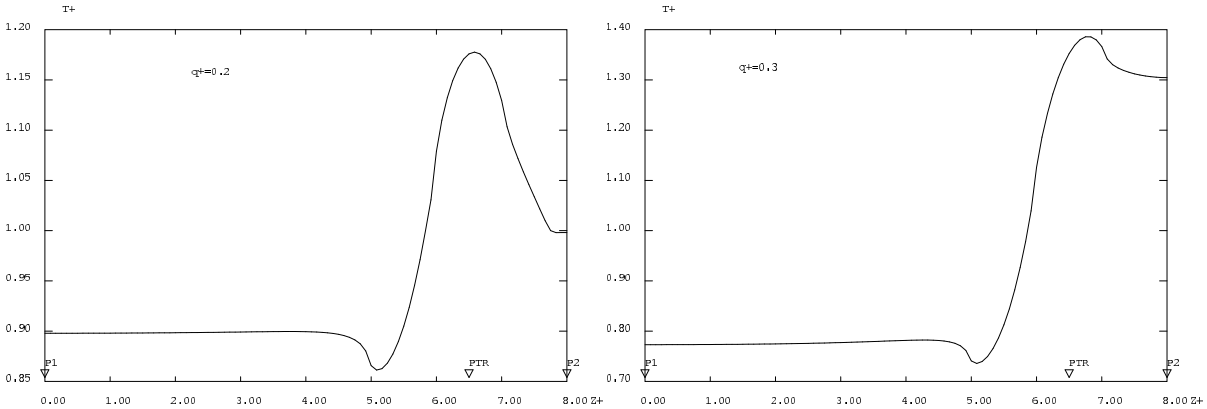


d) $q^+ = 0.5$ e) $q^+ = 1$

Figure 6.25 : Isovaleurs de température T^+ dans le barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

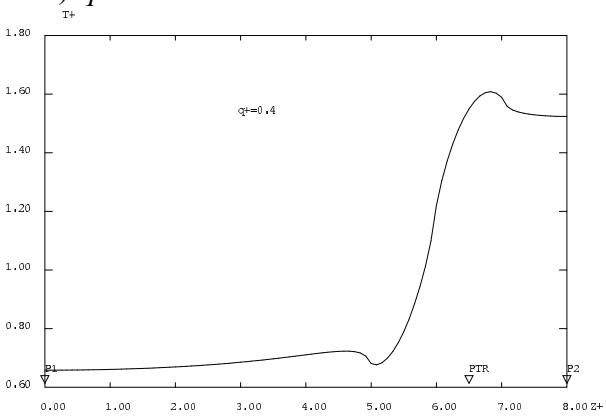
6.3.2.2.2 Profils de température le long de la paroi du barreau

Dans la partie solidifiée, le gradient de température le long de la paroi augmente avec l'intensité de flux q^+, par contre la température a tendance à la baisse. Dans la partie liquide, extrémité haute du barreau, la température a tendance à augmenter avec l'intensité de flux.

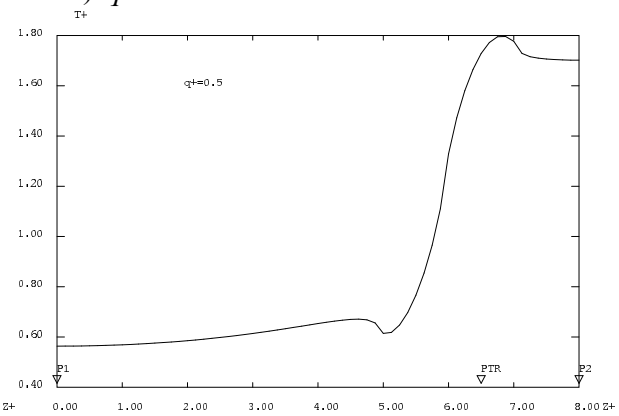


a) $q^+ = 0.2$

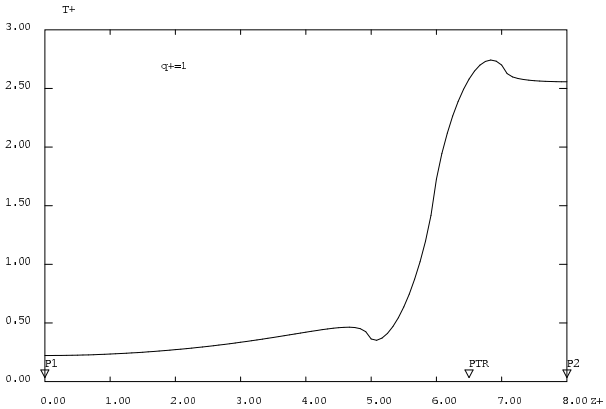
b) $q^+ = 0.3$



c) $q^+ = 0.4$



d) $q^+ = 0.5$

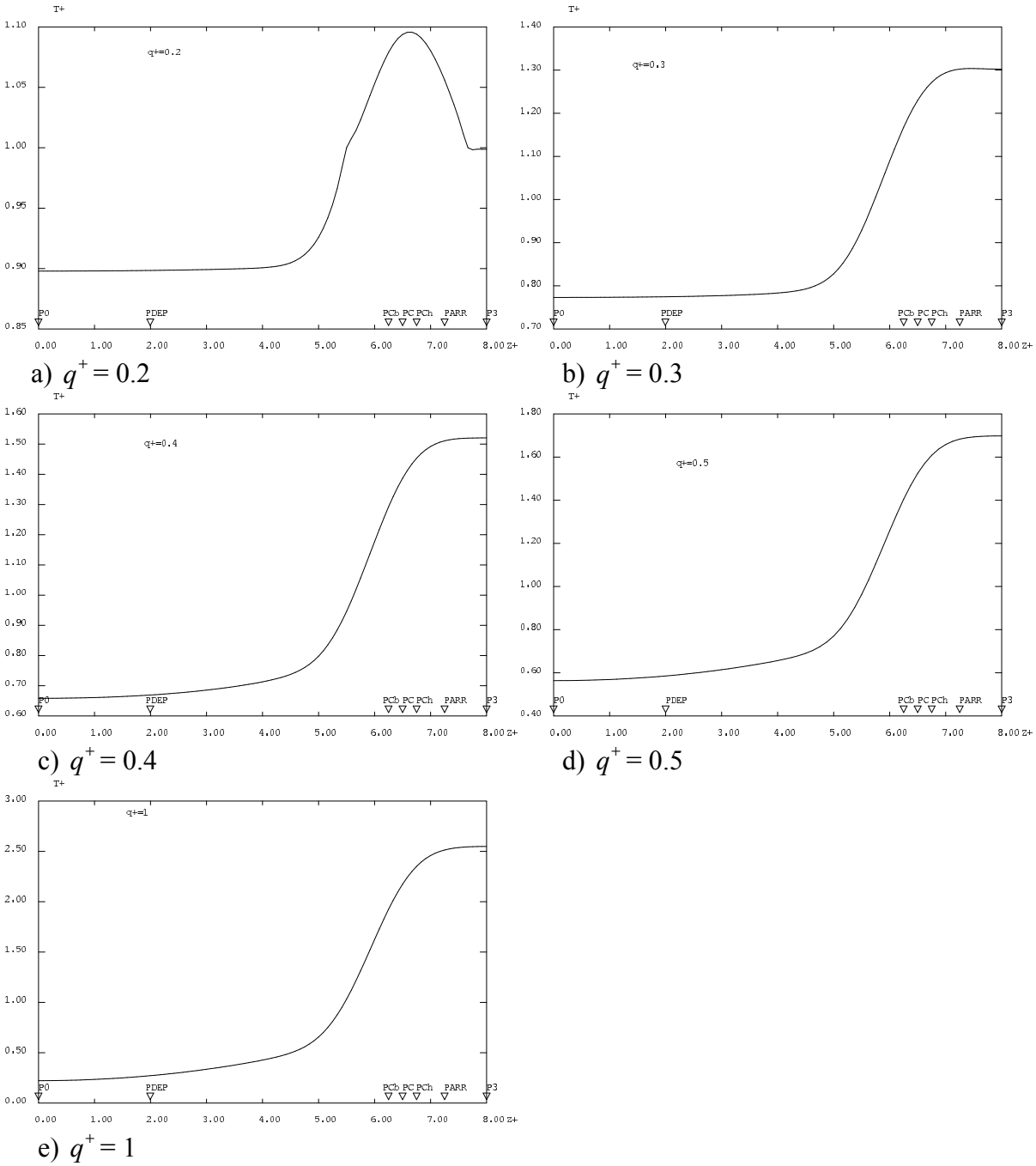


e) $q^+ = 1$

Figure 6.26 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

6.3.2.2.3 Profils de température le long de l'axe du barreau

L e comportement de l'axe du barreau sous l'effet de l'intensité de flux q^+ est presque le même que celui de la paroi. Le gradient de température le long de la paroi solidifiée augmente avec l'intensité de flux q^+ et la température est en baisse. Dans la partie liquide du barreau, la température augmente avec l'intensité de flux.



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$

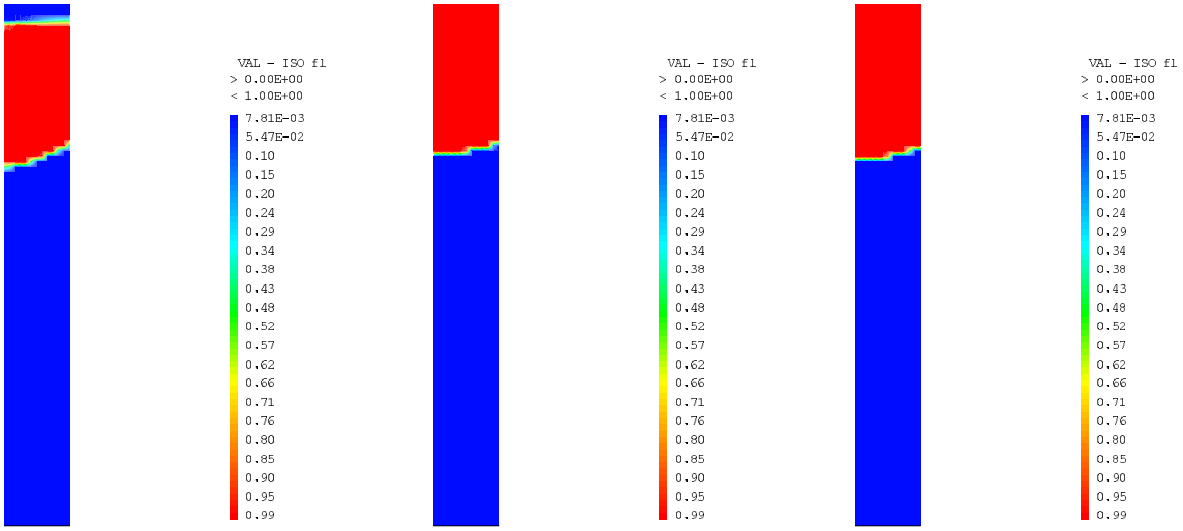
c) $q^+ = 0.4$ d) $q^+ = 0.5$

e) $q^+ = 1$

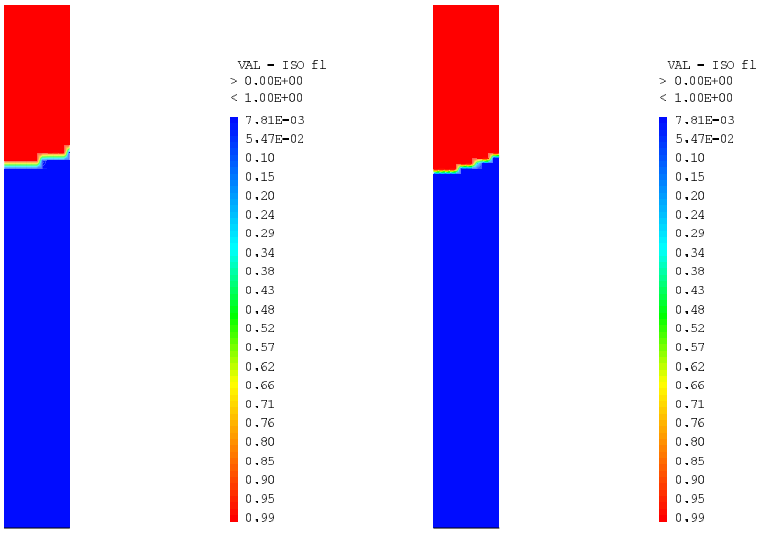
Figure 6.27 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

6.3.2.3 Effet de l'intensité de flux sur les Isovaleurs de fraction fondue

La figure 6.28 montre l'effet de l'intensité de flux sur les isovaleurs de fraction fondue et sur la forme de la zone. Plus l'intensité de flux est grande et plus la zone fondue est large.



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$ c) $q^+ = 0.4$



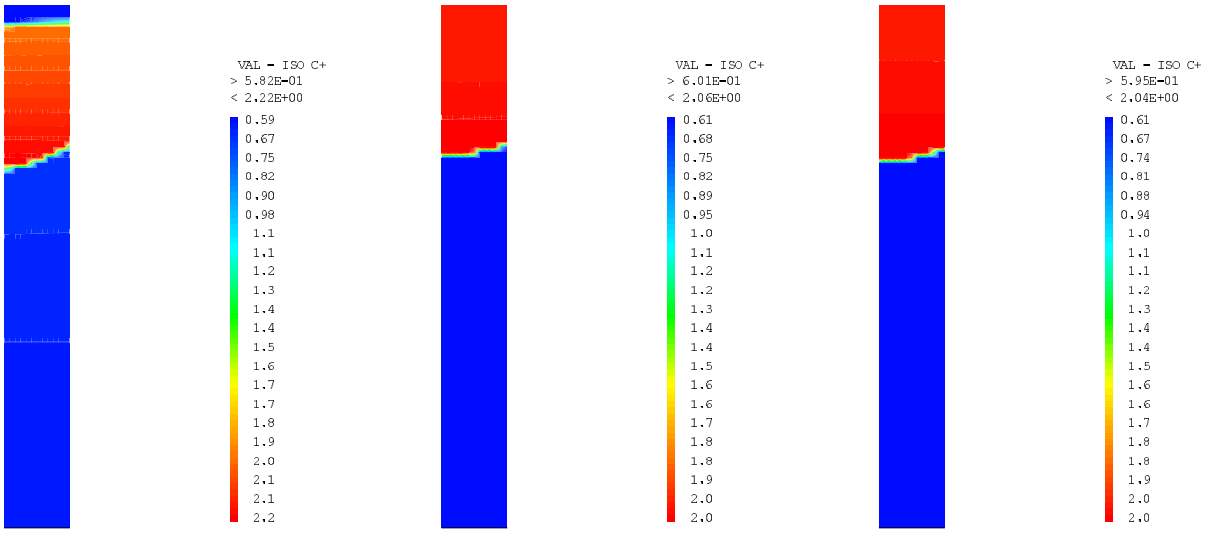
d) $q^+ = 0.5$ e) $q^+ = 1$

Figure 6.28 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

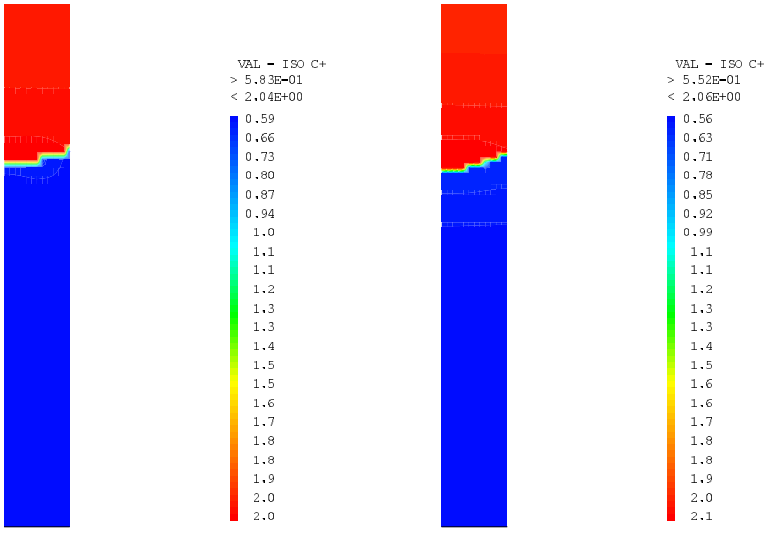
6.3.2.4 Effet de l'intensité de flux sur le champ de concentration

6.3.2.4.1 Isovaleurs de concentration

Les isovaleurs de concentration de la figure 6.29 sont en rapport étroit avec le champ thermique à travers le couplage via la fraction fondue f_l et le comportement thermique se transpose directement sur le champ de concentration.



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$ c) $q^+ = 0.4$

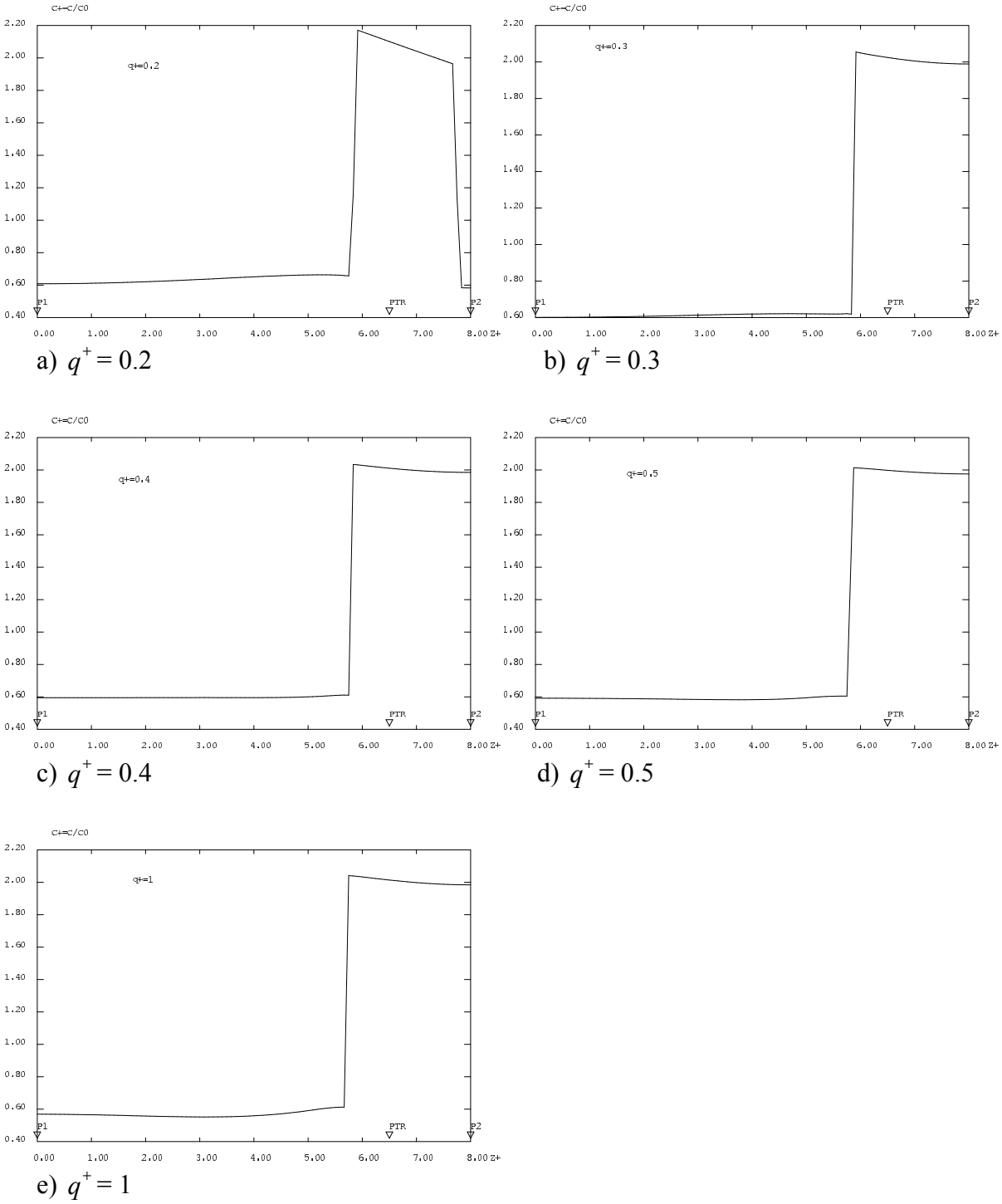


d) $q^+ = 0.5$ e) $q^+ = 1$

Figure 6.29 : Isovaleurs de concentration C^+ dans le barreau à différentes intensités de flux q^+ avec V_S = 150 cm/h.

6.3.2.4.2 Profils de concentration le long de la paroi du barreau

Les profils de concentration de la figure 6.30 mettent en évidence une nette purification quand l'intensité de flux de chauffage et de refroidissement augmente.



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$

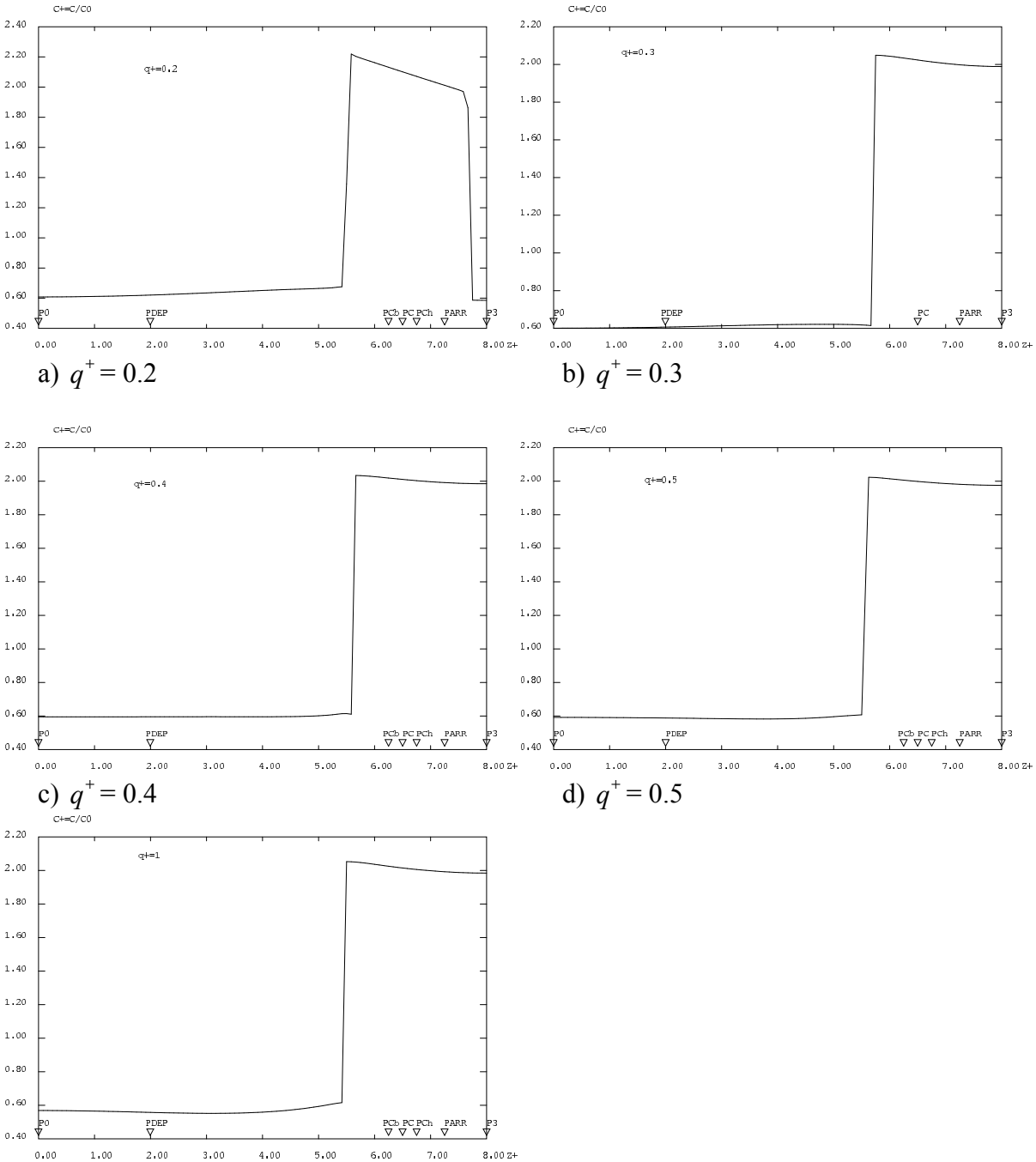
c) $q^+ = 0.4$ d) $q^+ = 0.5$

e) $q^+ = 1$

Figure 6.30 : Profils de concentration C^+ le long de la paroi du barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

6.3.2.4.3 Profils de concentration le long de l'axe du barreau

Même comportement le long de l'axe du barreau que sur la paroi. L'effet de l'intensité de flux est observable sur la figure 6.31



a) $q^+ = 0.2$ b) $q^+ = 0.3$

c) $q^+ = 0.4$ d) $q^+ = 0.5$

e) $q^+ = 1$

Figure 6.31 : Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différentes intensités de flux avec V_S = 150 cm/h.

6.3.3 Conclusion sur le choix de l'intensité de flux q^+

L'intensité de flux de chauffage et de refroidissement est une grandeur qui influe d'une façon active sur le processus de purification étudié. Une intensité faible ne permet pas d'assurer une fusion complète jusqu'au cœur du barreau lors du déplacement des sources et pour des grandes vitesses. Elle permet d'élargir la zone fondue dans la première phase de chauffage et réduit le gradient de température entre l'axe et la paroi. Une intensité peu élevée réduit la zone fondue et augmente le gradient de température entre la paroi et le cœur du barreau et améliore la purification.
Pour mettre en évidence l'effet de l'épaisseur de la tranche à fondre, nous allons procéder de la même manière que les autres grandeurs étudiées précédemment. L'intensité de flux de chauffage et de refroidissement sera fixée et adoptée pour l'étude suivante.

6.4 Effet de paramètres géométriques sur les champs de température et de concentration

6.4.1 Effet de l'épaisseur de la tranche

La largeur de la tranche à fondre Δz^+ est un facteur dont la purification en dépend. Une zone très large favorise la convection, modifie la distribution des impuretés dans le barreau et augmente sa température. Une petite tranche aura les effets contraires. Dans cette étude nous allons mettre en évidence l'influence de l'épaisseur de la tranche à fondre sur le degré de purification. Nous sélectionnons une gamme de quatre valeurs pour la variation de la l'épaisseur Δz^+ de la zone. La vitesse de translation des sources reste toujours la même que l'étude précédente V_S = 150 cm/h. L'intensité de flux de chauffage et de refroidissement choisie est 0.2 ($q^+ = q_c^+ = -q_f^+ = 0.2$). Ce choix prend en considération le comportement thermique du matériau afin de ne pas dépasser la température $(T_{fr}^+ + \Delta T^+)$ avec ΔT^+ intervalle de surfusion. Le maillage, le pas de temps, les pas d'espaces et toutes les données sont conservés.

6.4.1.1 Données pour la simulation

Les données pour cette étude sont reportées dans le tableau 6.7 suivant :

$Lewl$	$\tilde{d}$	$\tilde{c}$	V_S cm/h	T_i^+	U_i^+	C_i^+	q_c^+	q_f^+
1	10	1	150	0.99928	1/k	1	0.2	-0.2

Tableau 6.7 : Données pour la simulation : V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2

6.4.1.2 Résultats de l'étude

L'étude a été réalisée avec quatre valeurs Δz^+ : [1 ; 1.25 ; 1.4 ; 1.5], épaisseur de la tranche à fondre. Les 4 cas ont été simulés dans les mêmes conditions et avec le même maillage, même pas de temps et mêmes pas d'espaces. Nous allons observer l'effet de Δz^+ sur la purification en adoptant toujours une intensité de flux $q^+ = 0.2$ et une vitesse de translation des sources $V_S = 150$ cm/h. Nous avons relevé de la même manière que les études précédentes, les valeurs de certaines grandeurs thermiques et massiques aux différents points du barreau. En exploitant Ces résultats on pourra tracer au point (PDEP), la tendance sur le processus de purification. Le tableau 6.8 résume l'ensemble des résultats de cette étude.

Δz^+	Nombre d'itérations sur le temps j	T^+_{PTR}	T^+_{PC}	T^+_{P0}	T^+_{P3}	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T^+_{PDEP}	C^+_{PDEP}	C^+_{PARR}
1	171577	1.1758	1.0938	0.8979	0.9986	0	1	0.8983	0.6197	2.0118
1.25	171577	1.3166	1.2285	0.7704	1.2843	1	1	0.7716	0.5888	1.9417
1.4	171577	1.4420	1.3505	0.6819	1.4502	1	1	0.6877	0.5722	1.9144
1.5	171577	1.5203	1.4273	0.6210	1.5442	1	1	0.6320	0.5630	1.8894

Tableau 6.8 : Résultats de la purification : Effet de la largeur de la zone fondue Δz^+ avec $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$

6.4.1.2.1 Effet de l'épaisseur Δz^+ de la tranche sur la purification : ($V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

L'épaisseur Δz^+ de la tranche à fondre contribue d'une façon active à l'efficacité du processus de purification. Elle est en liaison étroite avec l'intensité de flux de chauffage et de refroidissement et par suite avec l'énergie accumulée dans le barreau. Plus l'épaisseur Δz^+ est importante et plus la purification est meilleure (figure 6. 30). Mêmes constatations que pour l'intensité de flux de chauffage et de refroidissement, au-delà d'une certaine limite de Δz^+, la température augmente dans le barreau et la limite $(T^+_{fr} + \Delta T^+)$ compatible avec le comportement thermique du matériau à purifier est atteinte.

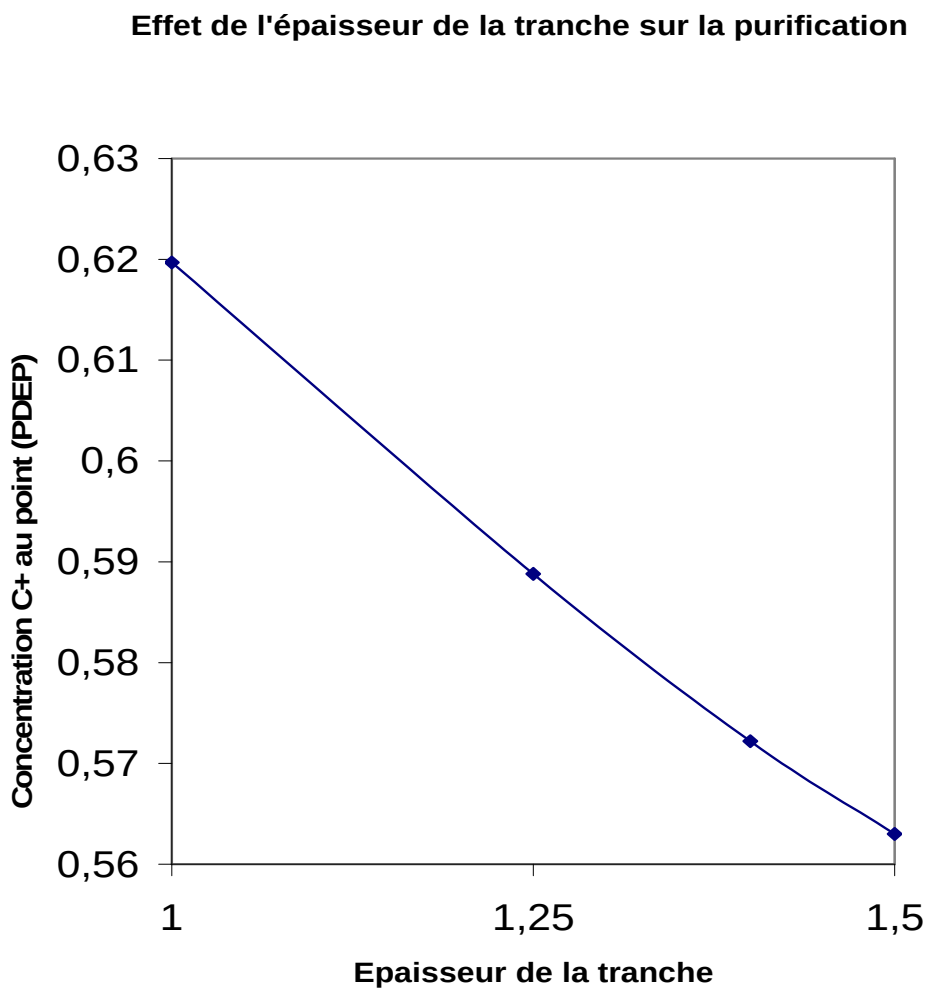


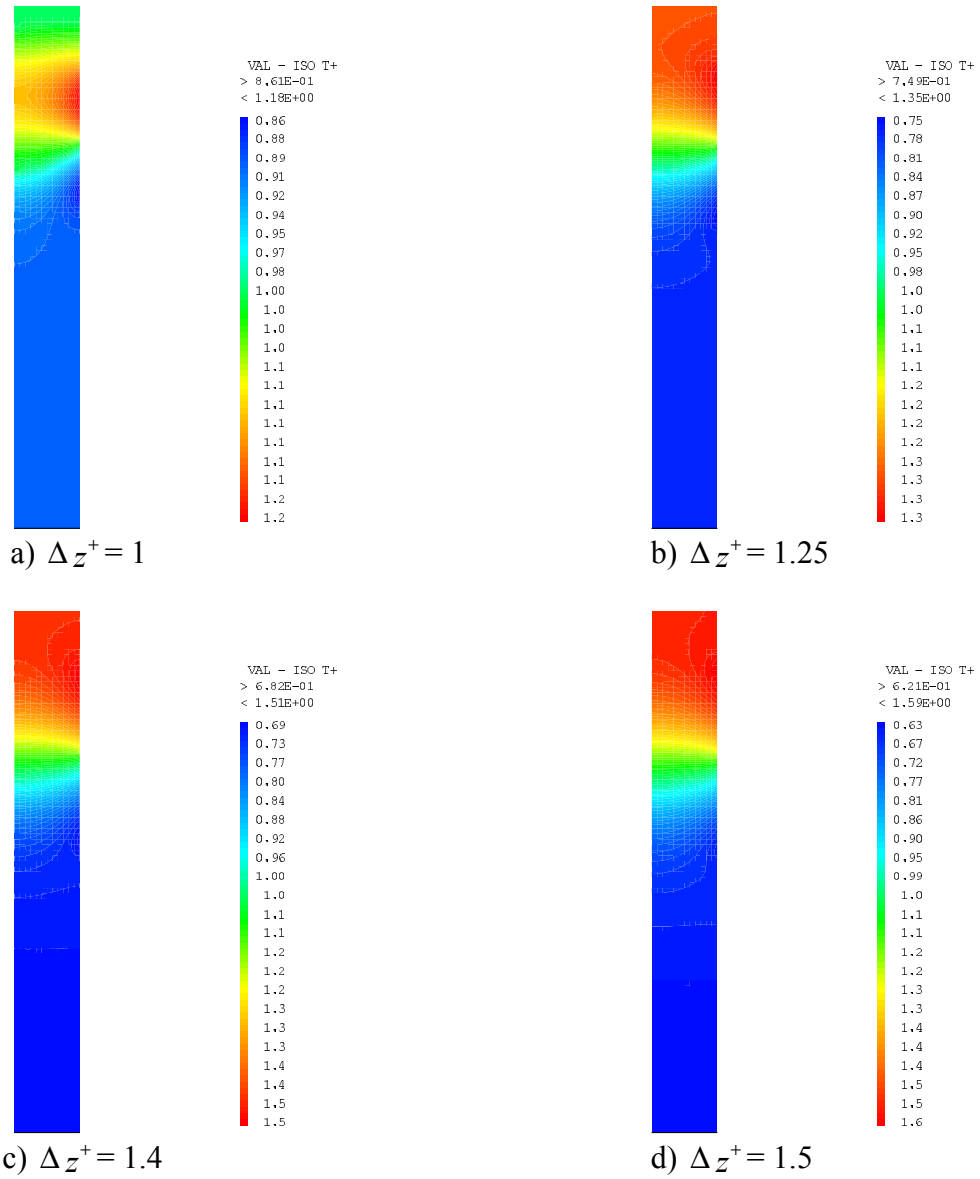
Figure 6.32 : Effet de l'épaisseur Δz^+ de la tranche fondue sur la purification avec V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2

6.4.1.2.2 Effet de l'épaisseur de la tranche sur le champ de température

Pour une intensité de flux et une vitesse de déplacement fixées, l'effet de l'épaisseur de la tranche à fondre sur le champ de température est identique à celui de l'intensité de flux de chauffage et de refroidissement q^+ étudié précédemment. Le barreau chauffe de plus en plus avec l'augmentation de l'épaisseur Δz^+.

6.4.1.2.2.1 Isovaleurs de température

La figure 6.33 montre l'effet de l'épaisseur de la tranche sur les isovaleurs de température. Pour le cas (a) $\Delta z^{+}=1$, l'extrémité haute du barreau reste après l'arrêt des sources en déplacement, à l'état solide. Par contre, pour les autres cas étudiés la chaleur diffuse plus rapidement dans le barreau et l'extrémité se trouve à l'état liquide et à température plus élevée.



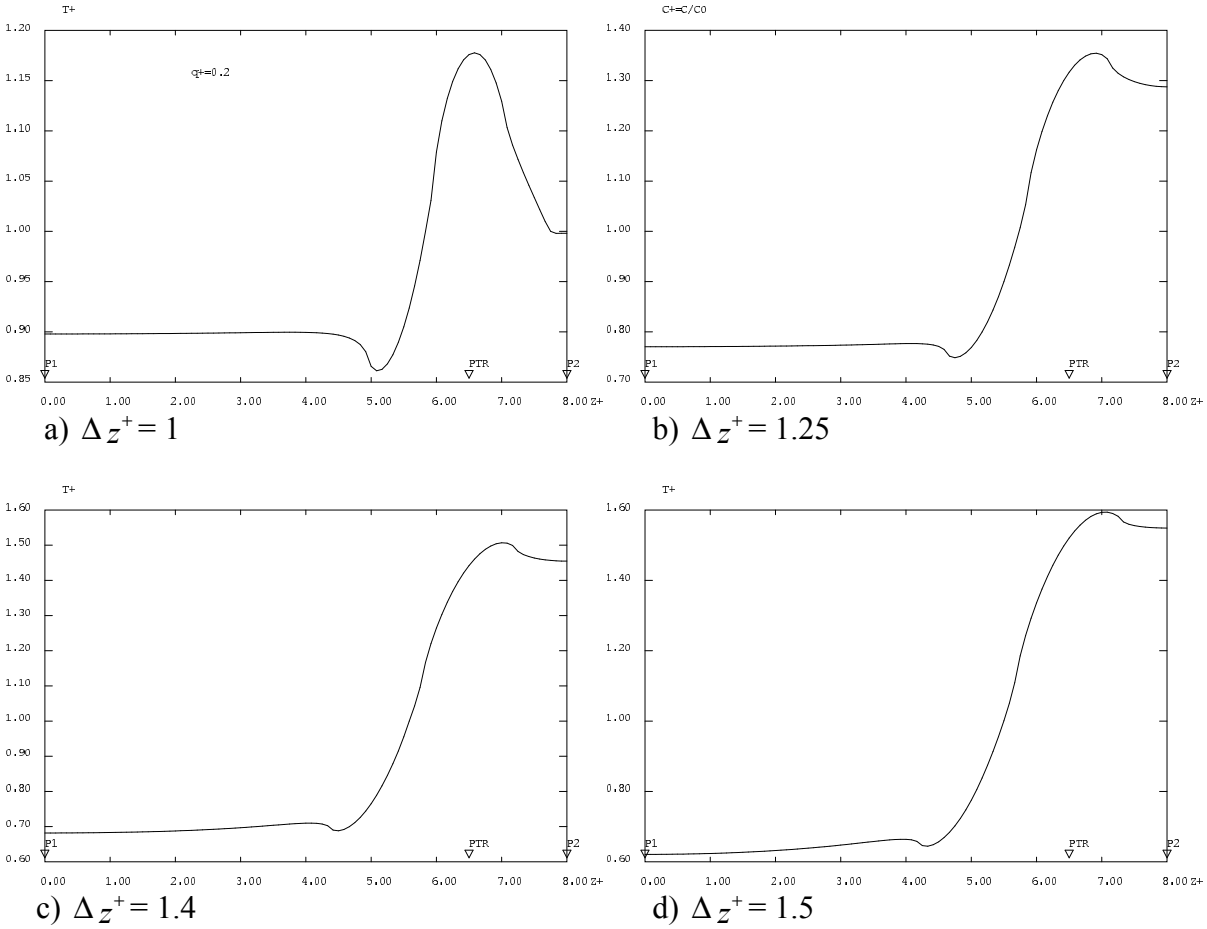
a) $\Delta z^{+} = 1$ b) $\Delta z^{+} = 1.25$

c) $\Delta z^{+} = 1.4$ d) $\Delta z^{+} = 1.5$

Figure 6.33 : Isovaleurs de température T^{+} dans le barreau à différentes épaisseurs de la tranche (Δz^{+}) ; (V_S = 150 cm/h et q^{+} =0.2)

6.4.1.2.2.2 Profils de température le long de la paroi du barreau

Dans la partie solidifiée, le gradient de température le long de la paroi augmente avec l'épaisseur de la tranche et la température diminue. Dans la partie liquide, l'effet de l'épaisseur Δz^+ est inversé.



a) $\Delta z^+ = 1$ b) $\Delta z^+ = 1.25$

c) $\Delta z^+ = 1.4$ d) $\Delta z^+ = 1.5$

Figure 6.34 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différentes épaisseurs de la tranche (Δz^+) ; (V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2)

6.4.1.2.2.3 Profils de température le long de l'axe du barreau

L'effet de l'épaisseur de la tranche Δz^+ sur les profils de température le long de l'axe du barreau est presque le même que sur la paroi, sauf que dans la partie liquide, la température est presque uniforme cas de la figure 6.35: (b, c, d).

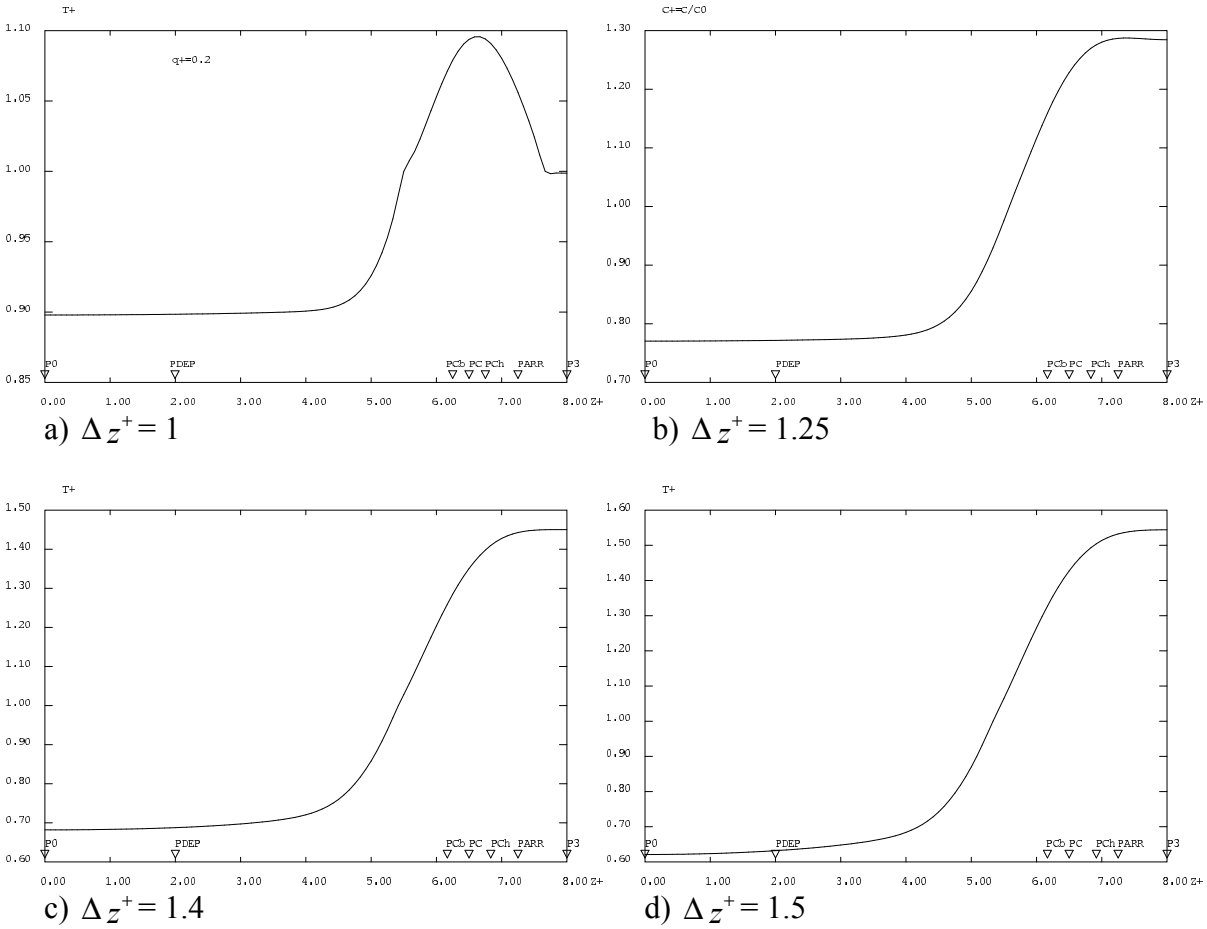


Figure 6.35 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différentes épaisseurs De la tranche (Δz^+) ; V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2

6.4.1.2.2.4 Effet de l'épaisseur de la tranche sur les isovaleurs de fraction fondue

La figure 6.36 montre l'effet de l'épaisseur de la tranche Δz^+ sur les isovaleurs de fraction fondue f_l et sur la forme du front de solidification. Plus la largeur de la source de chauffage respectivement de la source de refroidissement est grande et plus la zone fondue est large.

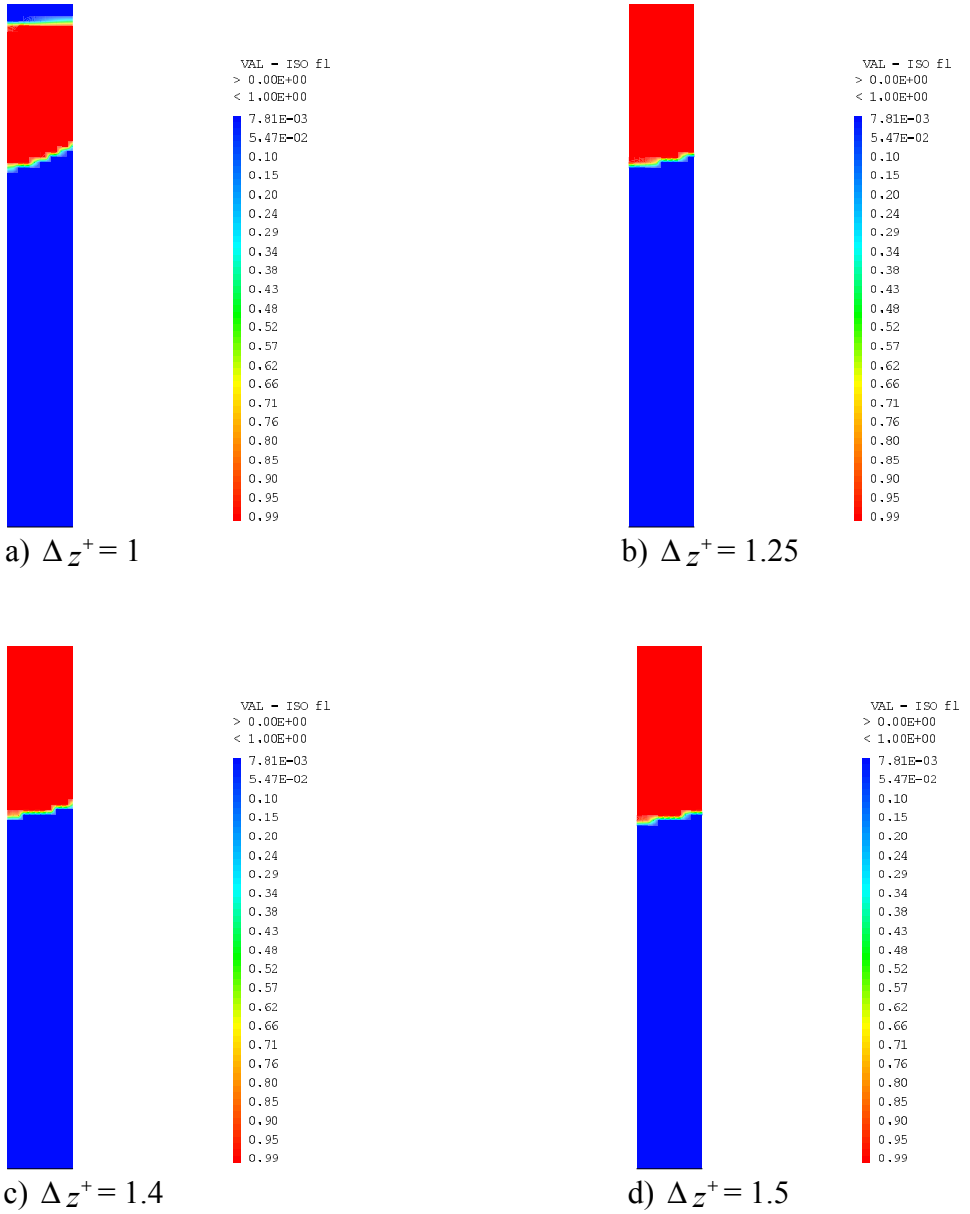
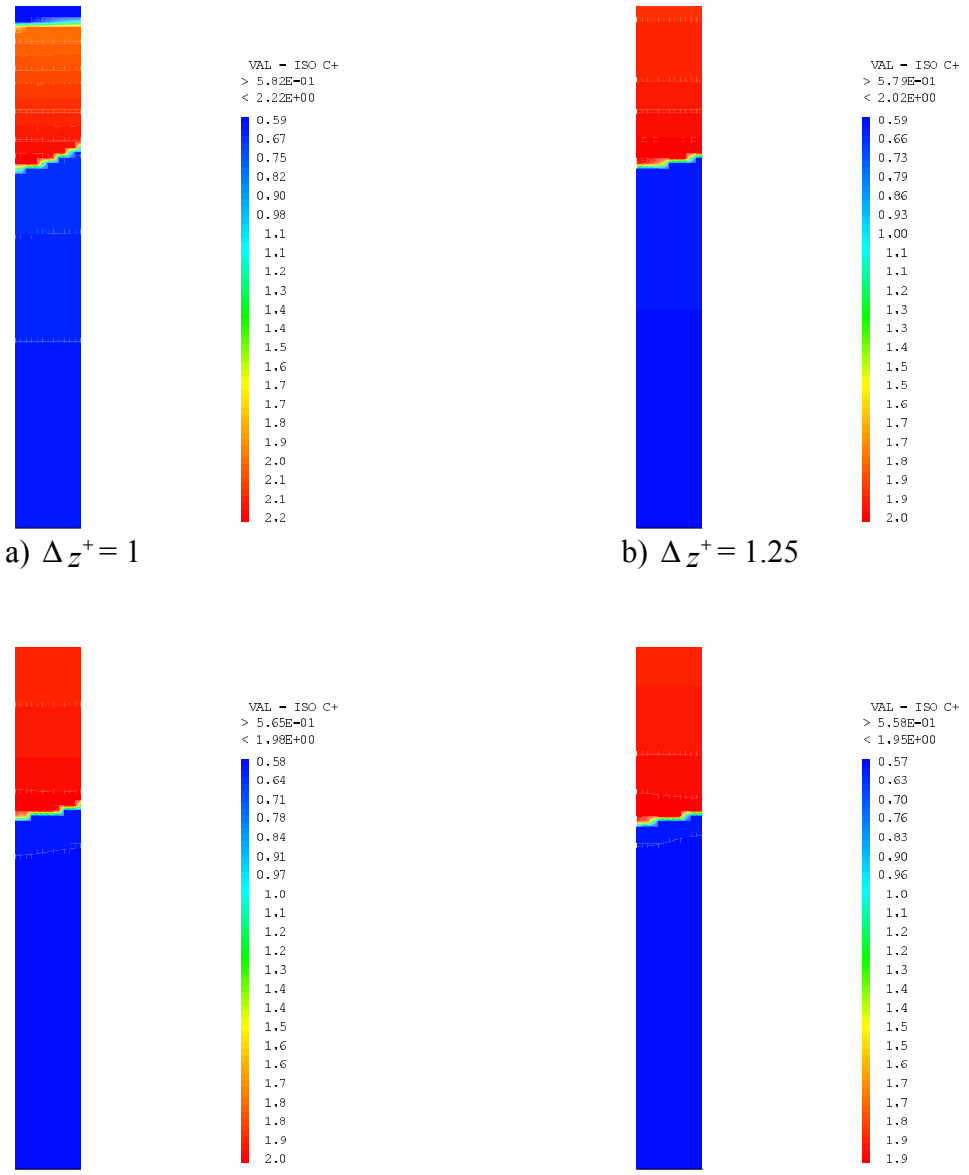


Figure 6.36 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différentes épaisseurs de la tranche (Δz^+) ; (V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2)

6.4.1.2.3 Effet de l'épaisseur de la tranche sur le champ de concentration

6.4.1.2.3.1 Isovaleurs de concentration

La figure 6.37 montre l'effet de l'épaisseur de la tranche sur les isovaleurs de concentration. Une zone large fait diffuser de l'impureté plus facilement qu'une zone moins large et déforme moins le front de fusion-solidification.



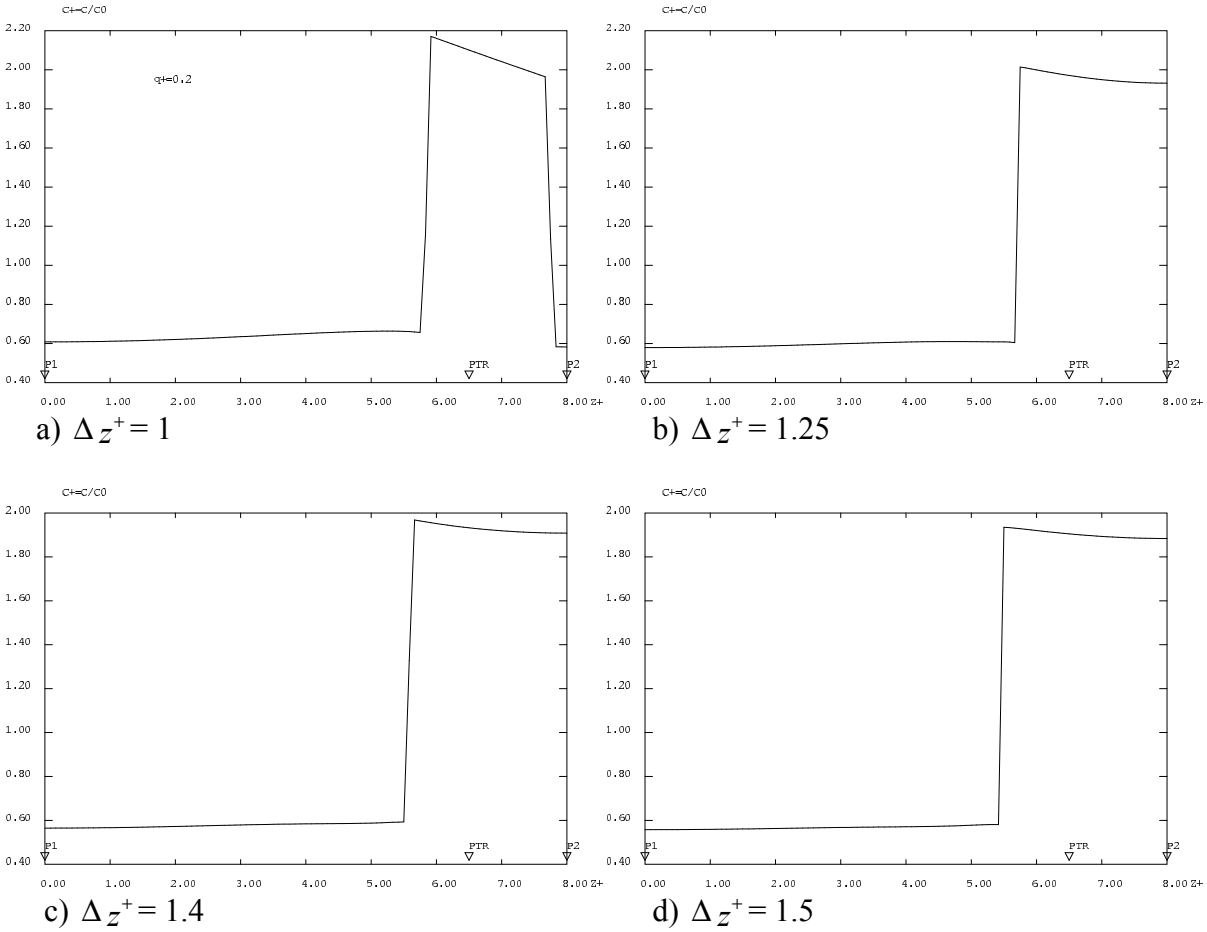
a) $\Delta z^+ = 1$ b) $\Delta z^+ = 1.25$

c) $\Delta z^+ = 1.4$ d) $\Delta z^+ = 1.5$

Figure 6.37 : Isovaleurs de concentration C^+ dans le barreau à différentes épaisseurs de la tranche (Δz^+) ; (V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2)

6.4.1.2.3.2 Profils de concentration le long de la paroi du barreau

Les profils de concentration de la figure 6. 38 mettent en évidence une nette purification dans la partie déjà solidifiée. La largeur de la zone fondue contribue à l'efficacité de la purification du barreau. Plus cette largeur est grande et plus le degré de purification est meilleur avec toutefois une limite ($T_{fr}^{+} + \Delta T^{+}$) caractéristique du matériau à ne pas dépasser.



a) $\Delta z^{+} = 1$ b) $\Delta z^{+} = 1.25$

c) $\Delta z^{+} = 1.4$ d) $\Delta z^{+} = 1.5$

Figure 6.38 : Profils de concentration C^{+} le long de La paroi du barreau à différentes Epaisseurs de la tranche (Δz^{+}) ; (V_S = 150 cm/h et q^{+} =0.2)

6.4.1.2.3.3 Profils de concentration le long de l'axe du barreau

L'effet de l'épaisseur de la tranche sur le champ de concentration est sensiblement le même pour la paroi et l'axe du barreau. L'inertie thermique fait que le cœur se refroidit avec un retard par rapport à la paroi ce qui entraîne une longueur purifiée sur l'axe du barreau inférieure à celle sur la paroi. Les figures (6.38 et 6. 39) montrent ces effets.

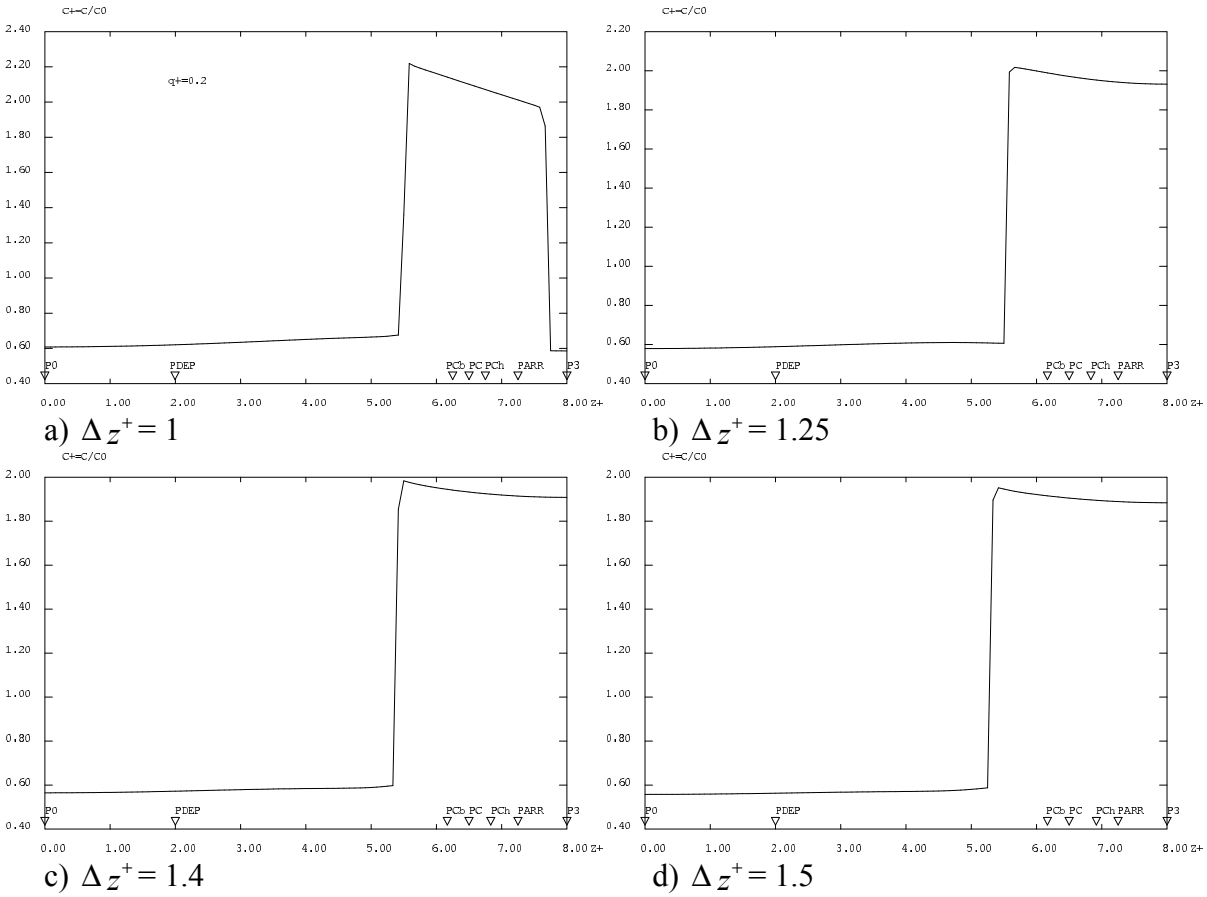


Figure 6.39 : Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différentes épaisseurs (Δz^+) ; (V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2)

6.4.1.3 Conclusion

L'effet de l'épaisseur de zone fondue sur la purification va dans le même sens que celui de l'intensité. Une zone large pourrait sans doute favoriser la convection dans la zone liquide ce qui n'est pas très souhaitable pour la répartition d'impuretés.

6.4.2 Effet du rapport d'aspect géométrique (A= L_b^+ / R^+)

Dans toute l'étude précédente, la longueur et le rayon du barreau (L_b^+ et R^+) ont été fixés et le rapport d'aspect est A=8. Dans cette étude nous allons regarder l'influence de ce rapport d'aspect sur la purification. Nous fixons toujours la longueur du barreau et nous faisons varier le rayon R^+. Nous sélectionnons pour cette étude quatre valeurs. La vitesse de translation des sources reste toujours la même que l'étude précédente V_S = 150 cm/h. L'intensité de flux de chauffage et de refroidissement est égale à 0.2 ($q^+ = q_c^+ = -q_f^+$ =0.2). Le maillage, le pas de temps et toutes les données sont conservés.

6.4.2.1 Données pour la simulation

$Lewl$	$\tilde{d}$	$\tilde{c}$	Δz^+	V_S cm/h	T_i^+	U_i^+	C_i^+	q_c^+	q_f^+
1	10	1	1	150	0.99928	1/k	1	0.2	-0.2

Tableau 6.9 : Données pour la simulation : V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2

6.4.2.2 Résultats de l'étude

L'étude a été réalisée avec quatre rapports d'aspect A: [8 ; 8.888 ; 10 ; 11.428]. Les 4 cas ont été simulés avec un maillage (13x97) nœuds et un pas de temps $\Delta\tau = 3.10^{-4}$. Nous allons observer l'effet de A sur la purification en adoptant toujours une intensité de flux $q^+ = 0.2$ et une vitesse de déplacement des sources égale à 150 cm/h. Nous avons relevé de la même manière que les études précédentes, les valeurs de certaines grandeurs thermiques et massiques aux différents points du barreau. Ces résultats peuvent être exploités pour tracer au point (PDEP) la tendance sur le processus de purification. Le tableau 6.10 résume l'ensemble des résultats de cette étude.

A	Nombre d'itérations sur le temps j	T_{PTR}^+	T_{PC}^+	T_{P0}^+	T_{P3}^+	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T_{PDEP}^+	C_{PDEP}^+	C_{PARR}^+
8	171577	1.1758	1.0938	0.8979	0.9986	0	1	0.8983	0.6197	2.0118
8.888	171577	1.1824	1.1056	0.8574	0.9981	0	1	0.8582	0.6272	2.0089
10	171577	1.1893	1.1185	0.8104	0.9980	0	1	0.8155	0.6324	1.9914
11.428	171577	1.2026	1.1376	0.7536	1.1007	1	1	0.7551	0.6358	1.9773

Tableau 6.10 : Résultats de la purification : Effet du rapport d'aspect géométrique (A) avec V_S = 150 cm/h et q^+ =0.2

6.4.2.2.1 Effet du rapport d'aspect géométrique sur la purification :

(V_S = 150 cm/h et q^+ = 0.2**)**

Le rapport d'aspect géométrique (A) est aussi un paramètre influençant la distribution des champs de température et de concentration. Son effet est de sens contraire que celui de l'intensité de flux de chauffage puisque cette dernière est proportionnelle à la fois à la densité de flux et à la surface sur laquelle on applique cette densité. Plus le rapport d'aspect est petit et plus la purification est meilleure (figure 6. 38).

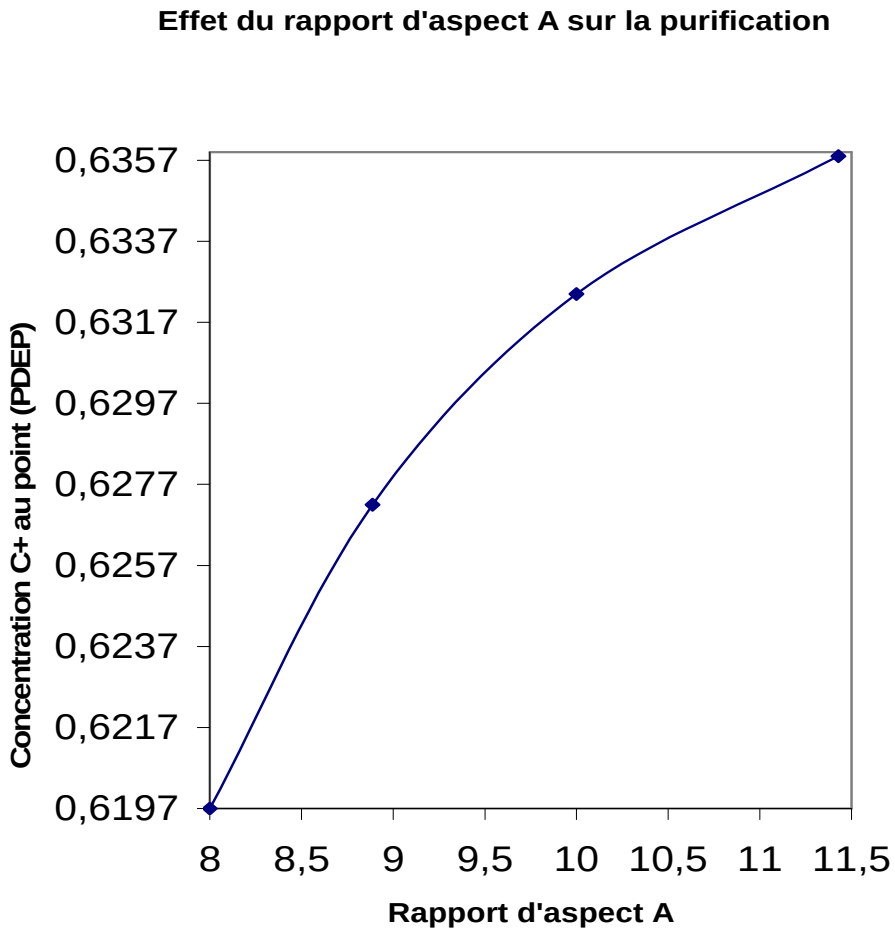


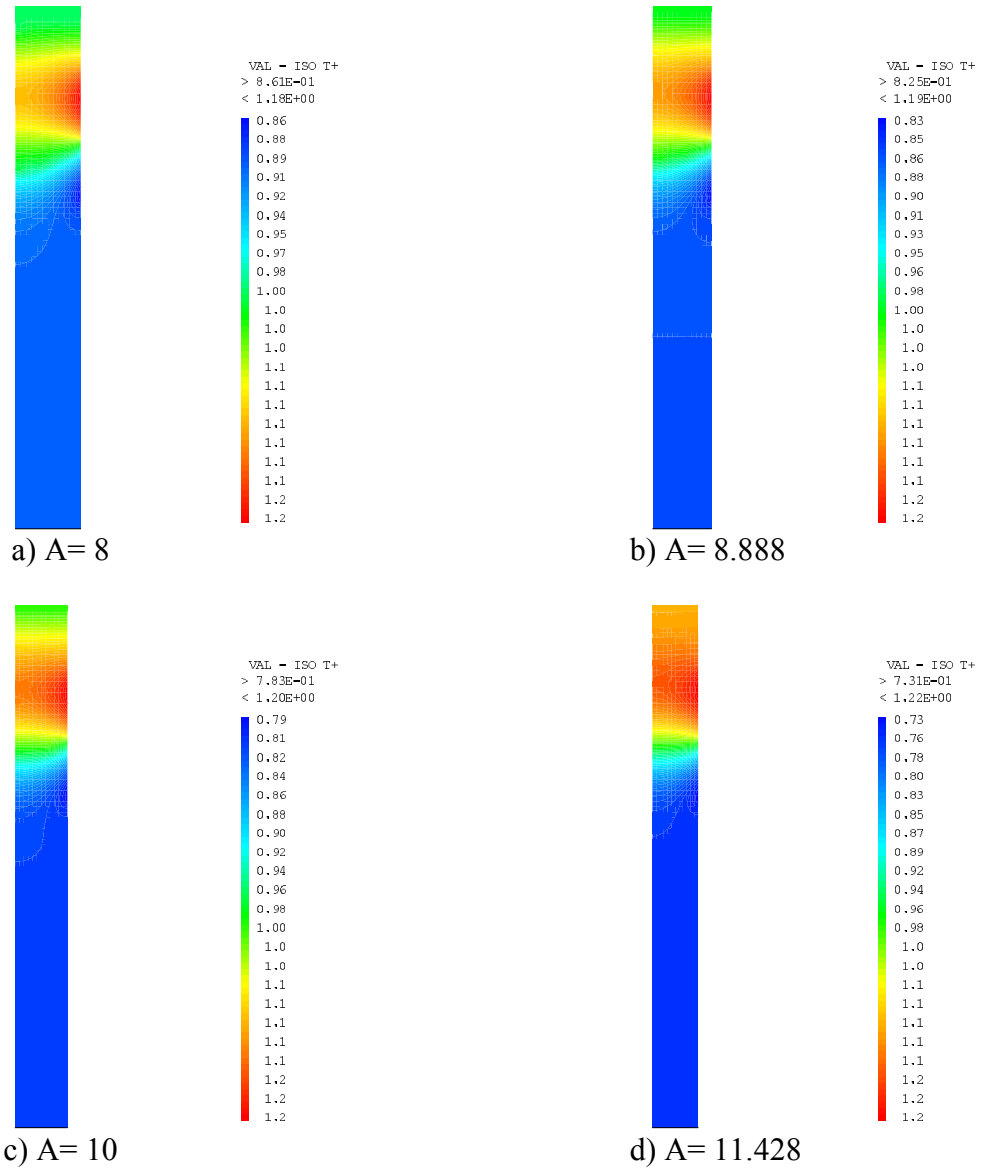
Figure 6.40 : Effet du rapport d'aspect géométrique A sur la purification avec V_S *= 150 cm/h et* q^+ *=0.2*

6.4.2.2.2 Effet du rapport d'aspect sur le champ de température

Pour une tranche d'épaisseur fixée et une vitesse de déplacement adoptée, le champ de température est affecté par le rapport d'aspect géométrique A. En effet l'énergie déposée dans le barreau à travers la tranche est proportionnelle au rayon du barreau et par suite ce rapport agit d'une façon ou d'une autre sur la distribution de température dans le barreau.

6.4.2.2.2.1 Isovaleurs de température

La figure 6.41 montre l'effet du rapport d'aspect A sur les isovaleurs de température. Plus ce rapport est grand est plus le gradient de température entre surface et cœur du barreau est faible et le front de solidification est moins déformé.



a) A= 8 b) A= 8.888

c) A= 10 d) A= 11.428

Figure 6.41 : Isovaleurs de température T^+ dans le barreau à différents rapports d'aspect (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.2.2 Profils de température le long de la paroi du barreau

Dans la partie solidifiée du barreau, la température est en légère baisse avec l'augmentation du rapport d'aspect géométrique, par contre dans la partie liquide l'effet est inversé.

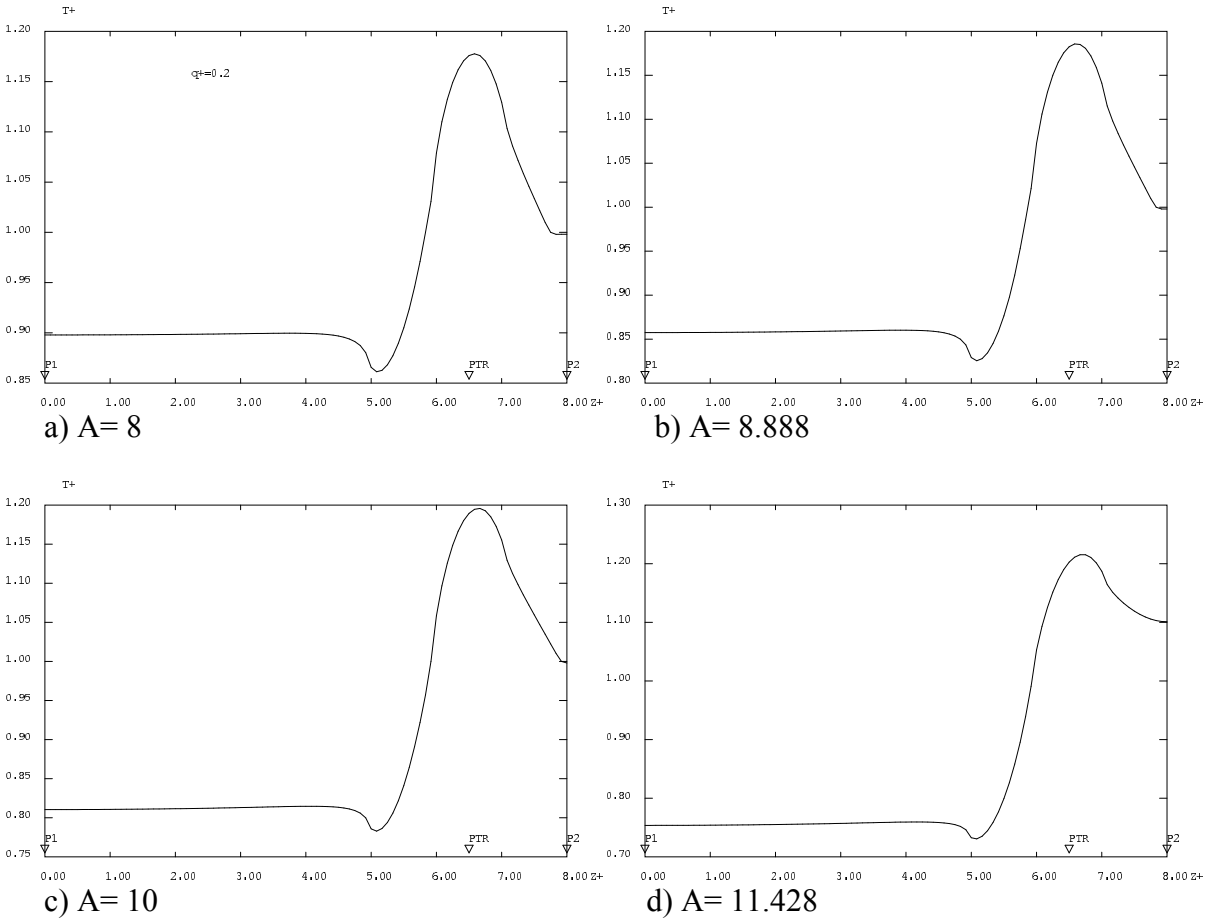


Figure 6.42 : Profils de température T^+ le long de la paroi du barreau à différents rapports d'aspect (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.2.3 Profils de température le long de l'axe du barreau

La distribution de température au cœur du barreau subit sensiblement le même effet du rapport d'aspect que la surface.

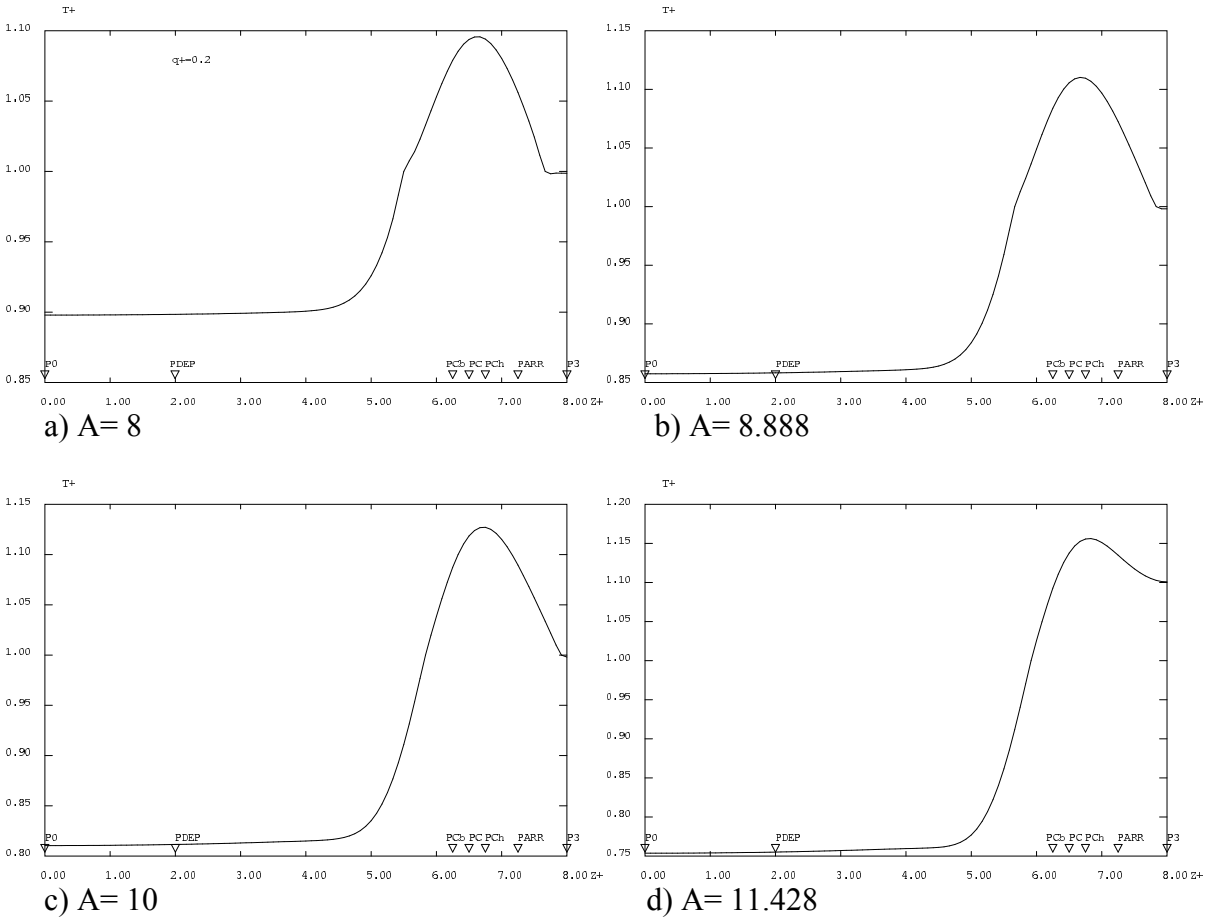
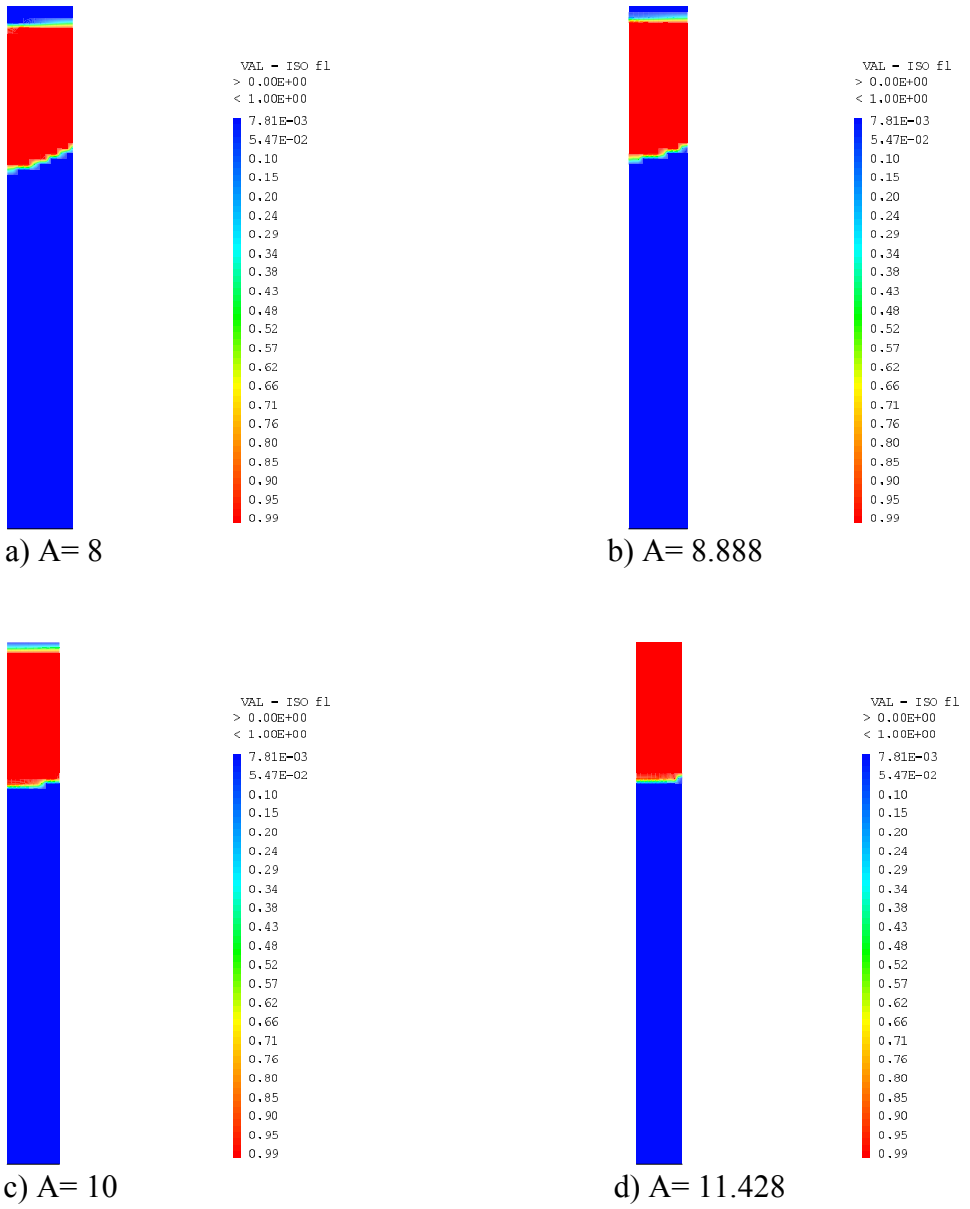


Figure 6.43 : Profils de température T^+ le long de l'axe du barreau à différents rapports d'aspect (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.2.4 Effet du rapport d'aspect sur les isovaleurs de fraction fondue

La figure 6.44 montre l'effet du rapport d'aspect géométrique A sur les isovaleurs de fraction fondue f_l et sur la forme du front de solidification. Plus le rapport d'aspect est petit et plus la zone fondue est large et la forme du front de solidification est plus affectée.



a) A= 8 b) A= 8.888

c) A= 10 d) A= 11.428

Figure 6.44 : Isovaleurs de fraction fondue f_l dans le barreau à différents rapports d'aspect géométrique (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.3 Effet du rapport d'aspect sur le champ de concentration

6.4.2.2.3.1 Isovaleurs de concentration

La figure 6.45 montre l'effet du rapport d'aspect (A) sur les isovaleurs de concentration. Plus ce rapport est petit et plus le gradient de concentration entre paroi et cœur est important (figure 6.45.a). Le cas de la figure 6.45.d peut être considéré comme un cas d'un modèle unidimensionnel. En effet, avec un rapport d'aspect important, c'est-à-dire rayon du barreau petit, la concentration est presque constante sur toute la section radiale et le drainage des impuretés se fait sans qu'il y ait un gradient de concentration radial.

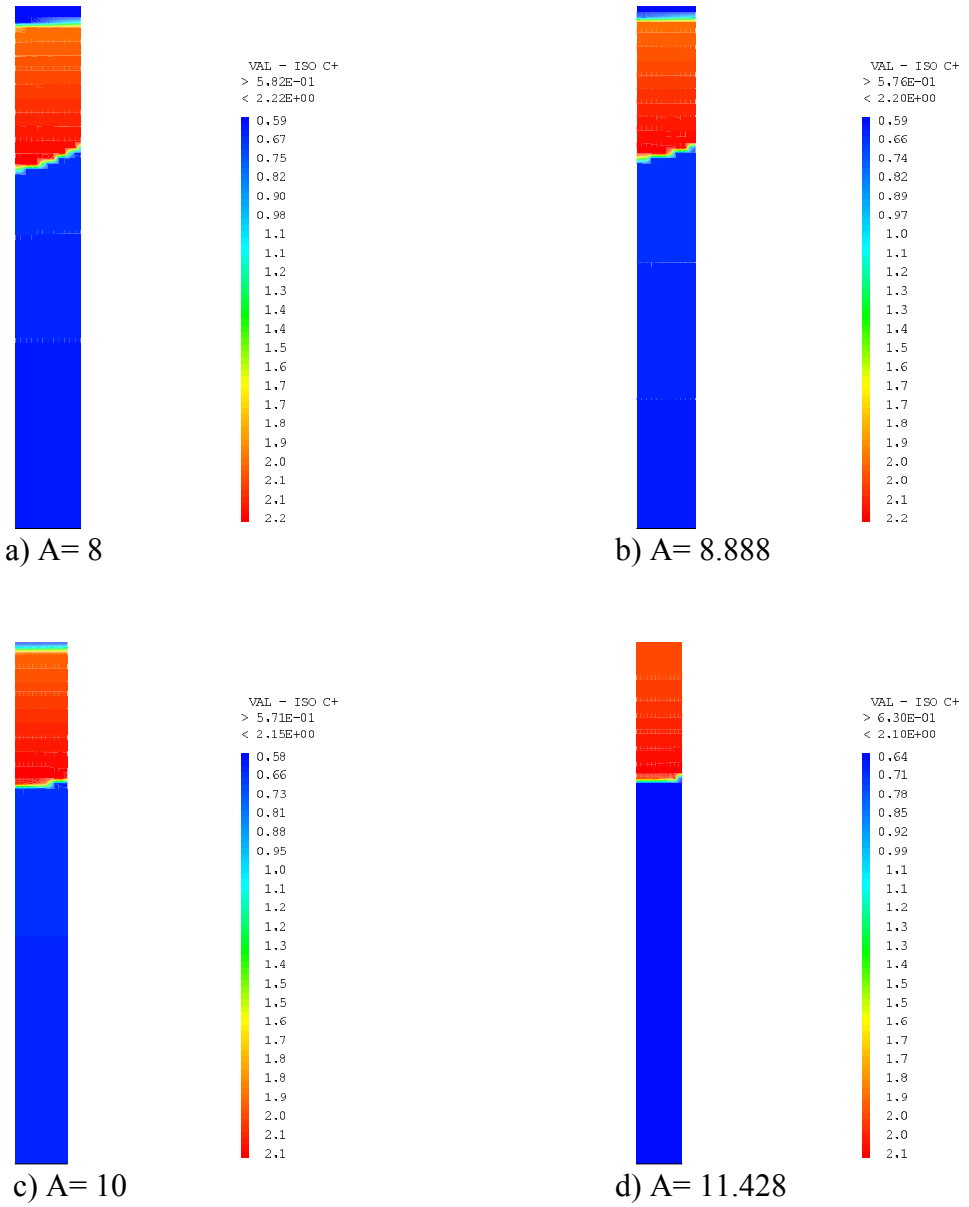


Figure 6.45 : Isovaleurs de concentration C^+ dans le barreau à différents rapports d'aspect géométrique (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.3.2 Profils de concentration le long de la paroi du barreau

Les profils de concentration de la figure 6. 46 mettent en évidence une nette purification dans la partie déjà solidifiée. Le rapport d'aspect géométrique (A) contribue à l'efficacité de la purification du barreau. Plus ce rapport est petit et plus la purification est meilleure.

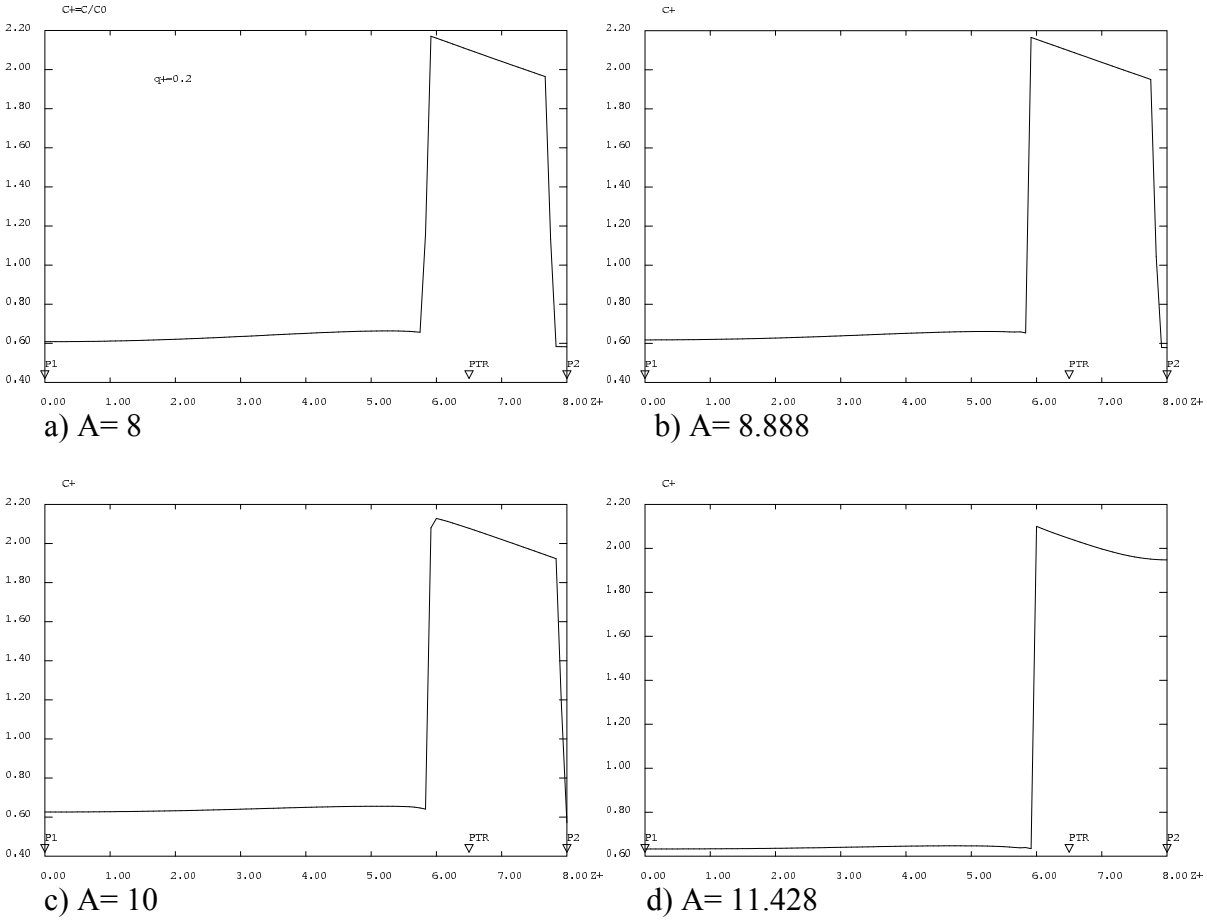


Figure 6.46 : Profils de concentration C^+ le long de La paroi du barreau à différents rapports d'aspect géométrique (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; V_S = 150 cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.2.3.3 Profils de concentration le long de l'axe du barreau

L'effet du rapport d'aspect (A) sur le champ de concentration est sensiblement le même pour la paroi et l'axe du barreau. Plus ce rapport est petit et plus le gradient de concentration transversal est important, ce qui entraîne une longueur purifiée sur l'axe du barreau, inférieure à celle obtenue sur la paroi.

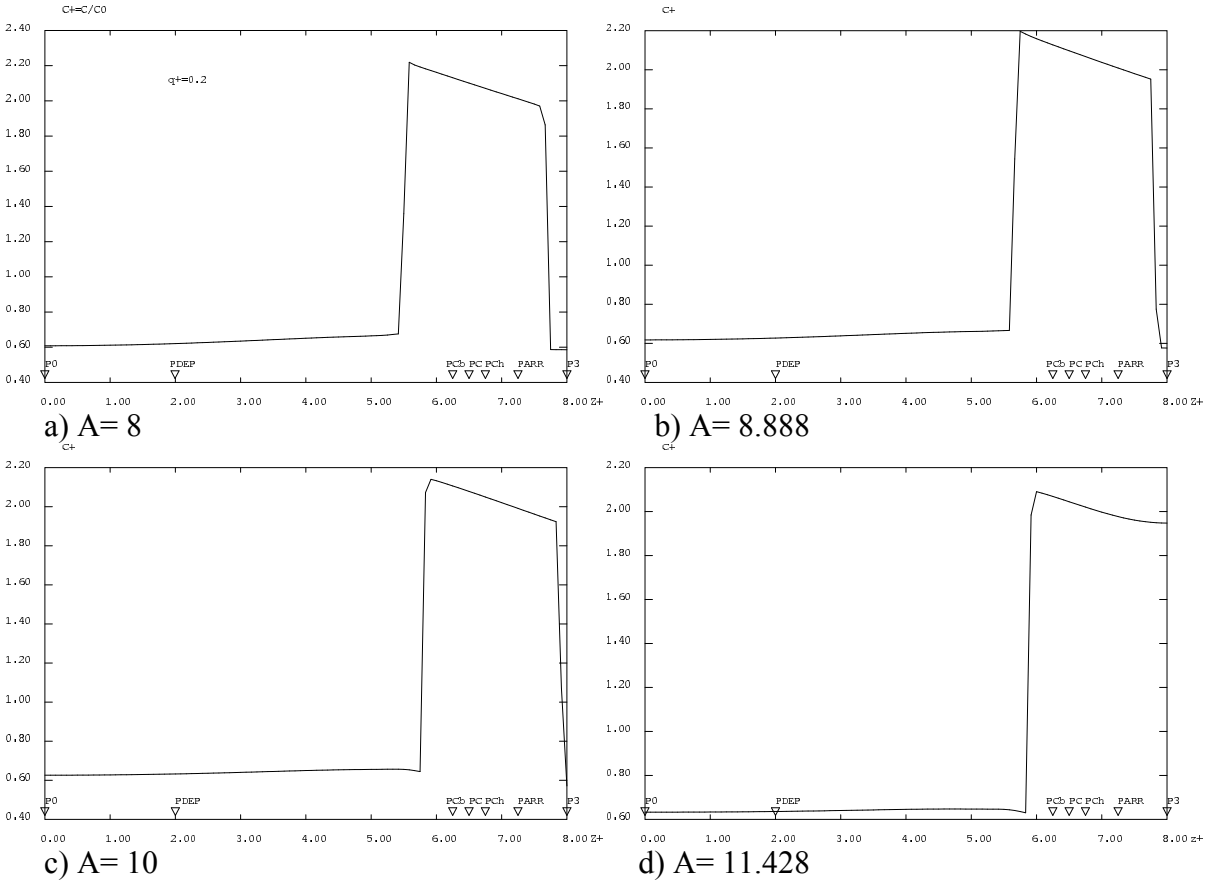


Figure 6.47 : Profils de concentration C^+ le long de l'axe du barreau à différents rapports d'aspect (A) ; ($\Delta z^+ = 1$; $V_S = 150$ cm/h et $q^+ = 0.2$)

6.4.2.3 Conclusion

Dans la configuration d'étude, un rapport d'aspect géométrique petit paraît bien plus efficace pour la purification par contre diminue légèrement la portion de longueur purifiée. Dans le cas contraire (rapport plus important), c'est-à-dire prendre un barreau de rayon petit réduit le gradient de concentration radial dans le barreau et permet de se ramener à une modélisation unidimensionnelle où le front de solidification reste normale au sens de déplacement des sources.

6.5 Conclusion sur la modélisation numérique

Nous avons étudié numériquement le processus de purification « zone refining » par deux modélisations simples en deux dimensions selon la symétrie axiale. Les résultats des calculs sont dans l'ensemble satisfaisants pour les deux types de modélisation thermique et d'espèces. En effet, le modèle thermique de type conduction plus changement de phase nous a donné des résultats dans l'épaisseur du barreau, montrant la géométrie de la zone fondue et le comportement bidimensionnel de deux fronts (fusion et solidification). Cependant, ce modèle suppose que la convection dans la phase liquide est négligée. Il serait alors intéressant de faire entrer ce terme dans la modélisation.
Par ailleurs d'autres types de conditions aux limites de refroidissement sur les parties du barreau non sollicitées par les deux sources peuvent être envisagées (rayonnement, échange convectif).
Enfin, le modèle de diffusion des espèces nous a permis d'obtenir, en faisant varier les différentes grandeurs liées au processus, des résultats de purification satisfaisants.
Les effets de toutes ces grandeurs sont étudiés et mis en évidence pour une modélisation bidimensionnelle. Nous constatons à partir de cette analyse les faits suivants :

- Une vitesse trop élevée réduit la portion de longueur purifiée et crée un gradient de concentration radial dans le barreau.
- Le degré de purification s'améliore avec l'augmentation de l'intensité de flux de chauffage
- Si l'intensité de flux de refroidissement est inférieure à celle du flux de chauffage, le front de solidification se déforme et un retard entre le cœur et la paroi se développe d'avantage avec l'augmentation de la vitesse de déplacement des sources.
- Une zone fondue large provoque les mêmes tendances qu'une intensité de flux de chauffage importante.
- Un rapport d'aspect petit contribue à l'amélioration de la purification, par contre il est préférable de purifier des barreaux de petit diamètre, ce qui revient à se rapprocher de la modélisation unidimensionnelle.

Conclusion générale

Ce travail visait l'étude numérique du processus de purification par zone fondue avec une approche multidimensionnelle afin de mettre en évidence l'influence de chacun des paramètres qui interviennent dans la modélisation. Ceci nous a conduit à établir deux approches. Une approche modélisant le processus de fusion/solidification et une approche pour le transfert d'impuretés, modélisant la diffusion et le drainage des impuretés dans le barreau étudié. Pour y parvenir, nous avons étudié numériquement trois points importants :

• Le premier point est l'étude du transfert thermique pour deux géométries différentes afin de comparer le temps de fusion à cœur et par la suite choisir la géométrie la plus performante qui optimise l'énergie à mettre en jeu dans le procédé de purification, puis l'adopter pour notre étude. Dans un premier temps, nous avons étudié les cas d'une plaque plane et d'un cylindre à section circulaire ayant le même volume et la même puissance de chauffage en conduction pure. Ce mode de transfert permet de généraliser l'étude pour l'ensemble des matériaux.
Dans un deuxième temps, nous avons étudié le transfert thermique en conduction avec la prise en compte du changement de phase (fusion) dans une petite tranche, dans les cas d'un barreau à section circulaire et d'un barreau à section carrée en silicium pur. Dans ces deux derniers cas, l'égalité de volume et de puissance de chauffage est prise sur la tranche chauffée.

• Le deuxième point de ce travail a été consacré à l'étude et l'analyse du transfert d'espèces. Cette étude a été menée sur un barreau à section circulaire (silicium avec faible concentration d'impuretés de germanium), chauffé sur une de ses tranches avec une source immobile. Les résultats de l'étude nous ont permis d'affecter à notre modèle multidimensionnel et de type diffusif les deux grandeurs susceptibles de mieux représenter le processus de purification étudié, à savoir un nombre de Lewis effectif Le_{eff} et un rapport des coefficients de diffusion effectif $\tilde{d}_{eff}$, qui ont servi pour l'étude du processus de purification à proprement dit.

• Le troisième point est l'étude du processus de purification à proprement dit. Les sources de chauffage et de refroidissement sont mobiles. Nous avons étudié l'effet bidimensionnel de chacune des grandeurs influençant le degré de pureté du matériau.
Une première étude a montré l'effet de la vitesse de translation des sources, dans le cas où l'intensité de flux de chauffage est égale à l'intensité de flux de refroidissent (cas idéalisé) et dans le cas où les intensités sont différentes. Cette étude nous a conduit à choisir une configuration parmi ces deux dernières pour l'étude de l'influence des autres grandeurs.
La deuxième étude a montré l'effet de l'intensité de flux dans le cas où les intensités de deux sources sont égales. Ensuite une troisième étude qui a permis de montrer l'effet de la largeur de la zone fondue. Enfin, une quatrième étude a fait apparaître l'effet de la géométrie (rayon du barreau).

Cette approche a l'avantage d'être multidimensionnelle et prend en compte les phénomènes transitoires, alors que jusqu'à présent la modélisation était unidimensionnelle et ne prenait pas en compte les phénomènes transitoires.

Une amélioration certaine pourrait être apportée à cette approche numérique si la convection était introduite dans les équations et si les propriétés du matériau dépendaient de la température. D'autre part une étude expérimentale pourrait bien être utile pour le calage du modèle proposé et qui nous permettra d'estimer au mieux les valeurs du nombre de Lewis

effectif et du rapport des coefficients de diffusion qui sont forcement en liaison étroite avec les propriétés du matériau et le processus de fusion/solidification.

Faire une analyse numérique approfondie qui puisse proposer des outils de simulation capables de représenter la diffusion à travers un front de fusion-solidification lorsque les coefficients de diffusion thermique et massique sont dans des rapports très élevés ($> 10^8$). Étude indispensable si on veut simuler la purification de certains matériaux.

Annexe A

Étude de la conduction pure

Un bon choix de la géométrie à adopter dans le procédé de purification par zone refining pourra sans doute contribuer à l'optimisation de ce procédé. En effet la distribution du champ de température dépend entre autre de la géométrie du barreau et l'énergie fournie pour fondre une tranche ou un barreau jusqu'au cœur est forcement liée étroitement à la forme de la section transversale du barreau. Cependant cette énergie est fonction du temps de fusion à cœur, que ce soit pour une petite tranche ou pour la fusion totale du barreau. Si le flux de chauffage est constant, l'énergie mise en jeu sans tenir compte des pertes de toute nature est le produit du flux de chauffage fois le temps de fusion jusqu'au cœur. Il est donc utile d'entreprendre une étude générale faisant intervenir une large gamme des matériaux. Le cas de la conduction pure permet dans ce cas d'atteindre l'objectif ciblé. Cette étude nous permet d'avoir une première idée sur le temps nécessaire pour atteindre juste le point de fusion du matériau à cœur. L'étude sera faite sur deux géométries différentes, une plaque et un cylindre chauffés respectivement sur les 2 faces et sur la paroi latérale. L'avantage d'étudier uniquement la conduction pure est que l'écriture de l'équation sous forme adimensionnelle ne fait intervenir que le nombre de Fourier (F0), comme paramètre gouvernant l'équation, et par conséquent, l'étude sera générale quelque soit le matériau.

Étude d'une plaque plane

Formulation du problème thermique

On considère une plaque plane de largeur 1, de hauteur h_p et d'épaisseur (2.e), chauffée par une densité de flux de chaleur q_p, constante à travers ses deux faces opposées suivant la direction $\vec{x}$.

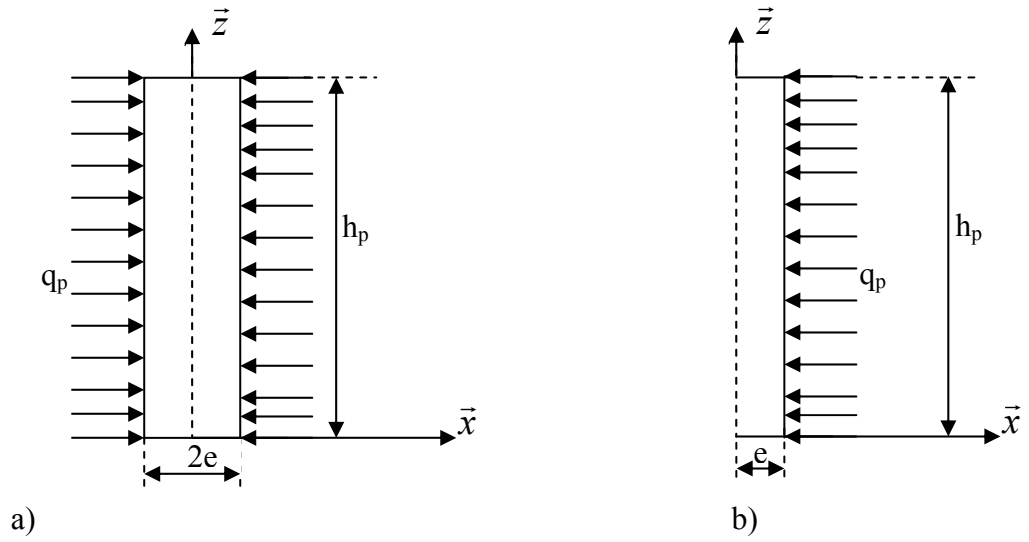


Figure A.1 : a) Plaque plane soumise sur ses deux faces opposées à une densité de flux de chauffage q_p ; b) Cas axisymétrique

La symétrie de la géométrie et du chargement thermique figure A.1.b fait que ce problème peut être traité comme une plaque d'épaisseur e soumise à une densité de flux de chauffage sur une seule face et adiabatique sur la face opposée. Dans cette configuration, l'équation de la chaleur adimensionnelle en conduction pure s'écrit avec les mêmes grandeurs adimensionnelles que dans le chapitre 3 comme suit :

$$\frac{\partial T^+}{\partial t^+} = \Delta T^+ \qquad sur\,\Omega \tag{A1}$$

- Condition initiale :

$$T^+(X^+, Z^+, t^+ = 0) = 0 \quad \text{dans}\,\Omega \tag{A2}$$

- **Conditions aux limites** :

Si les faces de cette plaque sont nommées de la façon suivante :

x = 0 : face $\partial\Omega 2$
x = e : face $\partial\Omega 1$
z = 0 : face $\partial\Omega 3$
z = hp : face $\partial\Omega 4$

Alors les conditions aux limites s'écrivent :

$$\frac{\partial T^+(X^+ = e/L,\, Z^+,\, t^+)}{\partial X^+} = q_p^+ \quad \text{sur}\ \partial\Omega 1 \tag{A3}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+ = 0,\, Z^+,\, t^+)}{\partial X^+} = 0 \qquad \text{sur}\ \partial\Omega 2 \tag{A4}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,\, Z^+ = 0,\, t^+)}{\partial Z^+} = 0 \qquad \text{sur}\ \partial\Omega 3 \tag{A5}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,\, Z^+ = h_p/L,\, t^+)}{\partial Z^+} = 0 \quad \text{sur}\ \partial\Omega 4 \tag{A6}$$

En utilisant une méthode variationnelle, la discrétisation spatiale de l'équation de la chaleur donne :

$$M_p \dot{T}^+ + K_p T^+ = F_p \tag{A7}$$

Où M_p est la matrice de capacité, K_p est la matrice de conductivité et F_p le second membre du flux thermique q_p^+.

Pour $\dot{T}^+$ La discrétisation temporelle est telle que :

$$\begin{cases} \dot{T}^+ = \dfrac{T^+_{n+1} - T^+_n}{\Delta\tau} \\ T^+ = T^+_n \end{cases} \tag{A8}$$

Injecté dans l'équation (A.7) au temps τ_n, ce résultat donne :

$$M_P \frac{T^+_{n+1} - T^+_n}{\Delta\tau} + K_P T^+_n = F_{pn} \tag{A9}$$

Dans ce cas, l'équation de la chaleur discrétisée devient :

$$\frac{M_p}{\Delta\tau} T^+_{n+1} = \frac{M_p}{\Delta\tau} T^+_n - K_p T^+_n + F_{pn} \tag{A10}$$

On pose alors :

$$\begin{cases} A_p = \dfrac{M_p}{\Delta\tau} \\ B_p = \dfrac{M_p}{\Delta\tau} - K_p \end{cases} \tag{A11}$$

On obtient finalement :

$$A_p H^+_{n+1} = B_p T^+_n + F_{pn} \tag{A12}$$

Ce schéma explicite nécessite un critère de stabilité sur le pas de temps $\Delta\tau$. Ce critère doit vérifier parmi ces deux expressions (A13 et A14) suivantes le pas de temps le plus petit :

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta x^+_M)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{A13}$$

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta z^+_M)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{A14}$$

Avec Δx^+_M et Δz^+_M taille de la maille suivant les directions $\vec{X}^+$ et $\vec{Z}^+$

Résolution numérique

La résolution de l'équation de la chaleur en conduction pure permet de déterminer le champ thermique dans tout le barreau. L'objectif de cette étude est à priori de comparer les temps de fusion à cœur pour les deux géométries à étudier, plaque plane et cylindre à section circulaire, avec des conditions de chauffage et de géométrie telles que pour les deux cas étudiés on aura le même volume et la même puissance de chauffage. Nous allons donc étudier le cas de la plaque, hauteur adimensionnelle fixée $h^+_p = 2$ avec différentes épaisseurs et différentes densités de flux de chauffage afin d'exploiter les résultats numériques obtenus, pour tracer un ensemble des faisceaux des courbes donnant le temps de fusion à cœur, au quart de l'épaisseur et à la surface de la plaque. Ces courbes peuvent donner une première idée sur le temps de fusion en fonction de l'épaisseur de la plaque et la densité de flux de chauffage appliquée.

Le maillage adopté est un maillage rectangulaire régulier pour tous les cas simulés :(13x97) nœuds et le pas de temps adimensionnel est $\Delta\tau = 10^{-4}$

On calcule les temps de fusion adimensionnels aux points situés sur une même section transversale de coordonnées : Ppp ($X^+ = e/L$, $h_p^+/2$) ; Ppq ($X^+ = e/2L$, $h_p^+/2$) ;

Ppc ($X^+ = 0$, $h_p^+/2$) avec les notations suivantes :

t_{fp}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Ppp

t_{fq}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Ppq

t_{fc}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Ppc

Les résultats de la simulation pour différentes épaisseurs et densités de flux de chauffage sont reportés dans les tableaux suivants :

$q_p^+ = 0.2$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	4.660	8.660	11.996	14.646	16.657	18.036	18.870	19.264
t_{fm}^+	5.027	10.146	15.355	20.656	26.025	31.487	36.995	42.661
t_{fc}^+	5.164	10.648	16.498	22.667	29.157	36.000	43.120	50.656

$q_p^+ = 0.4$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	2.14	3.656	4.500	4.816	4.890	4.888	4.885	4.889
t_{fm}^+	2.536	5.164	7.860	10.648	13.325	16.495	19.536	22.662
t_{fc}^+	2.650	5.667	8.979	12.657	16.650	20.973	25.578	30.547

$q_p^+ = 0.6$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	1.325	1.919	2.170	2.192	2.158	2.192	2.146	2.176
t_{fm}^+	1.691	3.473	5.369	7.312	9.330	11.412	13.687	15.994
t_{fc}^+	1.828	3.930	6.489	9.322	12.440	15.900	19.600	23.578

$q_p^+ = 0.8$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.914	1.188	1.211	1.210	1.211	1.211	1.211	1.211
t_{fm}^+	1.270	2.650	4.113	5.666	7.289	8.980	10.780	12.083
t_{fc}^+	1.417	3.153	5.236	7.630	10.328	13.298	15.562	20.659

Tableaux A.1.a : Résultats de la simulation pour une plaque plane

$q_p^+ = 1$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.663	0.777	0.777	0.777	0.777	0.777	0.777	0.777
t_{fm}^+	1.028	2.148	3.359	4.661	6.033	7.492	9.026	10.643
t_{fc}^+	1.165	2.650	4.478	6.603	9.026	11.696	14.646	17.843

$q_p^+ = 1.2$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.480	0.548	0.548	0.544	0.548	0.522	0.524	0.524
t_{fm}^+	0.868	1.828	2.853	3.998	5.200	6.480	7.860	9.318
t_{fc}^+	0.983	2.330	3.975	5.894	8.110	10.584	13.318	16.256

$q_p^+ = 1.4$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.366	0.388	0.388	0.388	0.388	0.388	0.388	0.388
t_{fm}^+	0.754	1.577	2.514	3.519	4.593	5.781	7.015	8.363
t_{fc}^+	0.868	2.079	3.588	5.393	7.472	9.780	12.338	15.127

$q_p^+ = 1.6$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.297	0.297	0.297	0.297	0.297	0.297	0.297	0.297
t_{fm}^+	0.663	1.417	2.239	3.153	4.159	5.233	6.398	7.632
t_{fc}^+	0.777	1.897	3.313	5.004	6.969	9.163	11.585	14.213

$q_p^+ = 1.8$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.229	0.229	0.229	0.229	0.229	0.229	0.229	0.229
t_{fm}^+	0.594	1.257	2.033	2.879	3.815	4.821	5.895	7.040
t_{fc}^+	0.708	1.759	3.083	4.707	6.550	8.660	10.968	13.510

$q_p^+ = 2$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.183	0.183	0.183	0.183	0.183	0.183	0.183	0.183
t_{fm}^+	0.663	1.417	2.239	3.153	4.159	5.233	6.398	7.632
t_{fc}^+	0.777	1.897	3.313	5.004	6.969	9.163	11.585	14.213

Tableaux A.1.b : Résultats de la simulation pour une plaque plane

$q_p^+ = 2.5$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.114	0.114	0.114	0.114	0.114	0.114	0.114	0.114
t_{fm}^+	0.434	0.960	1.554	2.262	3.016	3.862	4.776	5.758
t_{fc}^+	0.548	1.440	2.582	3.976	5.598	7.449	9.506	11.768

$q_p^+ = 3$

e^+	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fp}^+	0.091	0.091	0.091	0.068	0.068	0.068	0.091	0.091
t_{fm}^+	0.366	0.823	1.371	1.988	2.674	3.450	4.296	5.187
t_{fc}^+	0.480	1.280	2.354	3.656	5.164	6.900	8.820	10.945

Tableaux A.1.c : Résultats de la simulation pour une plaque plane

En exploitant ces résultats, on peut tracer pour les points situés au quart de l'épaisseur ($X^+ = e^+/2$) et au cœur de la plaque ($X^+ = 0$), les courbes donnant le temps de fusion adimensionnel en fonction de e^+ (mi-épaisseur de la plaque) et la densité de flux de chauffage q_p^+

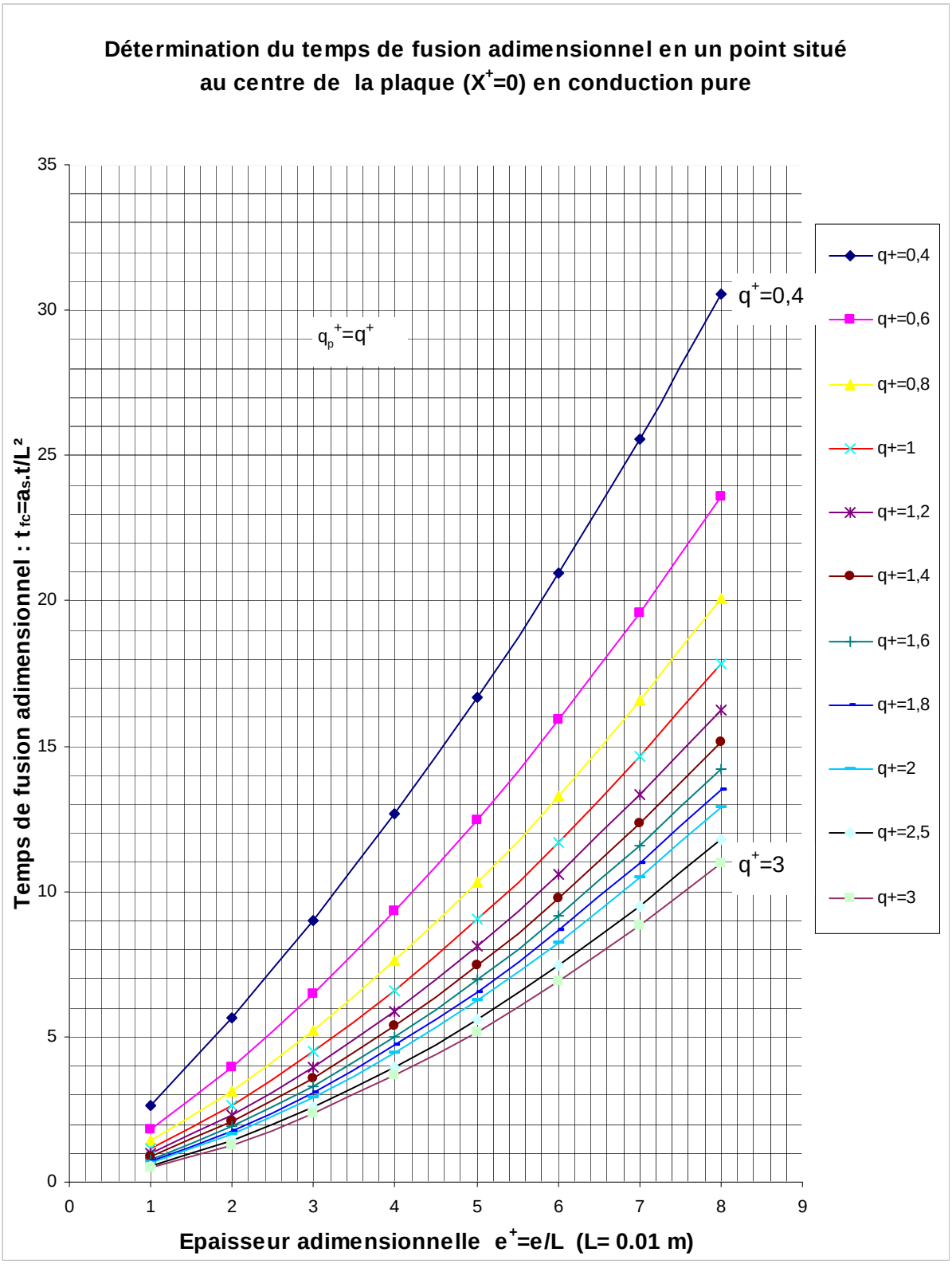


Figure A.2 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel au centre de la plaque $X^+ = 0$ en fonction de e^+ (mi- épaisseur de la plaque) et la densité de flux de chauffage q_p^+

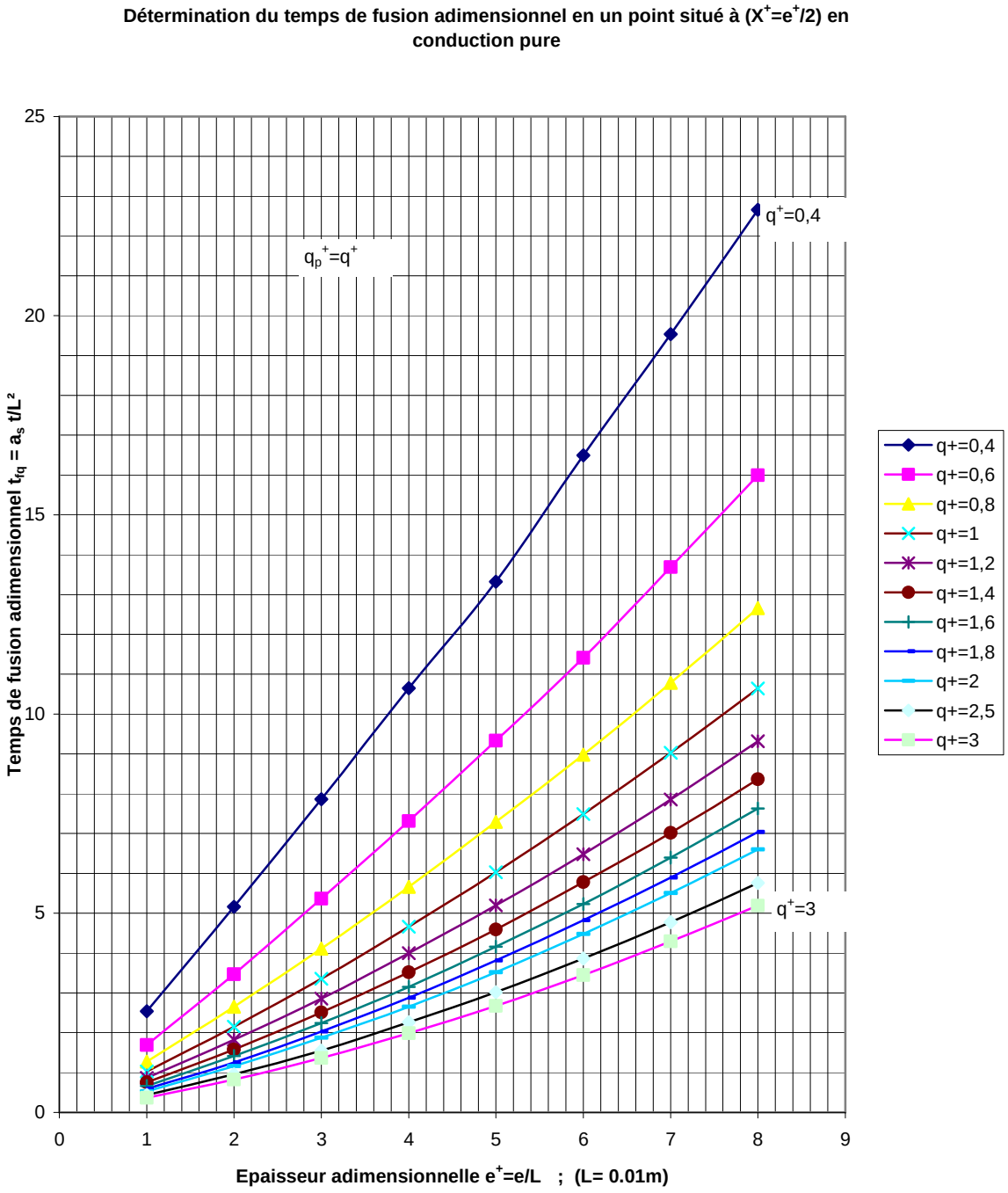


Figure A.3 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel à $X^+ = e^+/2$ *en fonction de* e^+ *(mi-épaisseur de la plaque) et la densité de flux de chauffage* q_p^+

Cas test pour la conduction pure (cas de la plaque plane)

La solution analytique de ce problème 1D de conduction pure sous forme adimensionnelle aura l'expression suivante :

$$T^+(x^+,t^+) = q_p^+ \sum_{n=0}^{\infty} \left\{ 2\left(\frac{t^+}{\pi}\right)^{1/2} \left[\exp^{\frac{-(e^+ + x^+ + 2ne^+)^2}{4 \cdot t^+}} + \exp^{\frac{-(e^+ - x^+ + 2ne^+)^2}{4 \cdot t^+}} \right] - (e^+ + x^+ + 2ne^+)\, erfc\left(\frac{(e^+ + x^+ + 2ne^+)}{2(t^+)^{1/2}} \right) - (e^+ + x^+ + 2ne^+)\, erfc\left(\frac{(e^+ + x^+ + 2ne^+)}{2(t^+)^{1/2}} \right) \right\}$$

Un cas test pour comparer le résultat numérique et la solution analytique pour différentes valeurs de x^+ et de t^+ se résume dans les tableaux suivants :

1) Résultat numérique pour la température adimensionnelle T^+

Nous prenons pour ce cas test une intensité de flux $q_p^+ = 1$.

x^+ \ t^+	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.667
0	0	0.007	0.061	0.143	0.236	0.334	0.433	0.500
0.5	0	0.058	0.157	0.257	0.357	0.457	0.557	0.625
1	0	0.355	0.504	0.622	0.728	0.831	0.932	1.000

2) Solution analytique de la température adimensionnelle T^+

x^+ \ t^+	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.667
0	0	0.007	0.061	0.143	0.237	0.334	0.433	0.501
0.5	0	0.059	0.158	0.258	0.358	0.458	0.558	0.625
1	0	0.356	0.505	0.622	0.729	0.831	0.932	1.000

Tableaux A.1.d : Résultat numérique et solution analytique de la température T^+

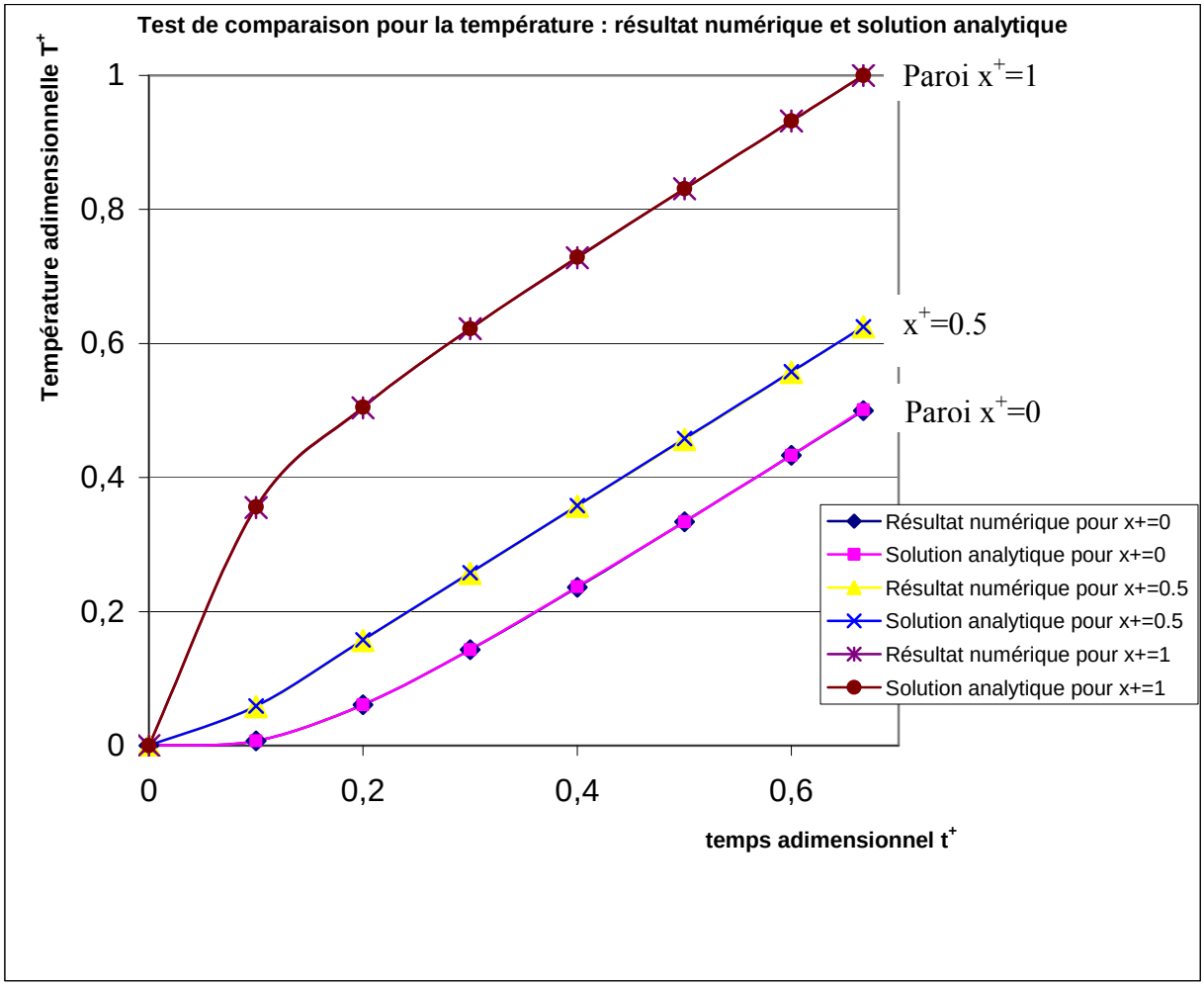


Figure A.4 : Comparaison du résultat numérique et de la solution analytique pour une plaque plane en conduction pure soumise à une condition de flux

Test de convergence pour la température adimensionnelle T⁺ : $epsi = \dfrac{T^{n+1^+}_{(i,j)Max} - T^{n^+}_{(i,j)Max}}{T^{n+1^+}_{(i,j)Max}}$

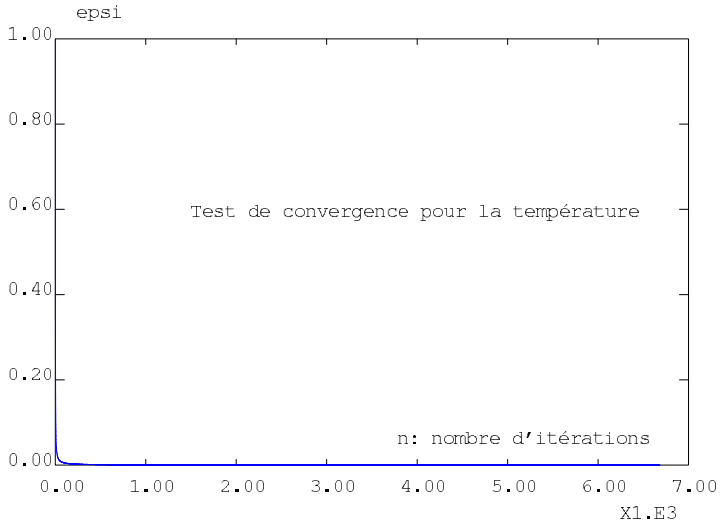


Figure A.5 : Test de convergence pour la température adimensionnelle T^+

Étude d'un cylindre plein à section circulaire

Formulation du problème thermique

On considère un cylindre plein de rayon R et de hauteur h_c, auquel on applique une densité de flux de chauffage q_{cy} sur sa paroi latérale. Le flux de chauffage est dirigé suivant la direction $\vec{r}$

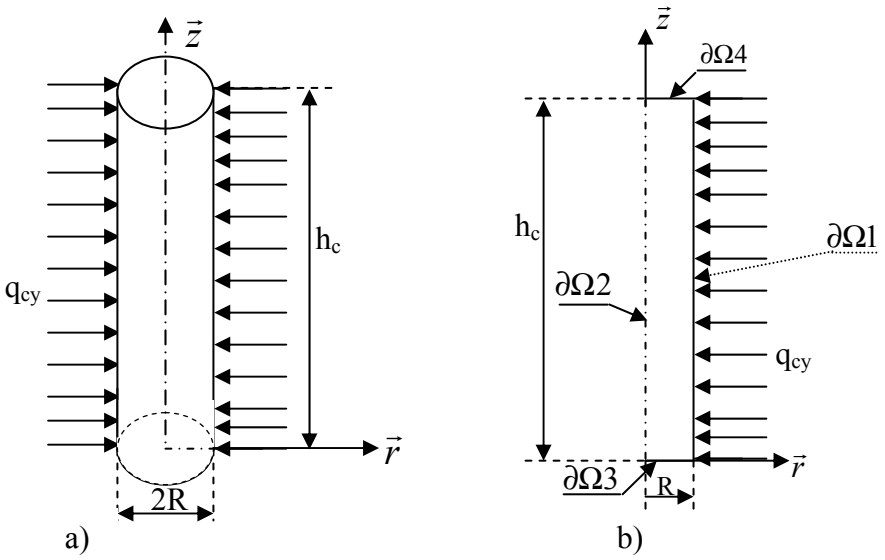


Figure A.6 : a) Cylindre soumis sur sa paroi latérale à une densité de flux de chauffage q_{cy}
b) Cas axisymétrique

Dans cette étude, nous allons prendre un cylindre ayant le même volume et la même puissance de chauffage que ceux de la plaque plane étudiée précédemment. On impose un rayon R égale à la moitié de l'épaisseur (2.e) de la plaque soit (R= e) et on exprime la hauteur du cylindre hc en fonction de dimensions de la plaque (hp et e).

Le volume de la plaque est : $V_p = 2e.h_P$ (A15)

Le volume du cylindre est : $V_c = \pi R^2.h_C$ (A16)

Pour un même volume de la plaque et du cylindre, $V_c = V_p$, on a :

$h_c = 2.h_p / \pi.e$ (A17)

Puissance de chauffage nécessaire pour la plaque : $P_P = 2.q_P.1.h_P$ (A18)

Puissance de chauffage nécessaire pour le cylindre : $P_c = 2.\pi.R.h_c q_{cy}$ (A19)

En égalisant les 2 puissances et en remplaçant h_c par sa valeur on obtient :

$q_{cy} = q_P / 2$ (A20)

Donc la densité de flux à imposer sur la paroi du cylindre à section circulaire est la moitié de celle imposée sur les deux faces de la plaque.

La symétrie axiale et la symétrie du chargement thermique figure A.1.b permettent de traiter ce problème comme un problème axisymétrique en r et z. Les bases inférieure et supérieure du cylindre sont considérées comme adiabatiques. L'équation de la chaleur adimensionnelle en conduction pure s'écrit avec les mêmes grandeurs adimensionnelles que dans le chapitre 3 comme suit :

$$\frac{\partial T^+}{\partial t^+} = \Delta T^+ \qquad sur\,\Omega \tag{A21}$$

- Condition initiale :

$$T^+(R^+, Z^+, t^+ = 0) = 0 \quad \text{dans}\,\Omega \tag{A22}$$

- **Conditions aux limites** :

Les conditions aux limites sur les bords du cylindre s'écrivent :

$$\frac{\partial T^+(R^+ = R/L,\, Z^+,\, t^+)}{\partial R^+} = q_{Cy}^+ \quad \text{sur}\,\partial\Omega 1 \tag{A23}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+ = 0,\, Z^+,\, t^+)}{\partial R^+} = 0 \qquad \text{sur}\,\partial\Omega 2 \tag{A24}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+,\, Z^+ = 0,\, t^+)}{\partial Z^+} = 0 \qquad \text{sur}\,\partial\Omega 3 \tag{A25}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+,\, Z^+ = h_C/L,\, t^+)}{\partial Z^+} = 0 \quad \text{sur}\,\partial\Omega 4 \tag{A26}$$

De même que pour la plaque, l'utilisation d'une méthode variationnelle permet la discrétisation spatiale de l'équation de la chaleur adimensionnelle sous la forme :

$$M_C \dot{T}^+ + K_C T^+ = F_C \tag{A27}$$

Où M_C est la matrice de capacité, K_C est la matrice de conductivité et F_p le second membre du flux thermique imposé (q_{Cy}^+).

Pour $\dot{T}^+$ La discrétisation temporelle est telle que :

$$\begin{cases} \dot{T}^+ = \dfrac{T_{n+1}^+ - T_n^+}{\Delta\tau} \\ T^+ = T_n^+ \end{cases} \tag{A28}$$

Injecté dans l'équation (A.27) au temps τ_n, ce résultat donne :

$$M_C \frac{T_{n+1}^+ - T_n^+}{\Delta\tau} + K_C T_n^+ = F_{Cn} \tag{A29}$$

Dans ce cas, l'équation de la chaleur discrétisée devient :

$$\frac{M_C}{\Delta\tau} T_{n+1}^+ = \frac{M_C}{\Delta\tau} T_n^+ - K_C T_n^+ + F_{Cn} \tag{A30}$$

On pose alors :

$$\begin{cases} A_C = \dfrac{M_C}{\Delta\tau} \\ B_C = \dfrac{M_C}{\Delta\tau} - K_C \end{cases} \tag{A31}$$

On obtient finalement :

$$A_C H_{n+1}^{+} = B_C T_n^{+} + F_{Cn} \tag{A32}$$

Ce schéma explicite nécessite un critère de stabilité sur le pas de temps Δτ. Ce critère doit vérifier parmi ces deux expressions (A13 et A14) suivantes le pas de temps le plus petit :

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta r_M^{+})^2} \leq \frac{1}{2} \tag{A33}$$

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta z_M^{+})^2} \leq \frac{1}{2} \tag{A34}$$

Avec Δr_M^{+} et Δz_M^{+} taille de la maille suivant les directions $\vec{r}^{+}$ et $\vec{Z}^{+}$

Résolution numérique

La résolution de l'équation de la chaleur adimensionnelle en conduction pure pour le cylindre, se déroule de la même manière que pour la plaque. Elle permet de déterminer le champ thermique dans tout le cylindre. De même, Nous allons étudier le cas du cylindre avec différents rayons et différentes densités de flux de chauffage, selon les expressions (A17 et A20).

Le maillage adopté est un maillage rectangulaire régulier pour tous les cas simulés : (13x97) nœuds et le pas de temps adimensionnel est $\Delta\tau = 10^{-4}$.

On calcule les temps de fusion adimensionnels, aux points situés sur une même section transversale de coordonnées: Pcp ($R^{+} = R/L$, $h_C^{+}/2$) ; Pcq ($R^{+} = R/2L$, $h_C^{+}/2$) ; Pcc (0, $h_C^{+}/2$) avec les notations suivantes :

t_{fp}^{+} : Temps de fusion adimensionnel au point Pcp

t_{fq}^{+} : Temps de fusion adimensionnel au point Pcq

t_{fc}^{+} : Temps de fusion adimensionnel au point Pcc

Les résultats de la simulation pour différents rayons, hauteurs et densités de flux de chauffage sont reportés dans les tableaux suivants :

$q_{cy}^{+} = 0.1$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	4.867	9.483	13.870	17.983	21.867	25.501	28.860	31.990
t_{fq}^{+}	5.050	10.237	15.561	20.999	26.552	32.241	38.068	44.009
t_{fc}^{+}	5.118	10.488	16.132	22.005	28.151	34.526	41.176	48.076

Tableau A.2.a : Résultats de la simulation pour un cylindre à section circulaire

$q_{cy}^{+} = 0.2$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	2.354	4.479	6.352	7.998	9.369	10.534	11.471	12.248
t_{fq}^{+}	2.559	5.237	8.043	10.991	14.053	17.252	20.565	23.993
t_{fc}^{+}	2.605	5.484	8.615	11.996	15.652	19.537	23.673	28.060

$q_{cy}^{+} = 0.3$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	1.531	2.811	3.862	4.684	5.278	5.735	6.078	6.352
t_{fq}^{+}	1.714	3.565	5.552	7.655	9.894	12.248	14.715	17.797
t_{fc}^{+}	1.782	3.816	6.124	8.683	11.471	14.510	17.800	21.342

$q_{cy}^{+} = 0.4$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	1.120	1.988	2.628	3.062	3.359	3.565	3.725	3.862
t_{fq}^{+}	1.303	2.742	4.296	5.987	7.792	9.711	11.745	13.893
t_{fc}^{+}	1.371	2.993	4.867	6.992	9.369	11.996	14.830	17.892

$q_{cy}^{+} = 0.5$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.868	1.485	1.897	2.148	2.308	2.445	2.514	2.605
t_{fq}^{+}	1.051	2.239	3.542	4.981	6.535	8.203	9.963	11.813
t_{fc}^{+}	1.120	2.491	4.113	5.987	8.112	10.442	13.025	15.789

$q_{cy}^{+} = 0.6$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.686	1.165	1.417	1.577	1.691	1.760	1.828	1.851
t_{fq}^{+}	0.891	1.897	3.039	4.319	5.690	7.152	8.729	10.420
t_{fc}^{+}	0.937	2.148	3.610	5.324	7.244	9.414	11.768	14.350

Tableaux A.2.b : Résultats de la simulation pour un cylindre à section circulaire

$q_{cy}^{+} = 0.7$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.571	0.937	1.097	1.211	1.280	1.325	1.371	1.394
t_{fq}^{+}	0.754	1.668	2.696	3.839	5.073	6.421	7.860	9.391
t_{fc}^{+}	0.823	1.919	3.268	4.821	6.627	8.637	10.854	13.276

$q_{cy}^{+} = 0.8$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.480	0.754	0.891	0.960	1.005	1.051	1.074	1.097
t_{fq}^{+}	0.686	1.485	2.422	3.473	4.616	5.850	7.175	8.592
t_{fc}^{+}	0.731	1.737	2.993	4.456	6.147	8.066	10.168	12.453

$q_{cy}^{+} = 0.9$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.411	0.612	0.731	0.777	0.823	0.845	0.868	0.868
t_{fq}^{+}	0.617	1.348	2.217	3.176	4.250	5.393	6.650	7.975
t_{fc}^{+}	0.663	1.600	2.765	4.159	5.781	7.586	9.597	11.791

$q_{cy}^{+} = 1$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.366	0.526	0.594	0.640	0.663	0.686	0.708	0.731
t_{fq}^{+}	0.548	1.234	2.034	2.948	3.953	5.050	6.215	7.472
t_{fc}^{+}	0.617	1.485	2.605	3.930	5.484	7.221	9.140	11.242

$q_{cy}^{+} = 1.25$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.274	0.366	0.411	0.434	0.457	0.457	0.457	0.480
t_{fq}^{+}	0.457	1.028	1.737	2.514	3.405	4.364	5.416	6.558
t_{fc}^{+}	0.526	1.280	2.285	3.496	4.913	6.512	8.295	10.237

Tableaux A.2.c : Résultats de la simulation pour un cylindre à section circulaire

$q_{cy}^{+} = 1.5$

R^{+}	1	2	3	4	5	6	7	8
h_C^{+}	1.273	0.636	0.424	0.318	0.254	0.212	0.181	0.159
t_{fp}^{+}	0.206	0.251	0.297	0.297	0.320	0.320	0.320	0.343
t_{fq}^{+}	0.388	0.891	1.508	2.239	3.039	3.907	4.867	5.895
t_{fc}^{+}	0.457	1.143	2.079	3.199	4.502	6.010	7.678	9.506

Tableau A.2.d : Résultats de la simulation pour un cylindre à section circulaire

En exploitant ces résultats, on peut de même, tracer pour les points situés à mi-rayon ($R^{+} = R/2$) et au cœur du cylindre ($R^{+} = 0$), les courbes donnant le temps de fusion adimensionnel en fonction du rayon R^{+} et la densité de flux de chauffage q_{cy}^{+}

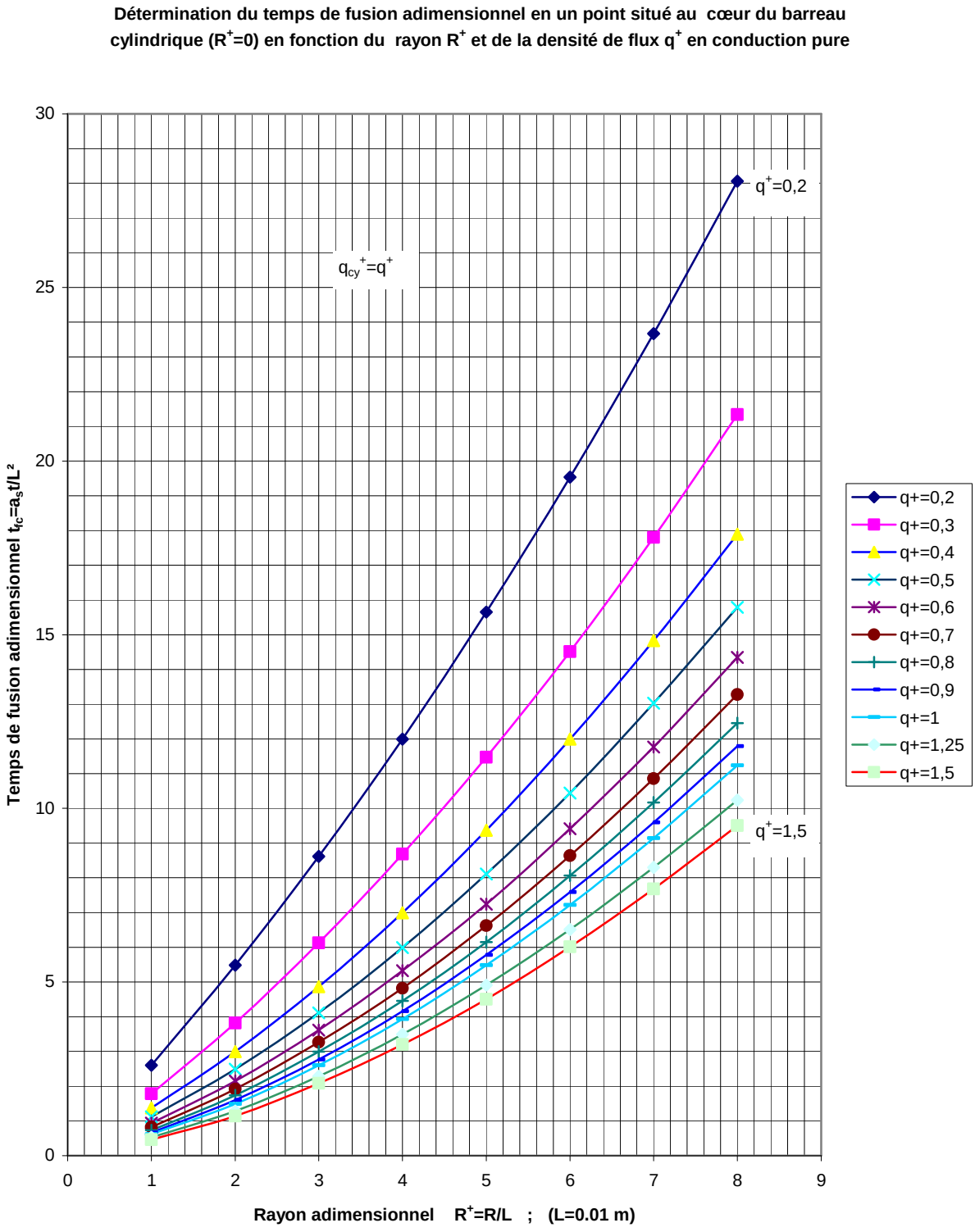


Figure A.7 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel au coeur du cylindre($R^+ = 0$) en fonction du rayon du barreau cylindrique choisi et de la densité de flux de chauffage q_{cy}^+ en conduction pure

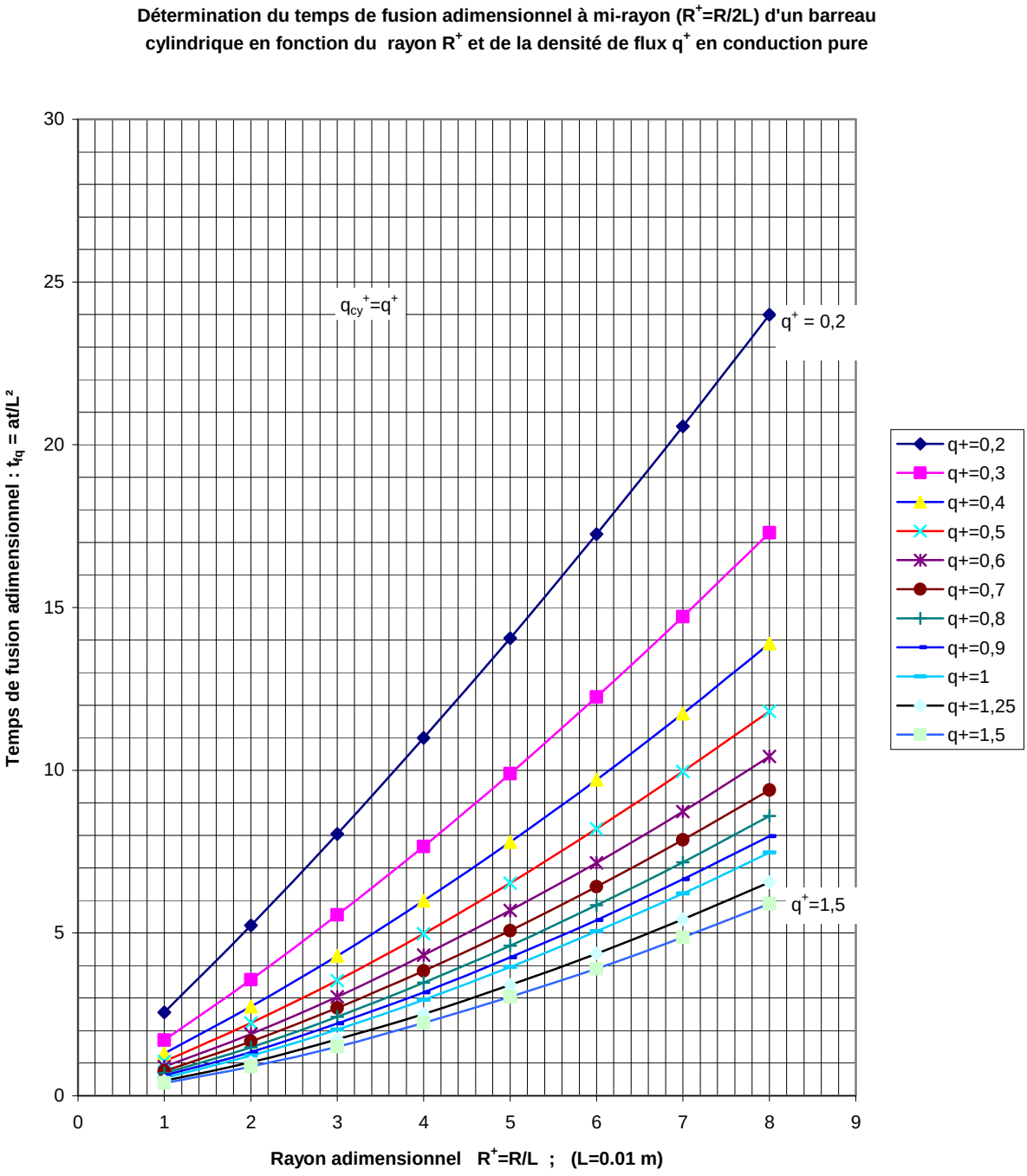


Figure A.8 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel à mi-rayon d'un cylindre ($R^+ = R/2L$) en fonction du rayon du barreau cylindrique choisi et de la densité de flux de chauffage q^+_{cy} en conduction pure

Comparaison du temps de fusion en conduction pure entre plaque plane et cylindre à section circulaire

Si nous choisissons pour comparer le temps de fusion entre plaque et cylindre pour deux intensités correspondantes à ($q_p^+ = 2\,q_{cy}^+ = 0.4$; $q_p^+ = 2\,q_{cy}^+ = 2$) et nous traçons les courbes donnant le temps de fusion adimensionnel en fonction du rayon ou de l'épaisseur respectivement pour le cylindre et la plaque, nous observons un meilleur temps de fusion dans le cas du cylindre à section circulaire que dans le cas de la plaque plane. L'amélioration est d'autant meilleure quand le rayon ou l'épaisseur augmente (cf. figure A.6).

$q_p^+ = 2\,q_{cy}^+ = 0.4$

$e^+ = R^+$	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fc}^+ cylindre	2.605	5.484	8.615	11.996	15.652	19.537	23.673	28.060
t_{fc}^+ plaque	2.650	5.667	8.979	12.657	16.650	20.973	25.578	30.547

$q_p^+ = 2\,q_{cy}^+ = 2$

$e^+ = R^+$	1	2	3	4	5	6	7	8
t_{fc}^+ cylindre	0.617	1.485	2.605	3.930	5.484	7.221	9.140	11.242
t_{fc}^+ plaque	0.777	1.897	3.313	5.004	6.969	9.163	11.585	14.213

Tableaux A.3 : Temps de fusion adimensionnel à cœur pour une plaque plane et un cylindre à section circulaire

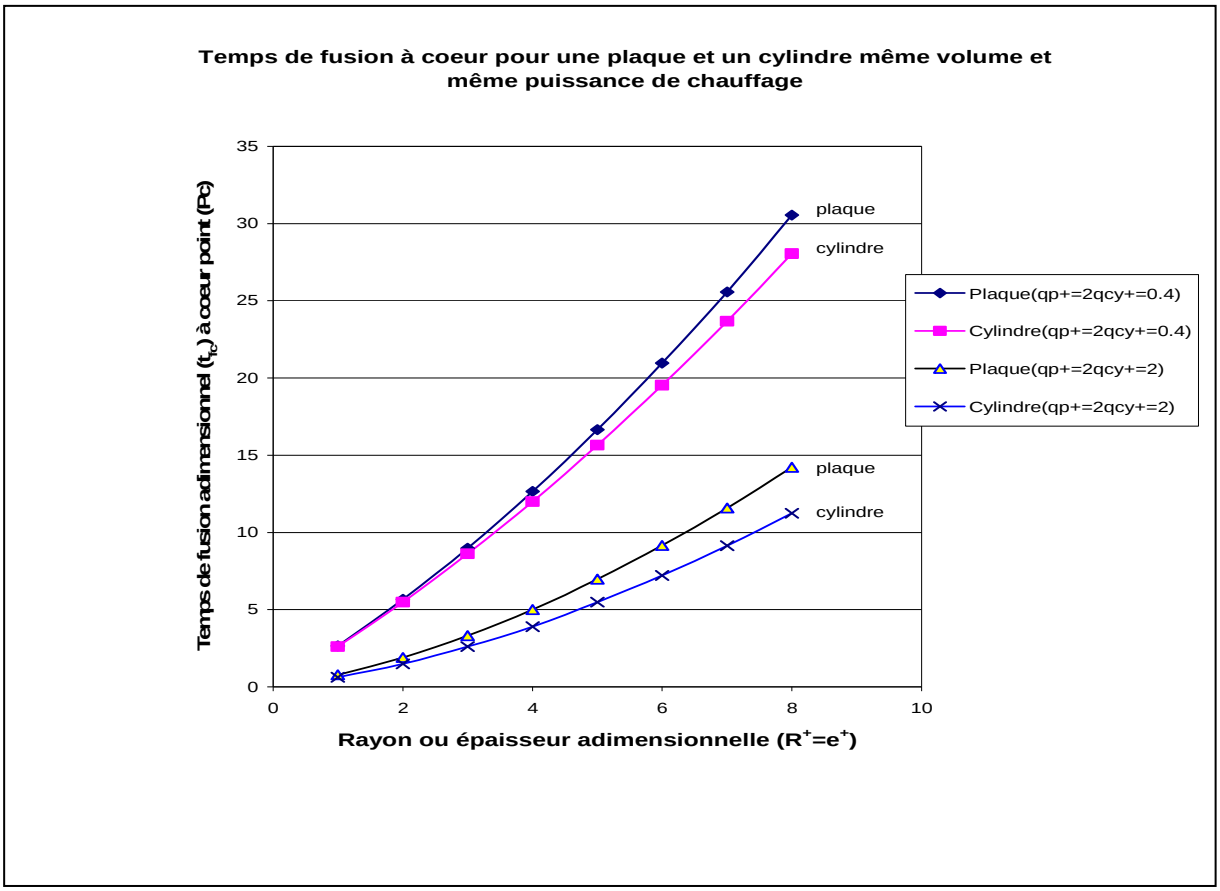


Figure A.9 : Comparaison du temps de fusion entre plaque plane et cylindre à section circulaire en conduction pure

Annexe B

Étude de la conduction avec changement de phase

Dans l'annexe A, l'étude était menée en conduction pure. Cette étude nous a permis de conclure ne serait-ce que partiellement sur la géométrie du barreau à adopter afin d'optimiser sur le temps de fusion et par suite minimiser l'énergie thermique mise en jeu dans le processus de purification.

Dans la présente annexe nous allons introduire la chaleur latente de fusion en étudiant la conduction avec changement de phase. Le cas du matériau étudié est le silicium pur. Pour conclure sur le choix de la géométrie à adopter dans notre étude de processus de purification, nous allons étudier le cas d'un cylindre à section circulaire et le cas d'un cylindre à section carrée, et par la suite nous pouvons confirmer ou infirmer la conclusion sur l'étude précédente de l'annexe A. Nous allons tout d'abord entreprendre une étude complète pour le cylindre à section circulaire de façon à pouvoir exploiter les résultats obtenus et tracer de même que, dans le cas de la conduction pure sans changement de phase, des faisceaux des courbes, permettant la détermination aisée, du temps de fusion, à cœur ou à mi-rayon, en fonction du rayon du barreau et de la densité de flux de chauffage, appliquée sur une tranche de cylindre de largeur $dz_{cy.}$ Et dans une deuxième étape, faire quelques cas de la géométrie carrée en 3D pour confirmer le choix de la géométrie adoptée.

Étude d'un cylindre plein à section circulaire

Formulation du problème thermique

On considère un cylindre plein de rayon R et de hauteur h_c, auquel on applique une densité de flux de chauffage q_c sur une de ses tranches de largeur dz_{cy}. Le flux de chauffage est dirigé suivant la direction $\vec{r}$

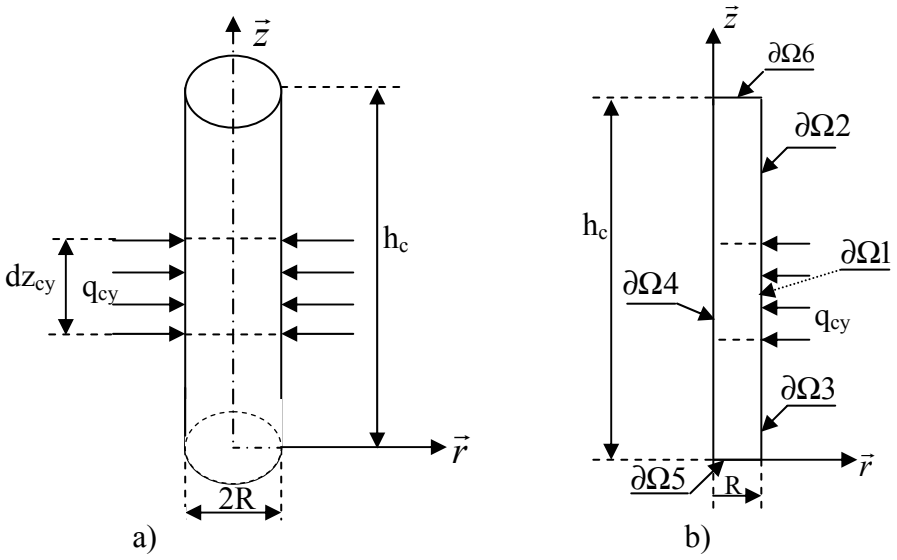


Figure B.1 : a) Cylindre soumis sur une de ses tranches de largeur dz_{cy} à une densité de flux de chauffage q_{cy} ; b) Problème axisymétrique

La symétrie axiale et la symétrie du chargement thermique permettent de traiter ce problème comme un problème axisymétrique en r et z (figure B1.b). Les bases inférieure et supérieure du cylindre sont considérées comme adiabatiques. L'équation de la chaleur adimensionnelle en conduction plus changement de phase s'écrit :

$$\frac{\partial H^+}{\partial t^+} = div([(1-f_l)+\tilde{\lambda} f_l]grad\, T^+) \qquad sur\,\Omega \tag{B1}$$

- Conditions initiales :

$$H^+(R^+,Z^+,t^+=0)=0 \tag{B2}$$

$$T^+(R^+,Z^+,t^+=0)=0 \tag{B3}$$

- **Conditions aux limites** :

Les conditions aux limites s'écrivent en terme de T^+

$$\frac{\partial T^+(R^+=R/L,\, Z^+,t^+)}{\partial R^+} = q^+_{cy} \quad \text{sur } \partial\Omega 1 \tag{B4}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+=R/L,\, Z^+,t^+)}{\partial R^+} = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega 2 \tag{B5}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+=R/L,\, Z^+,t^+)}{\partial R^+} = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega 3 \tag{B6}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+=0,\, Z^+,t^+)}{\partial R^+} = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega 4 \tag{B7}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+,\, Z^+=0,t^+)}{\partial Z^+} = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega 5 \tag{B8}$$

$$\frac{\partial T^+(R^+,\, Z^+=h_C/L,\, t^+)}{\partial Z^+} = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega 6 \tag{B9}$$

L'utilisation d'une méthode variationnelle permet la discrétisation spatiale de l'équation de l'énergie sous la forme :

$$M_{Cs}\dot{H}^+ + K_{Cf}T^+ = F_{Cf} \tag{B10}$$

Où M_{Cf} est la matrice de capacité, K_{Cf} est la matrice de conductivité et F_{pf} le second membre du flux thermique q^+_C.

Pour $\dot{H}^+$ La discrétisation temporelle est telle que :

$$\begin{cases} \dot{H}^+ = \dfrac{H^+_{n+1}-H^+_n}{\Delta\tau} \\ T^+ = T^+_n \end{cases} \tag{B11}$$

Injecté dans l'équation (B.10) au temps τ_n, ce résultat donne :

$$M_{Cf}\frac{H_{n+1}^{+}-H_{n}^{+}}{\Delta\tau}+K_{Cf}\,T_{n}^{+}=F_{Cfn} \qquad \text{(B12)}$$

Dans ce cas, l'équation de la chaleur adimensionnelle discrétisée devient :

$$\frac{M_{Cf}}{\Delta\tau}H_{n+1}^{+}=\frac{M_{Cf}}{\Delta\tau}H_{n}^{+}-K_{Cf}\,T_{n}^{+}+F_{Cfn} \qquad \text{(B13)}$$

On pose :

$$\begin{cases} A_{Cf}=\dfrac{M_{Cf}}{\Delta\tau} \\ B_{Cf}=K_{Cf} \end{cases} \qquad \text{(B14)}$$

On obtient finalement :

$$A_{Cf}H_{n+1}^{+}=A_{Cf}H_{n}^{+}-B_{Cf}T_{n}^{+}+F_{Cn} \qquad \text{(B15)}$$

Ce schéma explicite nécessite le même critère de stabilité sur le pas de temps $\Delta\tau$ que dans le cas du chapitre 4. On doit prendre le plus petit pas de temps vérifiant les deux critères (B16 et B17) suivants :

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta r_{M}^{+})^{2}}\leq\frac{1}{2} \qquad \text{(B16)}$$

$$\frac{\Delta\tau}{(\Delta z_{M}^{+})^{2}}\leq\frac{1}{2} \qquad \text{(B17)}$$

Avec Δr_{M}^{+} et Δz_{M}^{+} taille de la maille suivant les directions $\vec{r}^{+}$ et $\vec{Z}^{+}$

3.4.1.2 La relation entre H^{+} et T^{+} (cf. chapitre 3) donne :

♦ **Dans la zone liquide**

$$H^{+}=1+\frac{1}{Ste}+\tilde{c}(T^{+}-1) \qquad T^{+}>1 \qquad \text{(B18)}$$

♦ **A l'interface**

$$H^{+}=1+\frac{f_{l}}{Ste} \qquad T^{+}=1 \qquad \text{(B19)}$$

♦ **Dans la zone solide**

$$H^{+}=T^{+} \qquad T^{+}<1 \qquad \text{(B20)}$$

Données et propriétés du matériau silicium

h_{c}^{+}	dz_{Cy}^{+}	H_{i}^{+}	T_{i}^{+}	a_{s}	a_{l}	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
8	1.6	0	0	5.0410^{-5}	2.9110^{-5}	0.8	0.5964	1.276

Tableau B.1 : Données pour la simulation de différents cas

Résolution numérique

La résolution de l'équation de l'énergie dans le cas du cylindre se déroule de la même manière que dans le problème thermique du chapitre 4. Elle permet de déterminer le champ thermique dans tout le cylindre. Différents cas de simulations pour le cylindre avec différents rayons et différentes densités de flux de chauffage ont été réalisés. La hauteur adimensionnelle du cylindre h_C^+ est fixée pour tous les cas simulés à 8, la largeur adimensionnelle dz_{Cy}^+ de la tranche à fondre est prise pour tous les cas égale à $h_C^+/5$, soit dz_{Cy}^+=1.6

Le maillage adopté est un maillage rectangulaire régulier : (11x101). Les pas d'espaces sont : ($\Delta r_M^+ = R^+/10$) et ($\Delta z_M^+ = h_c^+/100 = 8.10^{-2}$) et le pas de temps adimensionnel est $\Delta\tau = 10^{-4}$.

On définie 3 points (Pcc, Pcq et Pcp) respectivement sur l'axe, à mi-rayon et à la paroi, situés sur une même section radiale, de coordonnées :

Pcp : ($R^+ = R/L$, $h_C^+/2$)

Pcq : ($R^+ = R/2L$, $h_C^+/2$)

Pcc : (0, $h_C^+/2$)

Les résultats du calcul numérique, en ces 3 points, du temps de fusion adimensionnels et de la température adimensionnelle atteinte, dans le barreau, au temps nécessaire à la fusion du cœur de la tranche (point Pcc), pour différents rayons et différentes densités de flux de chauffage sont reportés dans les tableaux B.2. Les notations adoptées sont les suivantes :

t_{fp}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Pcp

t_{fq}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Pcq

t_{fc}^+ : Temps de fusion adimensionnel au point Pcc

T_p^+ : Température adimensionnelle au point Pcp

T_q^+ : Température adimensionnelle au point Pcq

T_c^+ : Température adimensionnelle au point Pcc

$q_{cy}^+ = 0.5$

R^+	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^+	0.785	2.002	3.475	5.063	6.650	8.173
t_{fq}^+	1.548	1.325	8.127	12.475	17.157	22.157
t_{fc}^+	1.97	5.777	11.063	17.254	24.188	31.896
T_p^+	1.309	1.470	1.599	1.702	1.782	1.846
T_q^+	1.166	1.213	1.244	1.266	1.279	1.288
T_c^+	1.001	1.000	1.001	1.000	1.000	1.000

Tableau B.2.a : Résultats de la simulation pour une géométrie à section circulaire

$q_{cy}^{+} = 1$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.314	0.662	0.988	1.268	1.502	1.698
t_{fq}^{+}	0.703	1.818	3.418	5.502	7.982	10.739
t_{fc}^{+}	0.931	2.614	5.173	8.523	12.458	16.861
T_{p}^{+}	1.590	1.899	2.127	2.316	2.474	2.607
T_{q}^{+}	1.307	1.390	1.429	1.459	1.485	1.504
T_{c}^{+}	1.004	1.002	1.002	1.000	1.000	1.000

$q_{cy}^{+} = 1.25$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.237	0.469	0.660	0.811	0.932	1.034
t_{fq}^{+}	0.556	1.409	2.626	4.234	6.206	8.462
t_{fc}^{+}	0.747	2.072	4.098	6.815	10.088	13.797
T_{p}^{+}	1.721	2.106	2.388	2.625	2.808	2.972
T_{q}^{+}	1.369	1.471	1.518	1.550	1.577	1.600
T_{c}^{+}	1.005	1.000	1.001	1.000	1.001	1.000

$q_{cy}^{+} = 1.5$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.190	0.354	0.478	0.571	0.648	0.713
t_{fq}^{+}	0.462	1.154	2.138	3.444	5.070	6.971
t_{fc}^{+}	0.628	1.730	3.416	5.705	8.516	11.743
T_{p}^{+}	1.846	2.307	2.643	2.911	3.137	3.331
T_{q}^{+}	1.427	1.549	1.604	1.638	1.666	1.691
T_{c}^{+}	1.004	1.002	1.001	1.001	1.001	1.001

$q_{cy}^{+} = 1.75$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.157	0.280	0.366	0.431	0.485	0.532
t_{fq}^{+}	0.397	0.982	1.810	2.911	4.294	5.934
t_{fc}^{+}	0.545	1.494	2.948	4.933	7.401	10.273
T_{p}^{+}	1.968	2.504	2.896	3.204	3.463	3.686
T_{q}^{+}	1.481	1.622	1.687	1.724	1.753	1.779
T_{c}^{+}	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000

Tableaux B.2.b : Résultats de la simulation pour une géométrie à section circulaire

$q_{cy}^{+} = 2$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.133	0.228	0.292	0.341	0.382	0.418
t_{fq}^{+}	0.349	0.857	1.575	2.531	3.736	5.177
t_{fc}^{+}	0.484	1.322	2.608	4.368	6.579	9.171
T_{p}^{+}	2.085	2.697	3.145	3.495	3.787	4.037
T_{q}^{+}	1.533	1.694	1.767	1.807	1.837	1.864
T_{c}^{+}	1.003	1.003	1.002	1.001	1.000	1.000

$q_{cy}^{+} = 2.5$

R^{+}	0.5	1	1.5	2	2.5	3
t_{fp}^{+}	0.101	0.162	0.203	0.235	0.262	0.287
t_{fq}^{+}	0.283	0.690	1.263	2.026	2.992	4.157
t_{fc}^{+}	0.400	1.089	2.146	3.600	5.443	7.634
T_{p}^{+}	2.313	3.073	3.632	4.069	4.427	4.732
T_{q}^{+}	1.629	1.827	1.919	1.968	2.001	2.028
T_{c}^{+}	1.001	1.002	1.002	1.001	1.000	1.000

Tableaux B.2.c : Résultats de la simulation pour une géométrie à section circulaire

En exploitant ces résultats on peut de même tracer pour les points situés à mi-rayon ($R^{+} = R/2$) et au cœur du cylindre ($R^{+} = 0$), les courbes donnant le temps de fusion adimensionnel en fonction du rayon R^{+} et de la densité de flux de chauffage q_{cy}^{+}

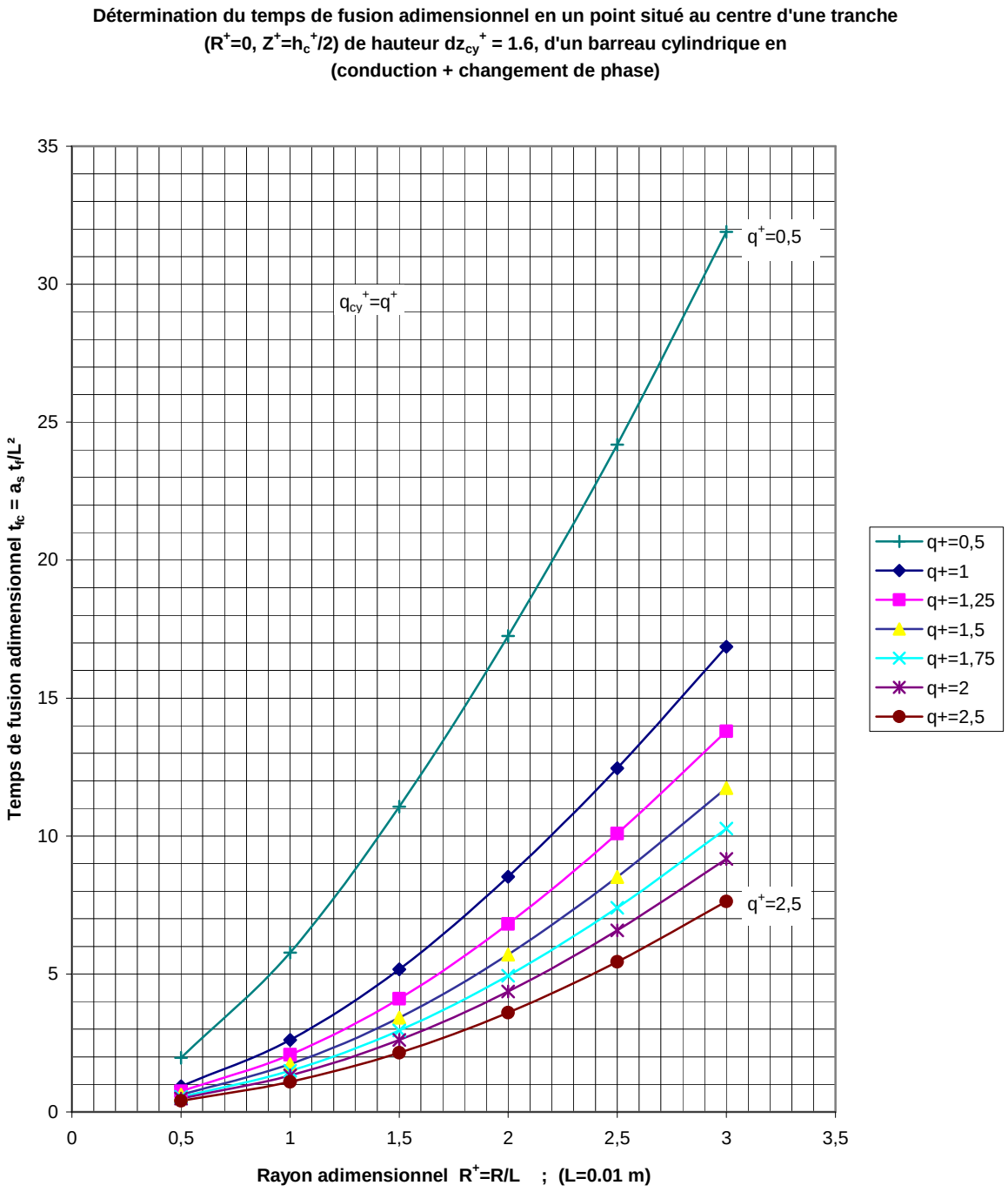


Figure B.2 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel au cœur d'une tranche ($R^+ = 0$) d'un cylindre en fonction de son rayon et de la densité de flux de chauffage q_{cy}^+ en (conduction + changement de phase)

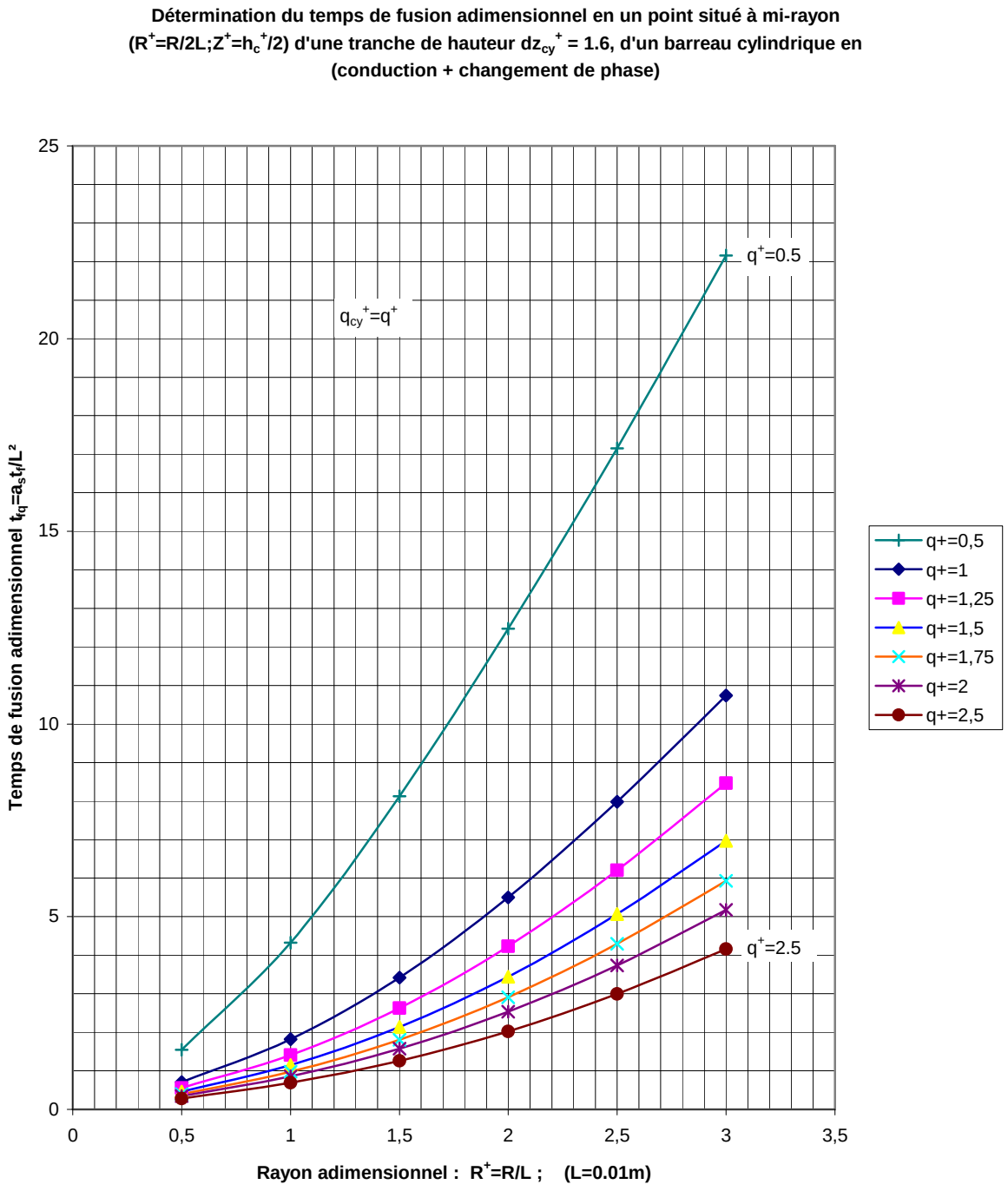


Figure B.3 : Faisceaux des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel à mi-rayon d'une tranche ($R^+ = R/2L$) d'un cylindre en fonction de son rayon et de la densité de flux de chauffage q^+_{cy} en (conduction + changement de phase)

Ces faisceaux des courbes ont l'avantage de donner une première idée aussi proche que possible sur le temps de fusion nécessaire pour fondre à cœur ou à mi-rayon, une tranche de largeur dz_{Cy}^{+}=1.6, prise dans un barreau cylindrique, à différents rayons R^{+}et soumise à différentes densités de flux de chauffage q_{cy}^{+}, dans des conditions d'adiabaticité de la paroi en dehors de la tranche à fondre et sur les bases du cylindre. Il suffit donc de fixer le rayon et la densité de flux de chauffage et on pourra en déduire le temps de fusion à cœur ou à mi-rayon d'une tranche, pour le silicium. Dans un premier temps, ce temps de fusion nous renseigne sur l'énergie nécessaire de fusion d'une tranche jusqu'au cœur ou à mi-rayon et dans un deuxième temps, il servira pour le choix de la géométrie à adopter pour l'étude du processus de purification. De même on pourra exploiter les résultats de températures calculées à la paroi pour fixer les idées sur quelle densité de flux à appliquer à la tranche pour que la température ne dépasse pas le seuil que le matériau doit supporter au delà de son point de fusion.

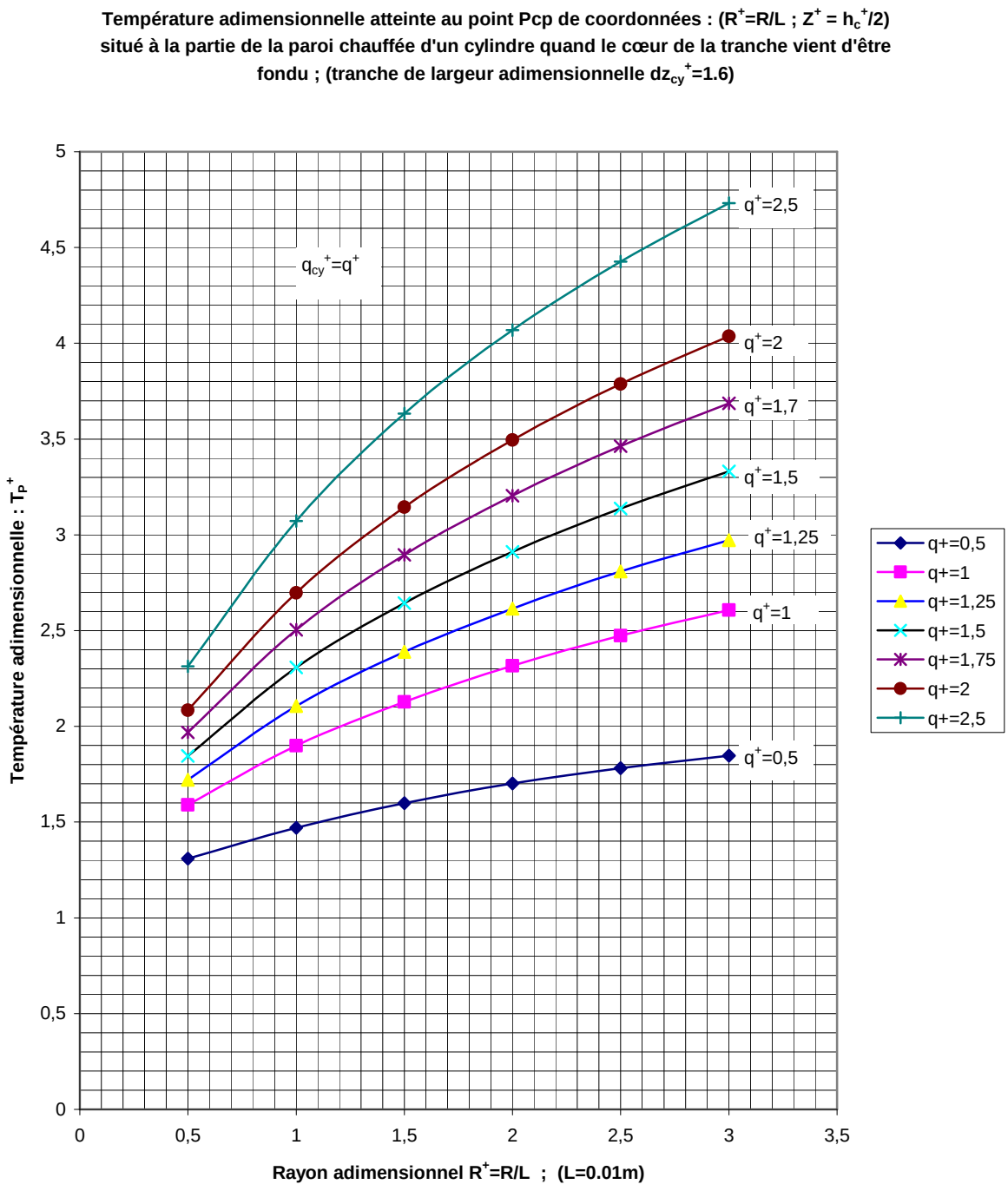


Figure B.4 : Faisceaux des courbes donnant la température adimensionnelle, atteinte en un point (Pcq) de la paroi d'une tranche d'un cylindre en fonction de son rayon R^+ et de la densité de flux de chauffage appliquée q^+_{cy}, lorsque le point (Pcp : cœur du barreau) est entièrement fondu en (conduction + changement de phase)

Étude d'un barreau à section carrée

Formulation du problème thermique

On considère un barreau à section carrée de coté 2e et de hauteur h_b=h_c, auquel on applique une densité de flux de chauffage q_{car} sur une de ses tranches de largeur dz_{car}. Le flux de chauffage est dirigé suivant les directions $\vec{x}$ et $\vec{y}$

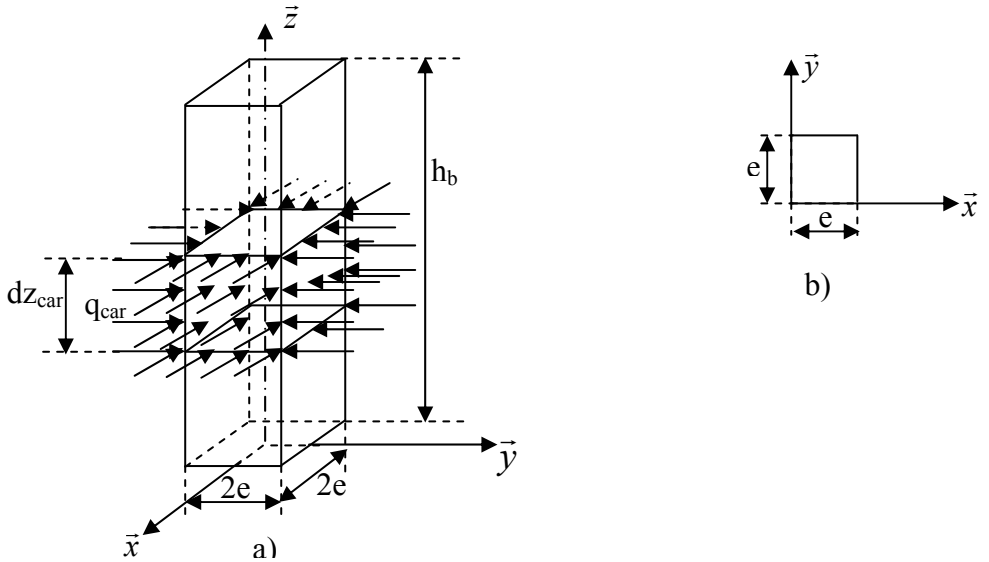


Figure B.5 : a) Barreau à section carrée soumis sur une de ses tranches de largeur dz_{car} à une densité de flux de chauffage q_{car} ; b)Problème symétrique

De même, dans cette étude, nous allons prendre un barreau à section carrée dont le volume de la tranche à fondre est le même que celui de la tranche à fondre dans le cas du cylindre à section circulaire étudié précédemment. La puissance de chauffage sera aussi la même pour les deux cas de géométries et la longueur du barreau reste inchangée (h_b = h_c). La dimension e du barreau est égale à R (Rayon du cylindre). On exprime alors la largeur de la tranche à section carrée dz_{car} en fonction de la largeur de la tranche à section circulaire du cylindre dz_{cy}. La densité du flux appliquée dans le cas de la géométrie carrée q_{car} est aussi exprimée en fonction de celle de la géométrie circulaire q_{cy}.

Volume de la tranche à section carrée : $V_{tcar} = 4e^2 . dz_{car}$ (B21)

Volume de la tranche à section circulaire : $V_{tc} = \pi R^2 . dz_{cy}$ (B22)

L'égalité de ces deux volumes $V_{tcar} = V_{tc}$ donne :

$$dz_{car} = \frac{\pi\, dz_{cy}}{4} \quad \text{(B23)}$$

Puissance de chauffage nécessaire pour la tranche du barreau à section carrée :

$$P_{car} = 8e . q_{car} . dz_{car} \quad \text{(B24)}$$

Puissance de chauffage nécessaire pour la tranche à section circulaire :

$$P_{cy} = 2.\pi.R. dz_{cy}\, q_{cy} \quad \text{(B25)}$$

En égalisant les deux puissances (B24 et B25) et en remplaçant dz_{car} par son expression (B23) on obtient :

$$q_{car} = q_{cy} \quad \text{(B26)}$$

Dans ce cas, la largeur de la tranche à section carrée est prise selon l'expression (B23) et la densité de flux à imposer sur la tranche à section carrée doit être égale à celle imposée à la tranche de section circulaire.
La symétrie de la géométrie et du chargement thermique permet de résoudre ce problème sur un quart du barreau (figure B.5.b). La base inférieure et la base supérieure du barreau sont adiabatiques. L'équation de la chaleur adimensionnelle en conduction plus changement de phase s'écrit sur le domaine d'étude Ω :

$$\frac{\partial H^+}{\partial t^+} = div([(1-f_l)+\tilde{\lambda} f_l]grad\, T^+) \qquad sur\, \Omega \tag{B27}$$

- Conditions initiales :

$$H^+(R^+,Z^+,t^+=0)=0 \tag{B28}$$

$$T^+(R^+,Z^+,t^+=0)=0 \tag{B29}$$

- Conditions aux limites :

Si on désigne les bords du quart du barreau (figure B.5.b) de la manière suivante :

Face x=0 : $\partial\Omega 1$
Face x=e non chauffée et adiabatique : $\partial\Omega 2$
Face x=e chauffée : $\partial\Omega 3$
Face y=0 : $\partial\Omega 4$
Face y=e non chauffée : $\partial\Omega 5$
Face y=e chauffée : $\partial\Omega 6$
Face z=0 adiabatique : $\partial\Omega 7$
Face z=h_b adiabatique : $\partial\Omega 8$

Les conditions aux limites s'écrivent en terme de T^+ de la manière suivante :

$$\frac{\partial T^+(X^+=0,Y^+,Z^+,t^+)}{\partial X^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 1 \tag{B30}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+=e/L,Y^+,Z^+,t^+)}{\partial X^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 2 \tag{B31}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+=e/L,Y^+,Z^+,t^+)}{\partial X^+}=q^+_{cy} \qquad \text{sur } \partial\Omega 3 \tag{B32}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,Y^+=0,Z^+,t^+)}{\partial Y^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 4 \tag{B33}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,Y^+=e/L,Z^+,t^+)}{\partial Y^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 5 \tag{B34}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,Y^+=e/L,Z^+,t^+)}{\partial Y^+}=q^+_{cy} \qquad \text{sur } \partial\Omega 6 \tag{B35}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,Y^+,Z^+=0,t^+)}{\partial Z^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 7 \tag{B36}$$

$$\frac{\partial T^+(X^+,Y^+,Z^+=h_b/L,t^+)}{\partial Z^+}=0 \qquad \text{sur } \partial\Omega 8 \tag{B37}$$

La formulation, la discrétisation et la démarche sont les mêmes que dans le cas de l'étude précédente, sauf que le calcul se fait en 3 D.
Le maillage adopté est un maillage rectangulaire régulier : (11x11x51) noeuds pour les parties non sollicitées par la source de chauffage et raffiné pour la partie sollicitée (tranche à fondre), soit un maillage : (11x11x16) noeuds. Les pas d'espaces sont :

$(\Delta x_M^+ = \Delta y_M^+ = e^+/10)$ et $(\Delta z_M^+ = h_c^+/50 = 1.6.10^{-1})$ pour les parties non sollicitées

$(\Delta x_M^+ = \Delta y_M^+ = e^+/10)$ et $(\Delta z_M^+ = hz_{car}^+/15 = 8.37.10^{-2})$ pour la tranche à fondre

Le pas de temps adimensionnel est $\Delta\tau = 10^{-4}$.
Nous n'allons pas faire une étude complète, similaire à celle précédemment entreprise, mais on se contentera de quelques cas pour différentes dimensions (e^+=e/L) et différentes densités de flux de chauffage q_{car}^+ pour comparer le temps de fusion avec celui de la géométrie à section circulaire.

Les résultats de la simulation pour ces différents cas sont reportés dans les tableaux suivants :

$q_{car}^+ = 0.5$

e^+	0.5	1	1.5	2
t_{fp}^+	1.0289	2.9796	5.4303	7.9597
t_{fq}^+	1.9845	6.0376	11.418	17.421
t_{fc}^+	2.4594	7.7641	14.922	23.207
T_p^+	1.289	1.4311	1.5340	1.6124
T_q^+	1.1563	1.1866	1.2083	1.2228
T_c^+	1.003	1.001	1.0007	1.0005

$q_{car}^+ = 2.5$

e^+	0.5	1	1.5	2
t_{fp}^+	0.123	0.217	0.266	0.2952
t_{fq}^+	0.330	0.906	1.790	3.0003
t_{fc}^+	0.458	1.392	2.884	4.9498
T_p^+	2.284	2.901	3.326	3.6557
T_q^+	1.602	1.721	1.761	1.7841
T_c^+	1.0035	1.0022	1.0007	1.0007

Tableaux B.3: Résultats de la simulation pour une géométrie à section carrée

Comparaison du temps de fusion en (conduction + changement de phase) entre deux géométries d'un barreau à sections circulaire et carrée

Nous prenons pour ce cas de comparaison, deux intensités ($q^+_{car} = q^+_{cy} = 0.5$) et ($q^+_{car} = q^+_{cy} = 2.5$) déjà simulées. Le temps de fusion à cœur ($e^+ = R^+ = 0$; $Z^+ = h^+_c / 2$) pour les deux géométries étudiées, pour différentes dimensions, sont reportés dans les tableaux (B.4) , Les résultats et le tracé des courbes donnant le temps de fusion adimensionnel, en fonction du rayon ou de l'épaisseur respectivement pour le barreau à section circulaire et le barreau à section carrée montrent bien que le temps de fusion dans le cas de la géométrie à section circulaire est meilleur que dans le cas de la géométrie à section carrée. L'amélioration est d'autant meilleure quand le rayon (ou l'épaisseur) est grand (cf. figure B.6).

$q^+_{car} = q^+_{cy} = 0.5$				
$e^+ = R^+$	0.5	1	1.5	2
t^+_{fc} géo/circulaire	1.9700	5.7770	11.0630	17.2540
t^+_{fc} géo/carrée	2.4594	7.7641	14.922	23.207

$q^+_{car} = q^+_{cy} = 2.5$				
$e^+ = R^+$	0.5	1	1.5	2
t^+_{fc} géo/circulaire	0.3995	1.0889	2.1464	3.5997
t^+_{fc} géo/carrée	0.4579	1.3915	2.8839	4.9498

Tableaux B.4 : Temps de fusion adimensionnel à coeur pour les deux géométries à sections circulaire et carrée

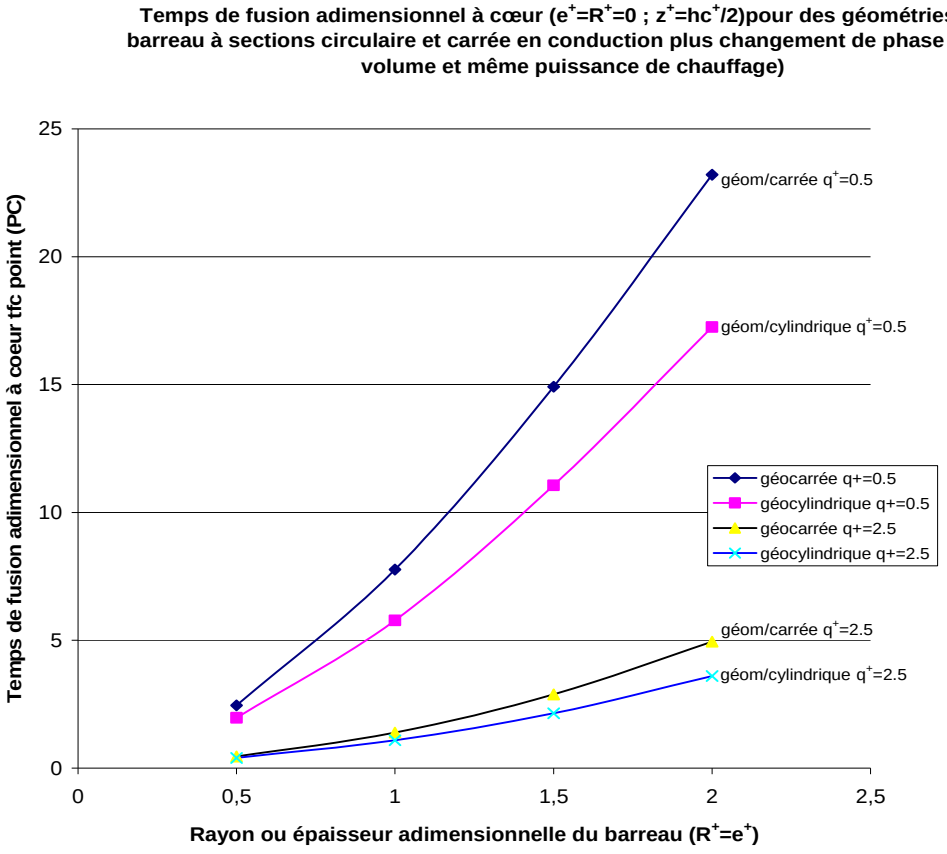


Figure B.6 : Comparaison du temps de fusion entre deux géométries à sections circulaire et carrée en (conduction + changement de phase)

Annexe C

I Étude d'un cas de purification avec des données réelles en déplacement

Données pour la simulation

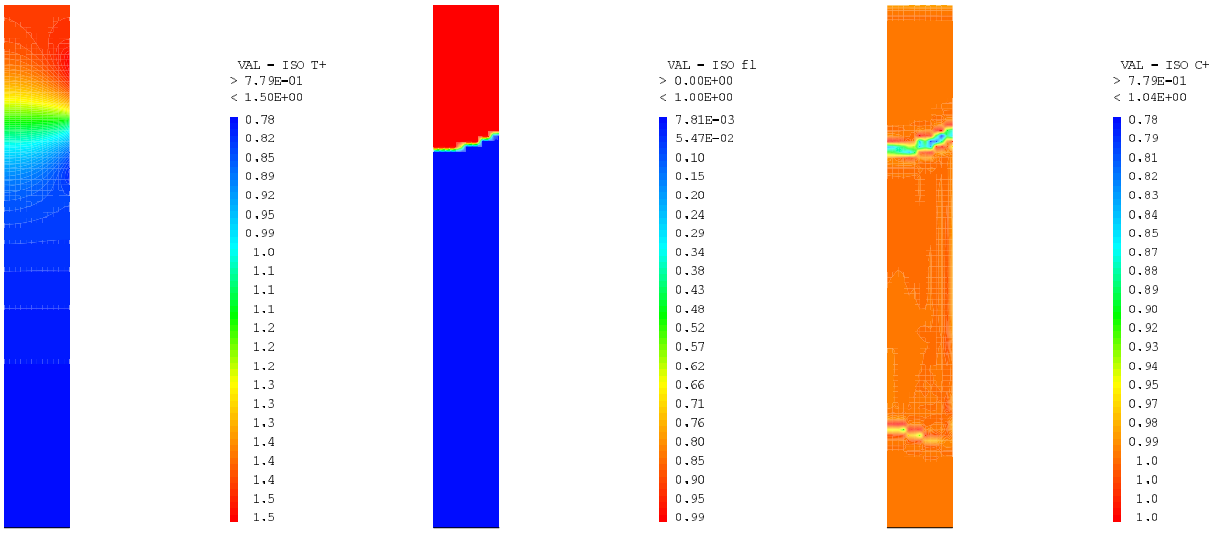
L'étude numérique est la même que dans le chapitre 6 : maillage rectangulaire régulier : (13x97) nœuds, pas d'espaces $\Delta r_M^+ = \Delta z_M^+ = 8.3310^{-2}$ et pas de temps adimensionnel $\Delta\tau = 3.10^{-4}$. Le nombre de Lewis dans le solide ($Lews$ =1,54.10^{12}) et le rapport de coefficients de diffusion liquide/solide $\tilde{d}$ = 9,58.10^7.
Les données sont reportées dans le tableau C.1 suivant.

R^+	L_b^+	Δz^+	q_c^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	a_s	a_l	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
1	8	1	0.2	0.99929	1/k	1	2.9110^{-5}	2.9110^{-5}	1	0.5964	1

Tableau C.1 : Données pour la simulation d'un cas avec des données réelles

Résultats de la simulation

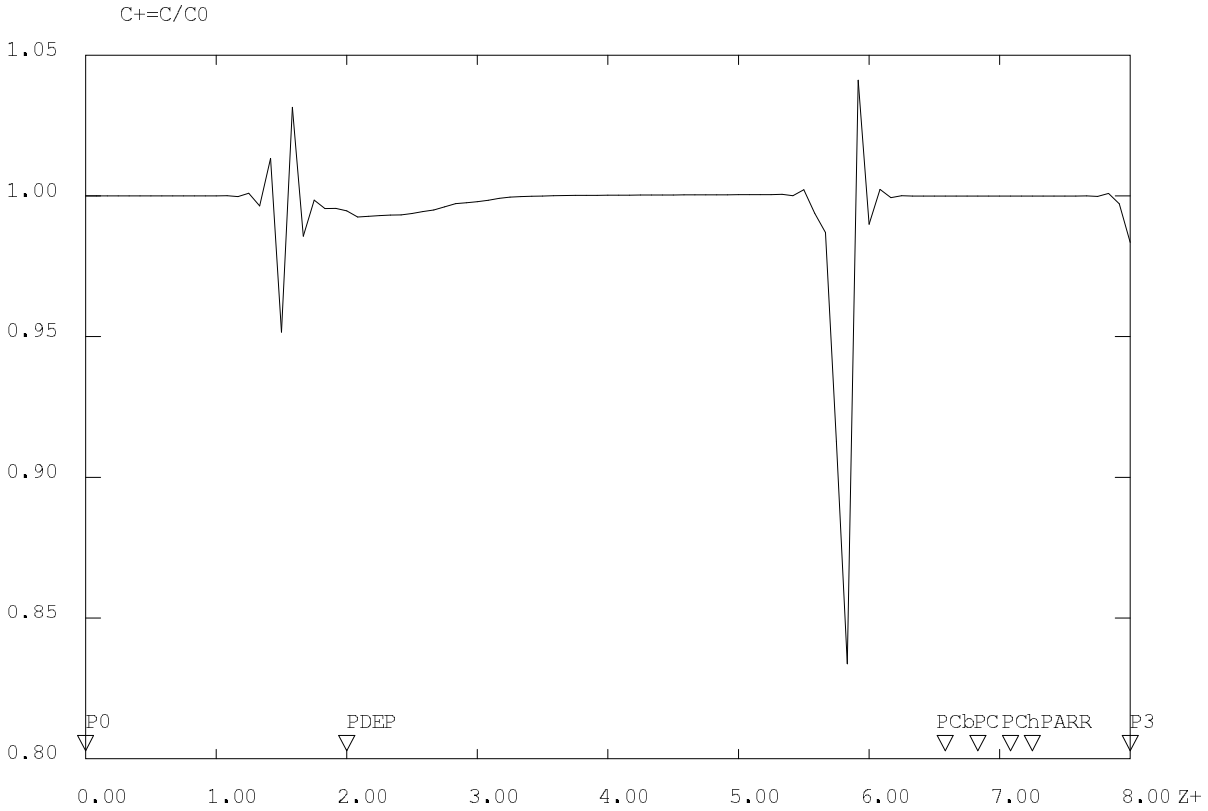
Isovaleurs



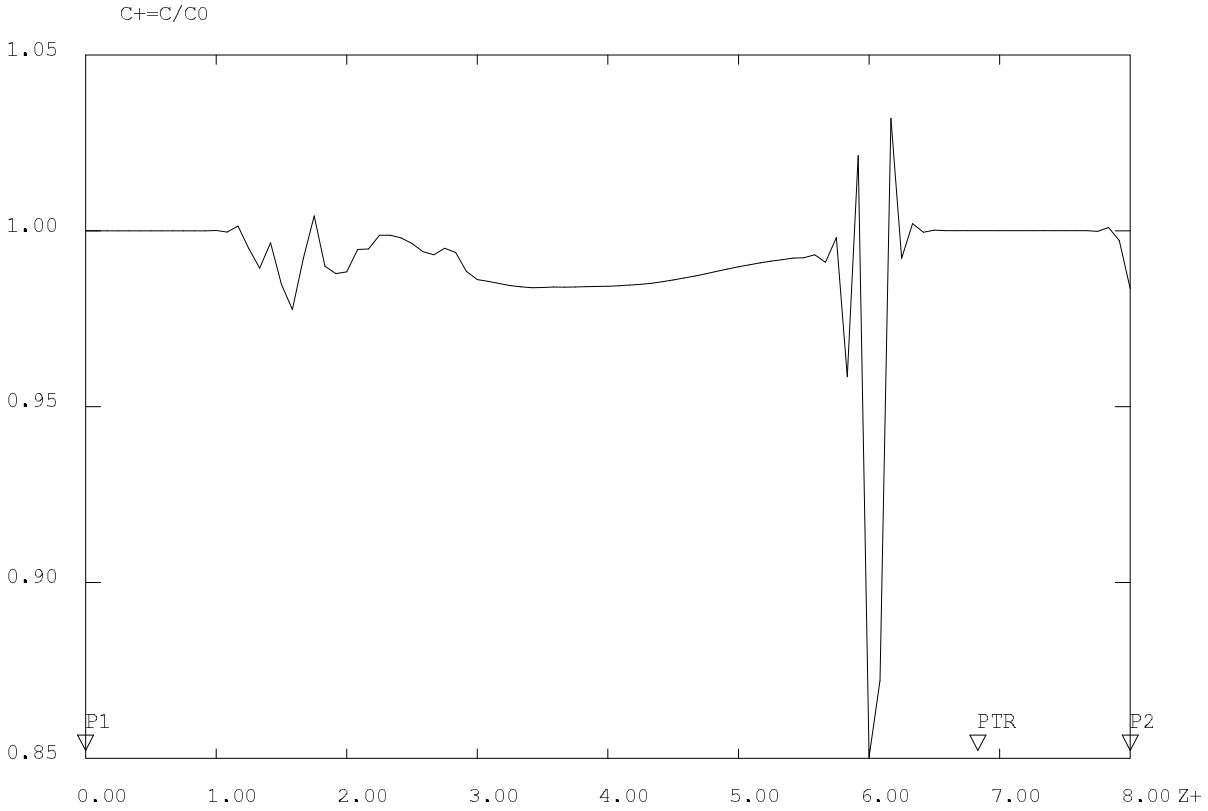
a) Isovaleurs de température T^+ *b) Isovaleurs de fraction fondue f_l* *c) Isovaleurs de concentration C^+*

Figure C.1 : Isovaleurs, a) Température ; b) Fraction fondue ; c) Concentration

Profils de concentration C^+



a) Profil de concentration C^+ le long de l'axe du barreau



b) Profil de concentration C^+ le long de la paroi du barreau

Figure C.2 : Profils de concentration C^+ : a) sur l'axe ; b) sur la paroi du barreau

II Étude d'un cas montrant l'effet du rayon du barreau sur la forme de la zone fondue

Données pour la simulation

L'étude numérique est la même que dans le chapitre 6 : maillage rectangulaire régulier : (13x97) nœuds, pas d'espaces $\Delta r_M^+ = \Delta z_M^+ = 8.33 10^{-2}$ et pas de temps adimensionnel $\Delta\tau = 3.10^{-4}$. Le nombre de Lewis dans le solide ($Lews$=10), ce qui correspond à un nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$ = 1). Le rapport de coefficients de diffusion liquide/solide est $\tilde{d}$ = 10 et la vitesse de déplacement des sources est égale à 150 cm/h. Les données sont reportées dans le tableau C.1 suivant.

L_b^+	Δz^+	q_c^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	a_s	a_l	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
8	1	0.2	0.99929	1/k	1	$2.91 10^{-5}$	$2.91 10^{-5}$	1	0.5964	1

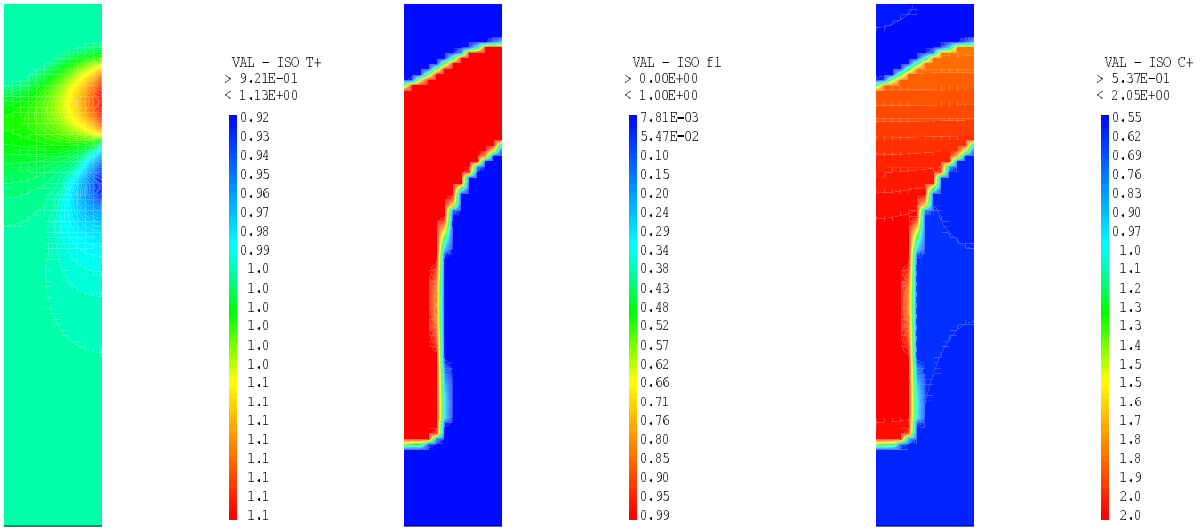
Tableau C.2 : Données pour la simulation d'un cas avec rayon du barreau R^+=1.5

Résultats de la simulation

R^+	Nombre d'itérations sur le temps j	T_{PTR}^+	T_{PC}^+	T_{P0}^+	T_{P3}^+	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T_{PDEP}^+	C_{PDEP}^+	C_{PARR}^+
1.5	171577	1.1278	1.0188	0.9998	0.9988	0	0.541	1.0000	2.0306	0.5538

Tableau C.3 : Résultats (Effet du rayon sur la forme du front)

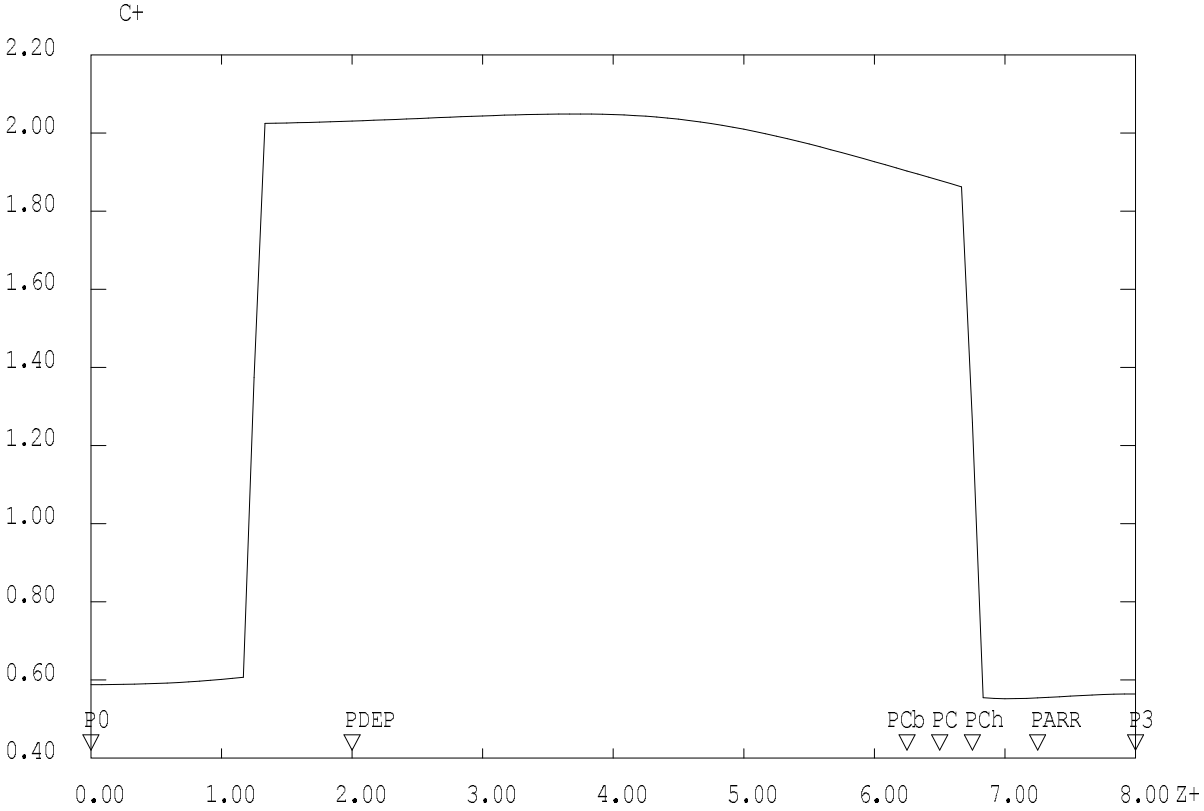
Isovaleurs pour un barreau de rayon R^+=1.5



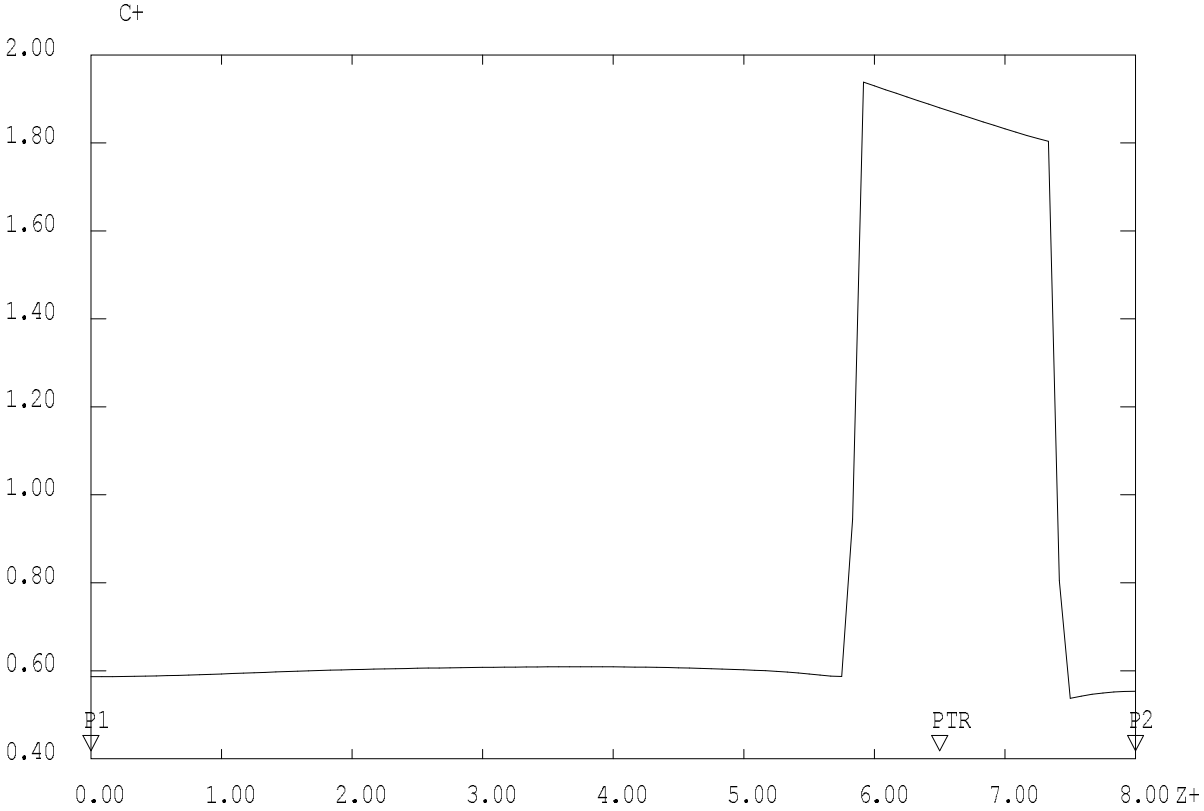
a) Isovaleurs de température T^+ *b) Isovaleurs de fraction fondue f_l* *c) Isovaleurs de concentration C^+*

Figure C.3 : Isovaleurs, a) Température ; b) Fraction fondue ; c) Concentration

Profils de concentration C^+



a) Profil de concentration C^+ le long de l'axe du barreau



b) Profil de concentration C^+ le long de la paroi du barreau

Figure C.4 : Profils de concentration C^+ : a) Le long de l'axe ; b) Le long de la paroi

III Étude d'un cas : Source de chauffage arrivant au bout de l'extrémité du barreau

Données pour la simulation

L'étude numérique est la même que dans le chapitre 6 : maillage rectangulaire régulier : (13x97) nœuds, pas d'espaces $\Delta r_M^+ = \Delta z_M^+ = 8.33 10^{-2}$ et pas de temps adimensionnel $\Delta\tau = 3.10^{-4}$. Le nombre de Lewis dans le solide ($Lews$ =10), ce qui correspond à un nombre de Lewis dans le liquide ($Lewl$ = 1). Le rapport de coefficients de diffusion liquide/solide est $\tilde{d}$ = 10 et la vitesse de déplacement des sources V_s =70 cm/h.
Les données sont reportées dans le tableau C.4 suivant.

R^+	L_b^+	Δz^+	q_c^+	T_i^+	U_i^+	C_i^+	a_s	a_l	$\tilde{\lambda}$	Ste	$\tilde{c}$
1	8	0.5	0.2	0.99929	1/k	1	$2.91 10^{-5}$	$2.91 10^{-5}$	1	0.5964	1

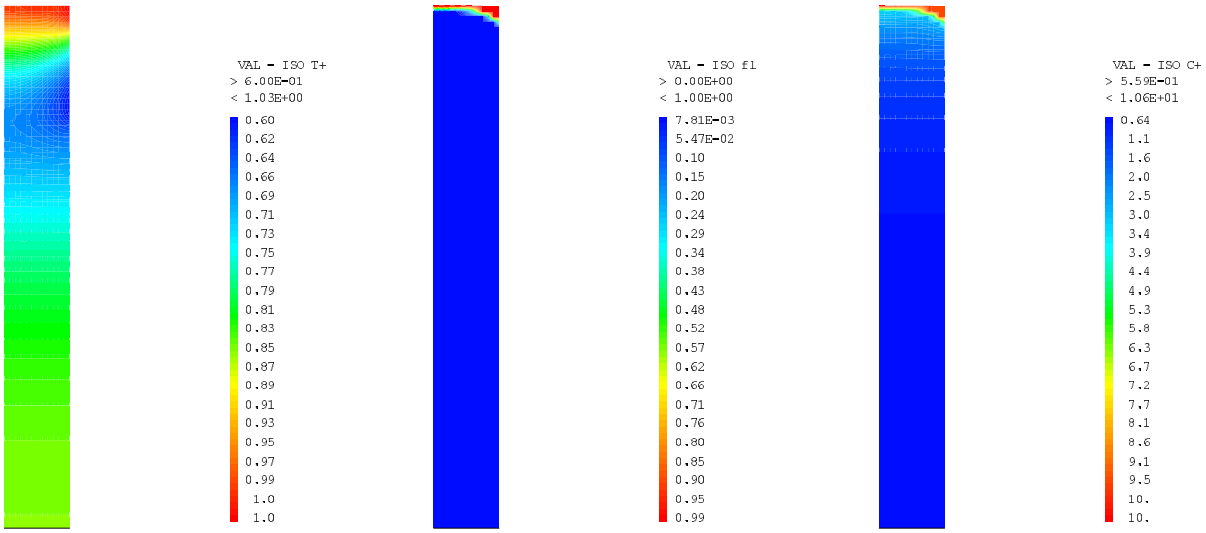
Tableau C.4 : Données pour la simulation d'un cas avec source de chauffage atteignant l'extrémité (queue du barreau)

Résultats de la simulation

Nombre d'itérations sur le temps j	T_{PTR}^+	T_{PC}^+	T_{P0}^+	T_{P3}^+	$f_{l_{P3}}$	$f_{l_{PCh}}$	T_{PDEP}^+	C_{PDEP}^+	C_{PARR}^+
522213	1.0339	1.000	0.8512	1.000	0.9995	1	0.8355	0.5739	1.7039

Tableau C.5 : Résultats de la simulation ; V_S = 70 cm/h

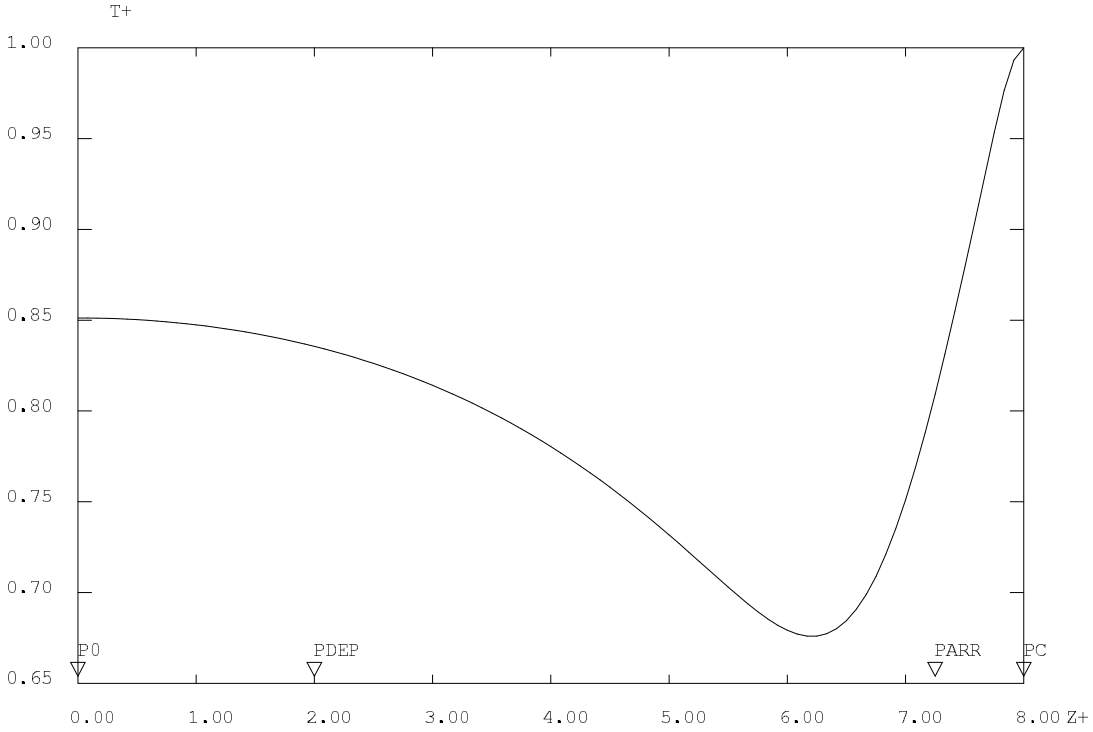
Isovaleurs



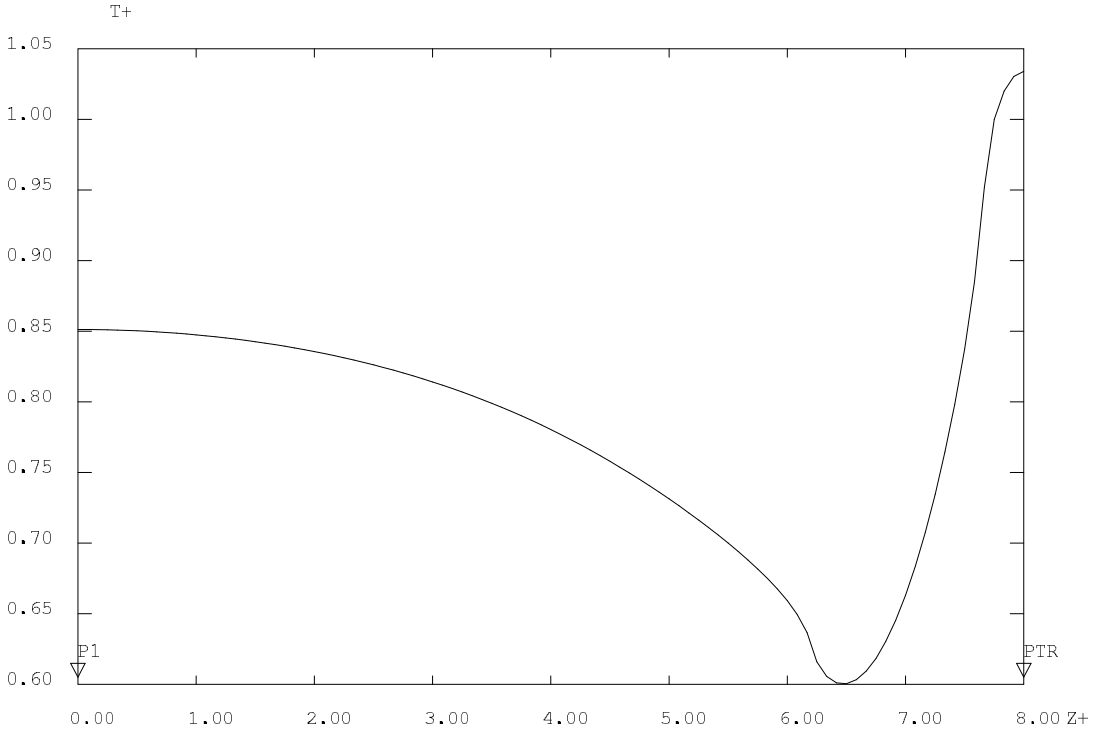
a) Isovaleurs de température T^+ *b) Isovaleurs de fraction fondue f_l* *c) Isovaleurs de concentration C^+*

Figure C.5 : Isovaleurs, a) Température ; b) Fraction fondue ; c) Concentration

Profils de température T^+



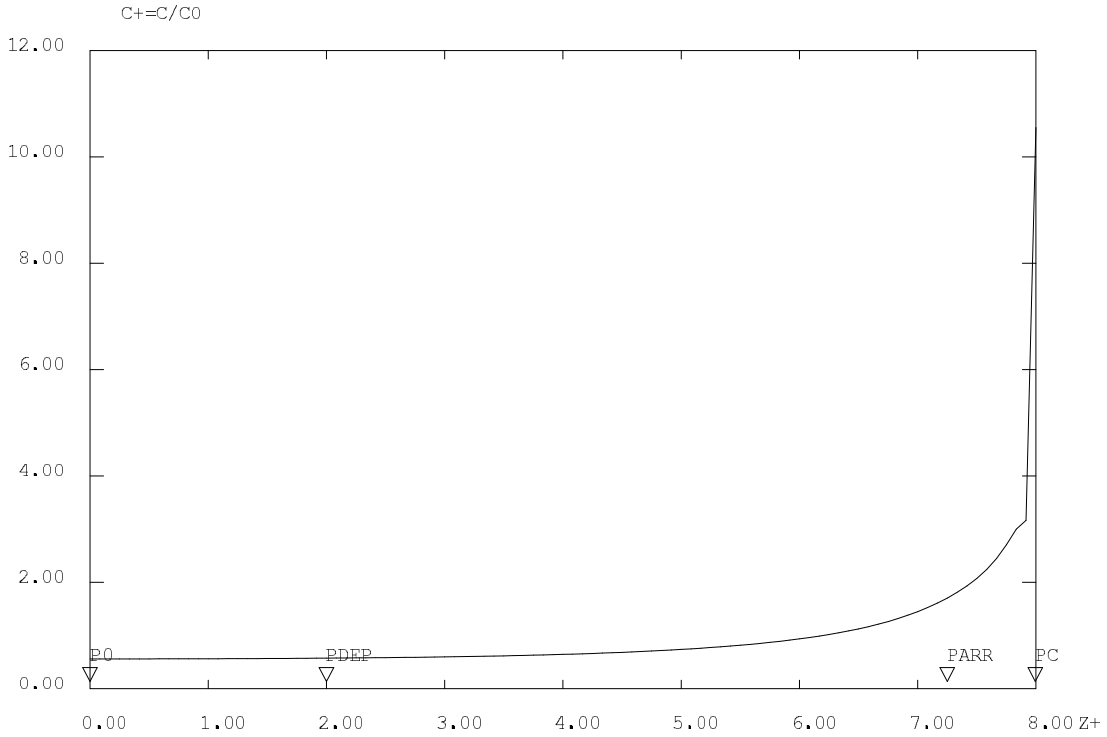
a) Profil de température T^+ le long de l'axe du barreau



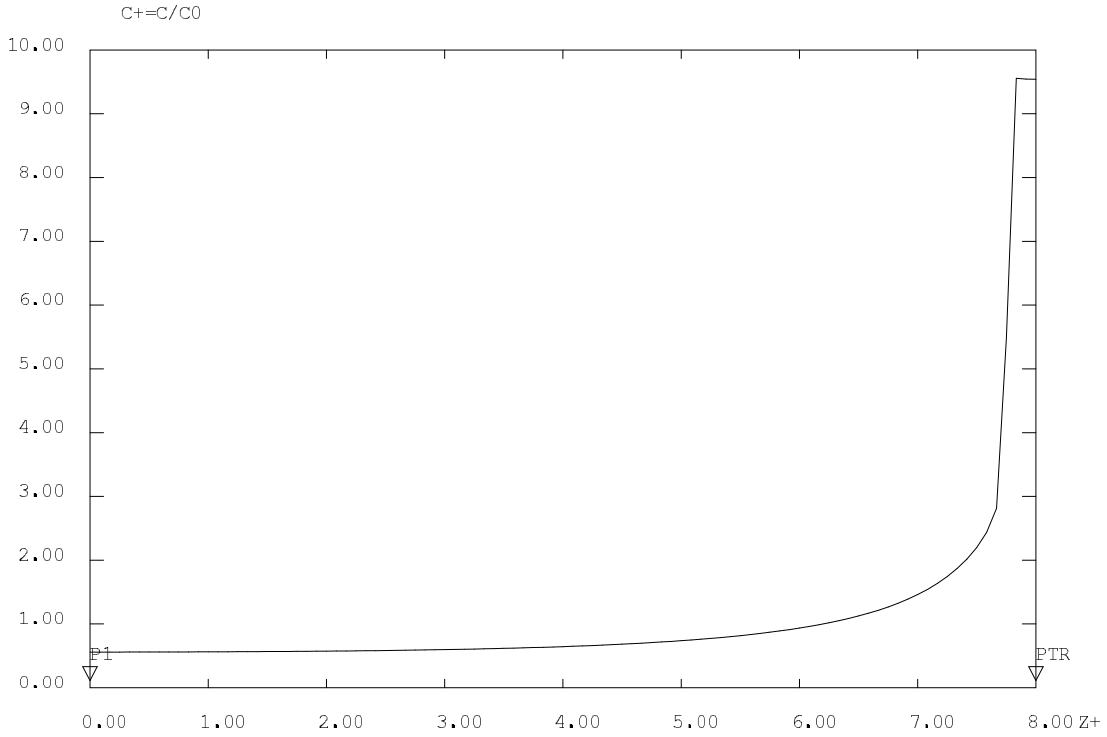
b) Profil de température T^+ le long de la paroi du barreau

Figure C.6 : Profils de température T^+ : a) Le long de l'axe ; b) Le long de la paroi

Profils de concentration C^+



a) Profil de concentration C^+ le long de l'axe du barreau



b) Profil de concentration C^+ le long de la paroi du barreau

Figure C.7 : Profil de concentration C^+ : a) Le long de l'axe ; b) Le long de la paroi

Références bibliographiques

[ADDA, 91] **Y.ADDA, J. M. DUPOUY, J. PHILIBERT, Y. QUERE,** «*Elément de métallurgie physique 6 : Corrosion, Oxydation, Applications*», Ed INSTN (CEA), (1991).

[ADDA, 90] **Y.ADDA, J. M. DUPOUY, J. PHILIBERT, Y. QUERE,** «*Elément de métallurgie physique 4 : diffusion transformations*», Ed INSTN (CEA), (1990).

[ADJA, 98] **Hicham ADJALI and Michel LAURENT,** «*Conductivity Determination During a phase change*», Inverse Problem in Engineering: theory and practice ASME, pp.581-589, (1998).

[AL-NI, 01] **M.A. AL-NIMR and M.A. HADER,** «*Melting and solidification under the effect of the phase-lag Concept in the Hyperbolic Conduction Equation*», Heat transfer Engineering, vol.22 No.2, pp.40-47, (2001).

[BÄRW, 98] **Günter BÄRWOLFF,** «*Thermal and solutal buoyancy convection in vertical zone melting configurations*», Int Fortwihr conference 1998, high Performance scientific and Engineering computing 10 to 18 march (1998) in München- Perlach.

[BASU, 92a] **Biswajit BASU and A. W. DATE,** «*Rapid solidification following laser melting of pure metals – I. Study of flow and field and role of convection*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.35, No.5, pp.1049-1058, (1992).

[BASU, 92b] **Biswajit BASU and A. W. DATE,** «*Rapid solidification following laser melting of pure metals –II. Study of pool and solidification characteristics*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.35, No.5, pp.1059-1067, (1992).

[BASU, 92c] **Biswajit BASU and J. SRINIVASAN**, «*Numerical study of steady-state laser melting problem*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.31, No.11, pp.2331-2338, (1992).

[BAZA, 00] **Martin Z. BAZANT, H.A. STONE,** «*Asymptotics of reaction-diffusion fronts with one static and one diffusing reactant*», PHYSICA D 147, pp.95-121, (2000).

[BENA, 84] **J. BENARD, A. MICHEL, J. PHILIBERT et J. TALBOT**, «*Métallurgie générale*», 2e Ed Masson (1984).

[BENN, 87a] **W.D. BENNON and F.P. INCORPORA, ,** « *A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change system: I. Model formulation*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.30, No.10, pp.2161-2170, (1987).

[BENN, 87b] **W.D. BENNON and F.P. INCORPORA, ,** « *A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change system: II. Application to solidification in a rectangular cavity*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.30, No.10, pp.2171-2187, (1987).

[BERT, 97] **J. BERT, J. DUPUY-PHILON,** «*Thermodiffusion en microgravité dans un mélange de sels fondues*», 5émes journées européennes de Thermodynamique Contemporaine Toulouse (France) 16-19 Septembre (1997), pp.277-284.

[BURT, 53] **J.A. BURTON, R.C. PRIM and W.P. SLICHTER,** J. Chem. Phys, 21, 1987, (1953).

[CAO, 89] **Yiding CAO and Amir FAGHRI,** «*A numerical analysis of Stefan problems for generalized multi-dimensional phase-change structures using the enthalpy transforming model*», Int. J.Heat Mass Transfer, vol.33 No.7, pp.1289-1298, (1989).

[CHAL, 63] **B. CHALMERS,** «*Métallurgie physique*», Ed DUNOD Paris, (1963).

[EL GA, 99] **Mohamed EL GANAOUI, Patrik BONTOUX, Dominique MORVAN,** « *Localisation d'un front de solidification en interaction avec un bain fondu instationnaire* », C. R. Acad. Sci. Paris, t. 327, serie II b, pp.41-48, (1999).

[COUR, 00] **T.H. COURTNEY, Y. DU, and S.Z. LU,** «*Macrosegregation in Quiescent melting and liquid-phase sintering*», Metallurgical and Materials Transactions A, vol 31A, pp.2907-2916, November (2000).

[DALH, 86] **A. J. DALHUUSEN and A. SEGAL,** «*Comparison of finite element techniques for solidification problems*», International. Journal for Numerical methods in Engineering, Vol.23, pp.1807-1829, (1986).

[DEMA, 99] **D.DEMANGE,** «*Mesure de la diffusivité thermique des composites 2D et 3D, des couches minces et des liquides par la méthode flash* », La Revue métallurgie-CIT /Science et Génie Matériaux Mai 1999.

[DREV, 02] **Béatrice DREVET, D. CAMEL, Y. DABO H.N Thi, B. BILLIA,** «*Ségrégations induites par la fusion et la stabilisation thermique précédent la solidification dirigée : comparaison des systèmes Al-Li et Al-Ni* », CEA-Grenoble, DRT/DTEN/SMP/LESA, Université Aix Marseille III L2MP, UMR-CNRS 613. Matériaux, (2002).

[DUDZ, 89] **Walenty DUDZIAK and Stefan Jan KOWALSKI,** «*Theory of thermo diffusion for solids*», Int. J. heat mass transfer, vol.32, No.11, pp.2005-2013, (1989).

[GARA, 95] **J.P. GARANDET, C. BARAT and T. DUFFAR,** «*The effect of natural convection in mass transport measurements in dilute liquid alloys*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.38 No.12, pp. 2169-2174, (1995).

[GARA, 04] **I. GARAPYN, I. HUD, B. PAVLYK,** «*Properties of cesium iodide by different purification methods*», Radiation Measurements 38 (2004) 475-479.

[GEOF, 01] **Sandrine GEOFFROY, Sophie MERGUI and Christine BENARD,** «*Equilibre thermodynamique sur un front de fusion en présence de convection thermosolutale*», Congres français de mécanique, Lyon, Sept (200l). pp.406-411

[GHOS, 01] **A. GHOSH**, «*Segregation in cast products*», Sàdhanà, Vol. 26, Parts 1& 2, pp.5-24, (2001).

[GLAS, 01] **Karl GLASNER,** «Solute Trapping and the non-Equilibrium Phase Diagram For Solidification of Binary Alloy», PHYSICA D Vol.151 No2-4, pp.83-334 May (2001).

[GOBI, 84] **D. GOBIN,** « *Changement d'état liquide –solide : Évolution temporelle du couplage entre la convection naturelle dans la phase liquide et la conduction dans la phase solide. Étude numérique et expérimentale* », Thèse de doctorat d'état, université Paris6, (1984).

[GRIG 90] **Costas P. GRIGOROPOULOS, Achley F. EMERY and Evan P. WIPF,** « *Heat transfer in thin silicon film melting by laser line sources*». Int. J. heat mass transfer. vol.33, No.5, pp.797-803, (1990).

[GUIL, 64] **L. GUILLET,** «*Diagrammes de phases en métallurgie*», Ed Masson & CIE (1964).

[GUPT, 90] **S.C GUPTA**, «*Numerical and analytical solutions of one-dimensional freezing of dilute Binary alloys with coupled heat and mass transfer »*, Int J.Heat Mass Transfer Vol.33. N°. 4 pp 593-602, (1990).

[HAUG, 95] **Einar HAUG, A. MO and H.J. THEVIK,** «*Macrosegregation near a cast surface caused by exudation and solidification shrinkage*», Int. J. heat mass transfer, vol.38, No.9, pp.1553-1563, (1995).

[HILL, 86] **James M. HILL, Jeffrey N. DEWYNNE**, *«Heat conduction»*, Ed (1986).

[HO, 98] **Chii-Dong HO, Ho-Ming YEH, Tzuoo-Lun YEH,** «*Numerical analysis on optimal zone lengths for each pass in multipass zone-refining processes*». The Canadian journal Phys, vol.76, No.1, pp.113-119, (1998).

[HO, 99] **Chii-Dong HO, Ho-Ming YEH, Tzuoo-Lun YEH,** «*The optimal variation of zone lengths in multipass zone refining processes*», Separations Technology 15, pp.69-78, (1999).

[HO, 96] **Chii-Dong HO, Ho-Ming YEH, Tzuoo-Lun YEH,** «*Optimal zone lengths in multi-pass zone-refining processes*», Separations Technology 6, pp.227-233, (1996).

[HSIE, 01] **C. K. HSIEH, M. LEUNG,** «*Phase change in a cylinder and a cylindrical shell heated with an axisymmetric front moving in the axial direction*», Journal of Heat Transfer, Vol.123, pp. 476-592, (2001).

[HSU, 00] **C.W. HSU, A.G. ULSOY,** «*An Approach for Modelling Sheet Metal Forming For Process Controller Design*», Journal of Manufacturing Science and Engineering Transaction of the ASME, Vol.122, (2000).

[JARN, 89] **Y. JARNY, D. DELAUNAY,** «*Numerical resolution of Phase change problem with zero latent heat*», Numerical. Heat Transfer part B, Vol.16, pp.125-141, (1989).

[KANG, 95] **Shinill KANG and Nicholas. ZABARAS,** «*Control of freezing interface motion in two-dimensional solidification processes using the adjoint method*», Int. J for Numerical methods in engineering, Vol.38, 63-80, (1995).

[KASP, 96] **Erich KASPER,** «Silicium germanium heterodevices», Applied Surface Science, Vol. 102, pp. 189-193, (1996).

[KECE, 89] **I. KECECIOGL, Boris RUBINSKY,** «*A continuum model for the propagation of discrete phase-change fronts in porous media in the presence of coupled heat flow fluid flow and species transport processes*», Int. J. heat mass transfer, vol.32 No.6, pp.1111-1130, (1989).

[KIM, 92] **Charn-Jung KIM and Massoud KAVIANY,** «*A fully implicit method for diffusion-controlled solidification of binary alloys*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 35, No.5, pp.1143-1154, (1992).

[KLYN, 79] **T.W. KLYNE,** «Theoretical solute redistribution during a modified form of zone refining cascade purification», Journal of Crystal Growth 47 (1979) 85-92.

[KOBA, 78] **N. KOBAYASHI**, «*Power required to form a floating zone and the zone shape*», Journal of Crystal Growth, Vol.43, pp.417-424, (1978).

[KOUR, 90] **Sohrab KOUROSH,** «Microscopic study of coupled heat and mass transport during unidirectional solidification of binary solutions—I. Thermal analysis», Int J. Heat Mass Transfer Vol.33. No.1 pp.29-38, (1990).

[KREI, 67] **F. KREITN,** «*Transmission de la chaleur et thermodynamique*». Ed Masson, (1967).

[LASH, 99] **Jason C. LASHLEY, Michael S. BLEAU, Karl P. STAUDHAMMER, Ramiro A. PEREYRA,** «*In situ purification, alloying and casting methodology for metallic plutonium*», Journal of Nuclear Materials 274, pp. 315-319,(1999).

[LE BR, 98] **Jean-Sebastien LE BRIZAUT,** «*Two inverse methods for problems originating from heat transfer*», Inverse Problems in Engineering: Theory and Practice ASME, pp.565-572, (1998).

[LEE, 00] **James D. LEE, Majid T. MANZARI, Yin-Lin. SHEN**, **Wenjun ZENG**, «*A finite Element Approach to transient Thermal Analysis of Work Rolls in Rolling Process*», Journal of Manufacturing Science and Engineering, Transaction of the ASME, Vol. 122, pp.706-716, (Nov 2000).

[LEE, 95] **S. L. LEE and R. Y. TZONG,** «*Latent heat method for solidification process of a binary alloy system*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.38, No.7, pp.1237-1247, (1995).

[LEE, 91] **S. L. LEE and R. Y. TZONG,** «*An enthalpy formulation for phase change problems with a large thermal diffusivity jump across the interface*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.34, No.6, pp.1491-1502, (1991).

[LE MA, 96a] **C. LE MAREC , R. GUERIN et P. HALDENWANG,** «*Radial macrosegregation induced by 3D patterns of solutal convection in upward Bridgman solidification*». Journal of crystal growth, Vol.169, pp.147-160, (1996).

[LE MA, 96b] **C. LE MAREC, R. GUERIN et P. HALDENWANG,** «*Collocation Method for convective flow induced by directional solidification in a cylinder*», Int. J. for Num. Methods in fluids,Vol.22, pp.393-409, (1996).

[LIDE, 92] **David R. LIDE,** «*Handbook of chemistry and physics*», 72ND Edition 1991-1992.

[LIU, 98] **Jun LIU And Béatrice GUERRIER,** «*Domain Embedding Methods for interface estimation in a phase change problem*», Inverse Problem in Engineering: Theory and Practice ASME, pp.573-580, (1998).

[LORD, 53] **N.W. LORD,** Trans. AIME, 197, 1531, (1953).

[MALA, 95] **E.U MALANG et al,** «*Purification and single growth of niobium by combined zone refining and electrotransport*», Physica B 204, pp.363-366, (1995).

[MERG, 00] **S. MERGUI, D. GOBIN,** «*Transient Double Diffusive Convection in a vertical Enclosure with Asymmetrical Boundary conditions*», Journal of heat transfer, vol. 122, August (2000), pp.598-602

[MERG, 97] **S. MERGUI, D. JOL, D. GOBIN, C. BENARD,** «*Formation de cellules convectives induites par fusion de glace pure dans une solution binaire*».5èmes journées européennes de Thermodynamique Contemporaine Toulouse (France) 16-19 Septembre (1997), pp.123-130.

[MERG, 92] **Jacques. MERGY,** « *Etude expérimentale des instabilités du front de solidification de l'alliage eutectique CBr_4–C_2Cl_6* », Thèse de doctorat d'état, Université Paris 7 (1992).

[MILL, 55] **K.S. MILLIKEN,** J. Metals, 7, 838, (1955).

[MOOR, 96] **W.J. MOORE, R.L. HENRY, P.E.R. NORDQUIST,** «*Properties of gallium arsenide purified by zone refining and zone levelling*», Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A 380 (1996) 102-106.

[MORV, 84] **D. MORVAN,** « *Mise en œuvre d'un procédé multiphases de purification du silicium sous plasma réactif de haute fréquence* », Thèse de doctorat d'état, Université Paris 6 (1984).

[MORV, 94] **D. MORVAN, F. D CIPRIANI et PH. BOURNOT,** « *Convection thermocapillar au cours d'une opération de refusion superficielle par laser* », Int. J. heat mass transfer. vol 37, No.14, pp.1973-1983, (1994).

[MÜLL, 82] **G. MÜLLER and G. NEUMANN**, «*Suppression of doping striations in zone melting of InSb by enhanced convection on a centrifuge*», Journal of Crystal Growth, Vol.59, pp. (1982) 548-556, (1982).

[MUNI, 03] **N.R. MUNIRATHNAM, D.S. PRASAD, Ch. SUDHEER, T.L. PRAKASH,** «*Purification of tellurium to 6N + by quadruple zone refining*», Journal of Crystal Growth, Vol.254, pp.262-266, (2003).

[NAUM, 01] **E. Bruce NAUMAN and Joseph SAVOCA,** «*An Engineering Approach to an Unsolved Problem in Multicomponent diffusion*», AIChE Journal, Vol.47, No.5 May 2001.

[NOËL, 96] **N. NOËL, H. JAMGOTCHIAN and B. BILLIA,** «*In Situ and real-time Observation by optical Method of Cellular Directional Solidification of a Transparent Alloy in a Cylinder*», ESA Symposium Proceedings on "Space Station Utilisation" Germany, 30 Sept-2 Oct 1996 (SP-385 December 1996).

[OJHA, 99] **S. N. OJHA, G. DING, Y. LU, J. REYE and S. N. TEWARI,** «*Macrosegregation Caused by thermosolutal during directional solidification of Pb-Sb alloys*», Metallurgical and Materials Transactions A.Vol.30A, pp.2167-2181, August (1999).

[PENE, 98] **S. PENEAU, J.P. HUMEAU and Y. JARNY,** «*A variational Inequality For the Inverse Stefan Problem with Convection*», Inverse Problems in Engineering: Theory and Practice ASME, pp.491-498, (1998).

[PFAN, 58] **W.G. PFANN,** *«Zone melting»*, Ed J. Wiley New York (1958).

[PLAT, 01] **J.K. PLATTEN, J.F. DUTRIEUX et G. CHAVEPEYER,** «*Evaluation du coefficient Soret par couplage convectif*», XVème Congrès Français de Mécanique Nancy 3-7 Septembre 2001, pp.560-566.

[PRAI, 89] **Jean–Pierre PRAIZEY,** «*Benefits of microgravity for measuring thermotransport coefficients in liquid metallic alloys*», Int. J. Heat Mass Transfer, vol.32, No.12, pp. 2385-2401, (1989).

[PRAS, 02] **D.S. PRASAD, C.H SUDHEER, N.R MUNIRATHNAM and T.L PRAKASH,** «*Tellurium purification: various techniques and limitations*», Bull Mater. Sci, Vol. 25, No.6, pp.545-54, (2002).

[RABI, 93] **Y. RABIN and E. KORIN,** «*An efficient numerical solution for the multidimensional solidification (or melting) problem using a microcomputer*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.36, No.3, pp.673-683, (1993).

[RAPP, 89] **M. RAPPAZ,** «*Modelling of microstructures formation in solidification processes*». International Materials Reviews, Vol.34 No.3, pp. 93-121, (1989).

[RAPP, 98] **Michel RAPPAZ, Michel BELLET, Michel DEVILLE,** «*Modélisation numérique en science et génie des matériaux*», Presses polytechniques et universitaires romandes, (1998).

[RODW, 89] **G.H. RODWAY and J.D. HUNT,** «*Optimizing zone refining*», Journal of Crystal Growth 97 (1989) 680-688.

[ROUS, 03] **Georgios S. ROUSSOPOULOS,** «*Simulation of zone refining for a semiconducting material Indium Antimonide*», MSc Thesis, Cranfild University (2003).

[SAYA, 00] **Sepideh SAYAR,** «*Heat transfer during melting and solidification in heterogeneous Materials*», Thesis, Virginia Polytechnic Institute December, 2000.

[SARR, 95] **Emmanuelle SARRAZIN,** «*Modélisation du soudage d'alliages d'aluminium*», thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (1995).

[SEMM, 01] **E. SEMMA, M. EL GANAOUI, A. CHEDDADI, P. BONTOUX,** « *Freinage électromagnétique appliqué à la mesure de diffusion dans les métaux liquides et semi-conducteurs* », XVème Congrès Français de Mécanique Nancy 3-7 sept (2001), pp.648-652.

[SEMM, 01] **E. SEMMA, M. EL GANAOUI, A. CHEDDADI, P. BONTOUX,** «*Simulation numérique de la convection thermique en présence d'une interface solide/liquide en croissance dirigée horizontale*». XVème Congrès Français de Mécanique Nancy 3-7, sept (2001), pp.574-57.

[SILLE, 99] **W.H. SILLEKENS, D. VERDOES and J.F.M. Schade Van WESTURM,** «*Refining Aluminium Scrap by means of fractional Crystallisation: Technical Feasibility*», Proceeding of the Fourth ASM International Conference and Exhibition on the Recycling of Metals, ASM Europe (1999), pp.105-113.

[SIMP, 98] **James E. SIMPSON and Suresh V. GARIMELLA,** «*An investigation of the solutale, thermal and flow fields in unidirectional alloy solidification*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.41, No.16, pp.2485-2502, (1998).

[SIMP, 01] **James E. SIMPSON, Suresh V. GARIMELLA, Henry C DE GROH III and Reza ABBASCHIAN,** «*Bridgman Crystal Growth of an Alloy With Thermosolutal convection under Microgravity conditions*», Journal of Heat Transfer Vol.123 (Oct 2001), pp.990-997

[SHIA, 98] **S.W. SHIAH, B.C. YANG and ALL,** «*Natural convection mass transfer along a dissolution boundary layer in an isothermal binary metallic system*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.41, pp.3759-3769, (1998).

[SU, 98] **Ching-Hua SU, Yi-Gao SHA,** «*Segregation coefficients of impurities in selenium by zone refining*», Journal of Crystal Growth, Vol.187, pp.569-572, (1998).

[SUND, 93] **Suresh SUNDARRAJ and V. R. VOLLER,** «*The binary alloy problem in an expanding domain: the microsegregation problem*», Int. J. heat mass transfer, vol.36, No.3, pp.713-723, (1993).

[TDIN] «*Techiques de l'ingénieur*»

[TEWA, 93] **S. N. TEWARI, Rajesh SHAH and M. A. CHOPRA**, «*Thermosolutal Convection and Macrosegregation Caused by Solute rejection at Cell/Dendrite Tips*», Metallurgical Transactions A.Vol 24A, pp.1661-1669, July (1993).

[THI, 97] **H. NGUYEN THI, Y. DABO, B. BILLIA,** «*Etude comparée des microstructures cellulaires et dendritiques obtenues lors de la solidification dirigée d'alliage Al-1.5 % pds Ni A 1g et en microgravité*». 5émes journées européennes de Thermodynamique Contemporaine Toulouse (France) 16-19 Septembre (1997), pp. 285-291.

[UAYK, 95] **H.S. UDAYKUMAR and W. SHYY**, «*Simulation of interfacial instabilities during solidification—I. Conduction and capillarity effects*», Int J.Heat Mass Transfer Vol.38. No.11 pp. 2057-2073, (1995).

[VOLL, 87] **V. R. VOLLER and C. Prakash** «A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase change problems transfer», Int J.Heat Mass Transfer, Vol.30, pp.1709-1719, (1987).

[VOLL, 89] **V. R. VOLLER and A. D. BRENT,** «*The Modelling of heat, mass and solute transport in solidification systems*», Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.32 No.9, pp 1719-1731, (1989).

[WANG, 97a] **G.X. WANG, V. PRASAD, E.F. MATTHYS,** «An interface-tracting numerical method for rapid planar solidification of binary alloys with application to microsegregation », Materials Science and Engineering A225, pp. 47-58, (1997).

[WANG, 97b] **G.X. Wang, V. Prasad, E.F. Matthys**, *«Solute distribution during rapid solidification into an undercooled melt»*, Journal of Crystal Growth No.174, pp.35-40, (1997).

[WEI, 00] **P.S. WEI, Y.K. KUO, J.S. KU,** «*Fusion Zone Shapes in Electron-Beam Welding dissimilar Metals*», Journal of Heat Transfer, Vol.122, pp. 626-631, August (2000).

[WEAV, 91] **J. A WEAVER and R. VISKANTA,** «*Natural convection due to horizontal temperature and concentration gradients – 2. Species interdiffusion, Soret and Dufour effects*», Int. J. heat mass transfer, vol.34, No.12, pp. 3121-3133, (1991).

[WINE, 64] **W. G. WINEGARD,** «*An Introduction to the Solidification of Metals*». Institute of metals Monograph and Report Series No. 29, Richard Clay, (1964).

[WITZ, 80] **Sylvain WITZKE**, «*Influence de la convection sur la solidification en lingotière en coulée continue*», Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble (1980).

[WORS, 97] **M.G WORSTER and J.S. WETTLAUFER,** «*Natural convection, solute trapping, and channel formation during solidification of saltwater*», J. Phys. Chem. B 101, pp. 6132-6136, (1997).

[YAU, 00] **J.K.F. YAU, Y.L. WONG, W. LIN, W.L. FUNG, F.L. KWONG,** «*Zone refining of* $SmBa_2Cu_3O_{7-x}$ », PHSICA C 340, pp. 203-210, (2000).

[YOO, 86] **Jaisuk YOO and B. RUBINSKY**, «*A finite element method for the study of solidification processes in the presence of natural convection*», International. Journal For Numerical Methods in Engineering, Vol.23, pp.1785-1805, (1986).

Résume de thèse

Étude de la purification d'un matériau par fusion/solidification « Zone melting »

Dans la présente étude, l'objectif général est de proposer un modèle transitoire qui tient compte des effets multidimensionnels dans le procédé de purification par fusion de zone, « zone refining ». Avec cette modélisation, nous avons étudié les effets des principaux paramètres gouvernant le processus de purification par zone fondue à savoir :

- La vitesse de translation des sources de chauffage et de refroidissement
- L'intensité de flux de chauffage
- L'intensité de flux de refroidissement
- L'épaisseur ou la largeur de la zone fondue
- Le rapport d'aspect géométrique : Longueur/rayon

Ces différents paramètres influent de façon importante sur le processus de purification, sur son efficacité et sur le degré de purification atteint après un ou plusieurs passages des sources de chauffage et de refroidissement. Afin d'atteindre notre objectif, une étape importante de cette étude consistera à déterminer les deux paramètres : le nombre de Lewis dans le liquide, le rapport des coefficients de diffusion des espèces (liquide/solide) à affecter à notre modèle pour que le processus de purification soit correctement représenté. Pour ce faire, nous avons étudié le cas de fusion d'une tranche par une source immobile. Cette étude numérique a été réalisée à l'aide du code de calcul par éléments finis Castem 2000 dans lequel on a développé notre propre procédure de résolution pour les deux problèmes couplés, thermique et espèces, en régime transitoire.

Dans ce processus de purification contrôlé par la thermique (fusion/solidification), le temps caractéristique est presque identique pour la thermique et les espèces. Pour modéliser notre processus de purification, on s'est inspiré alors de la théorie de la diffusion, en tenant compte de la particularité de phénomènes dont le drainage et la distribution d'impuretés. Ceci nous amène à adopter des valeurs adéquates pour le nombre de Lewis et du rapport des coefficients de diffusion, en considérant un coefficient de diffusion globale prenant en compte tous ces phénomènes mal connus à l'interface et propre à ce processus de purification.

Une application dans le cas de l'alliage Silicium-germanium (SiGe) à très faible concentration a été simulée. Trois points importants ont été abordés :

- Le premier point est l'étude du transfert thermique pour deux géométries différentes afin de comparer le temps de fusion à cœur et par la suite choisir la géométrie la plus performante qui optimise l'énergie à mettre en jeu dans le procédé de purification, puis l'adopter pour notre étude. Dans un premier temps nous avons étudié les cas d'une plaque plane et d'un cylindre à section circulaire ayant le même volume et la même puissance de chauffage en conduction pure. Ce mode de transfert permet de généraliser l'étude pour l'ensemble des matériaux.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié le transfert thermique en conduction plus changement de phase (fusion) dans une petite tranche, pour un barreau à section circulaire et un barreau à section carrée en silicium pur. Dans ces deux derniers cas, l'égalité de volume et de puissance de chauffage est prise uniquement sur la tranche chauffée.

• Le deuxième point est l'étude, puis l'analyse du transfert d'espèces dans un barreau à section circulaire, chauffé sur une de ses tranches avec une source immobile. Plusieurs cas avec différentes valeurs du nombre de Lewis dans le liquide et du rapport des coefficients de diffusion chimique ont été simulés afin de choisir les deux paramètres pouvant représenter au mieux le processus de purification étudié. Cette étape est la plus importante car le choix de ces deux paramètres en dépend.
Cette étude nous a permis d'affecter alors à notre modèle multidimensionnel et de type diffusif, les deux paramètres susceptibles de mieux représenter le processus de purification étudié, à savoir un nombre de Lewis effectif Le_{eff} et un rapport des coefficients de diffusion effectif $\tilde{d}_{eff}$ qui correspondent en fait à un matériau bien donné. Ce choix permet d'atteindre l'objectif visé et qui consiste à comprendre le comportement de ce processus de purification vis-à-vis les différentes grandeurs qui le gouvernent.

• Le troisième point est l'étude du processus de purification à proprement dit. Les sources de chauffage et de refroidissement sont mobiles. Nous avons étudié l'effet bidimensionnel de chacune des grandeurs influençant le degré de pureté du matériau.

Une première étude a montré l'effet de la vitesse de translation des sources, dans le cas où l'intensité de flux de chauffage est égale à l'intensité de flux de refroidissent, ensuite dans le cas où les intensités sont différentes. Cette étude nous a conduit à choisir une configuration parmi ces deux dernières pour l'étude de l'influence des autres grandeurs.
La deuxième étude a montré l'effet de l'intensité de flux dans le cas où les intensités de deux sources sont égales, puis une troisième étude montrant l'effet de la largeur de la zone fondue et enfin une quatrième étude, fait apparaître l'effet du rapport d'aspect géométrique.

Cette approche a l'avantage d'être multidimensionnelle et prend en compte les phénomènes transitoires. Elle a mis en évidence plusieurs effets pouvant contribuer à l'optimisation de ce procédé de purification, alors que jusqu'à présent la modélisation étant unidimensionnelle et ne prenant pas en compte ces derniers effets et phénomènes.

RÉSUMÉ : CE TRAVAIL DE THÈSE EST CONSACRÉ À L'ÉTUDE D'UN MODÈLE TRANSITOIRE QUI TIENT COMPTE DES EFFETS MULTIDIMENSIONNELS DANS LE PROCÉDÉ DE PURIFICATION PAR FUSION DE ZONE. NOUS AVONS ÉTUDIÉ LES EFFETS DES PRINCIPAUX PARAMÈTRES GOUVERNANT LE PROCESSUS DE PURIFICATION À SAVOIR : LA VITESSE DE TRANSLATION DES SOURCES DE CHAUFFAGE ET DE REFROIDISSEMENT, L'INTENSITÉ DE FLUX DE CHAUFFAGE, L'INTENSITÉ DE FLUX DE REFROIDISSEMENT, LA LARGEUR DE LA ZONE FONDUE ET EN FIN LE RAPPORT D'ASPECT GÉOMÉTRIQUE. CES DIFFÉRENTS PARAMÈTRES INFLUENT DE FAÇON IMPORTANTE SUR LE PROCESSUS DE PURIFICATION, SUR SON EFFICACITÉ ET SUR LE DEGRÉ DE PURIFICATION ATTEINT APRÈS UN OU PLUSIEURS PASSAGES DES SOURCES. UNE APPLICATION DANS LE CAS DU MATÉRIAU SiGe À TRÈS FAIBLE CONCENTRATION A ÉTÉ SIMULÉE À L'AIDE DU CODE DE CALCUL PAR ÉLÉMENTS FINIS CASTEM 2000. LE RÉSULTAT DE CETTE SIMULATION A MONTRÉ LA DIFFICULTÉ DE RÉSOLUTION NUMÉRIQUE POUR UN NOMBRE DE LEWIS TRÈS GRAND. AFIN D'ATTEINDRE L'OBJECTIF VISÉ, UNE ÉTAPE IMPORTANTE DANS CETTE ÉTUDE A ÉTÉ CONSACRÉE À LA DÉTERMINATION D'UN COUPLE (NOMBRE DE LEWIS DANS LE LIQUIDE ET RAPPORT DES COEFFICIENTS DE DIFFUSION DES ESPÈCES) POUR QUE LE PROCESSUS DE PURIFICATION SOIT CORRECTEMENT REPRÉSENTÉ. POUR CE FAIRE, NOUS AVIONS ÉTUDIÉ LA FUSION D'UNE TRANCHE PAR UNE SOURCE IMMOBILE ET CHOISIR UN COUPLE CONVENABLE DE CES 2 PARAMÈTRES DÉTERMINANTS, QUI NOUS PERMET D'ATTEINDRE L'OBJECTIF VISÉ. AFIN D'ANALYSER L'EFFET DE CHACUNE DES GRANDEURS ÉVOQUÉES CI-DESSUS SUR LA PURIFICATION, UNE DEUXIÈME ÉTAPE A ÉTÉ CONSACRÉE À L'ÉTUDE DE LA PHASE DE PURIFICATION PROPREMENT DITE EN ADOPTANT UNE ÉTUDE PARAMÉTRIQUE.

THE STUDY OF MATERIAL PURIFICATION USING MELTING-SOLIDIFICATION TECHNIC "ZONE MELTING"

ABSTRACT: THIS THESIS IS DEDICATED TO THE STUDY OF A TRANSIENT MODEL THAT TAKES INTO ACCOUNT THE MULTI-DIMENSIONAL EFFECTS OF THE PROCESS OF PURIFICATION BY FUSION OF ZONE. WE STUDIED THE EFFECT OF THE MAIN PARAMETERS GOVERNING THE PROCESS OF PURIFICATION, TO KNOW: THE SPEED OF TRANSFER OF SOURCES OF HEATING AND COOLING, THE INTENSITY OF HEATING FLUX, THE INTENSITY OF COOLING FLUX, THE WIDTH OF THE MELTED ZONE AND FINALLY THE GEOMETRIC ASPECT REPORT. THESE DIFFERENT PARAMETERS HAVE A BASIC IMPACT ON THE PROCESS OF PURIFICATION, ON ITS EFFICIENCY AND ON THE DEGREE OF PURIFICATION THAT IS REACHED AFTER ONE OR SEVERAL PASSAGES OF SOURCES. AN APPLICATION IN THE CASE OF THE SiGe MATERIAL AT A VERY WEAK CONCENTRATION HAS BEEN SIMULATED WITH THE HELP OF THE CODE OF CALCULATION BY FINITE ELEMENTS CASTEM 2000. THE RESULT OF THIS SIMULATION SHOWED THE NUMERICAL RESOLUTION DIFFICULTY FOR A VERY BIG LEWIS NUMBER. IN ORDER TO REACH OUR OBJECTIVE, AN IMPORTANT PART OF THIS STUDY HAS BEEN DEDICATED TO THE DETERMINATION OF A COUPLE (NUMBER OF LEWIS IN THE LIQUID AND REPORT OF COEFFICIENTS OF SPECIES DIFFUSION) SO THAT THE PROCESS OF THE PURIFICATION IS REPRESENTED CORRECTLY. FOR THAT TO MAKE, WE STUDIED THE FUSION OF A SLICE BY AN IMMOBILE SOURCE AND CHOSE AN APPROPRIATE COUPLE OF THESE 2 PARAMETERS DETERMINANTS WHICH ALLOWED US TO REACH OUR AIM. IN ORDER TO ANALYZE THE EFFECT OF EACH OF SIZES EVOKED ABOVE ON THE PURIFICATION, A SECOND PART HAS BEEN DEDICATED TO THE STUDY OF THE ACTUAL PURIFICATION PHASE WHILE ADOPTING A PARAMETRIC STUDY.