

MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



Im2np

UNIVERSITÉ MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

INSTITUT MATÉRIAUX MICROÉLECTRONIQUE NANOSCIENCE DE
PROVENCE

LABORATOIRE DE PHYSIQUE ET CHIMIE QUANTIQUE

MEMOIRE DE MASTER

Filière : Nanophysique

Option : Photonique

Présenté par :

BRAIK Terkia

Thème

**Solidification dirigée du silicium photovoltaïque par la méthode du
champ de phase**

Soutenu le 03/09/2020, devant le jury composé de :

ZIANE	Abdelhamid	Professeur	U.M.M.T.O.	Président
BOUZAR	Hamid	Professeur	U.M.M.T.O.	Rapporteur
DEBIERRE	Jean Marc	Professeur	A.M.U	Rapporteur
MEGCHICHE	El Hocine	Professeur	U.M.M.T.O.	Examineur

Année universitaire : 2019/2020

Remerciements

Ce stage de Master a été effectué au laboratoire de physique et chimie quantique LPCQ de l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou. Un sujet proposé par le professeur Jean Marc DEBIERRE de l'institut IM2NP, université d'Aix-Marseille.

Tout d'abord, je remercie le professeur Hamid BOUZAR, directeur du LPCQ, pour sa disponibilité et ses encouragements qui m'ont été d'une grande aide lors de mon travail. Alors je souhaite qu'il trouve ici mes sincères remerciements et mon grand respect.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude au professeur Jean Marc DEBIERRE pour ses conseils, ses orientations et d'avoir dirigé ce travail de recherche avec beaucoup de patience et d'investigation mais aussi je le remercie vivement de m'avoir encouragé au cours de ces mois de stage. Je souhaite qu'il trouve dans ces quelques mots l'expression de ma gratitude et de ma sympathie.

Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance au professeur Said BOUARAB pour toutes les connaissances transmises durant mon cursus, qu'il trouve ici mes sincères remerciements et respect.

Mes remerciements sincères au professeur Abdelhamid ZIANE de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse et au professeur El Hocine MEGCHICHE pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Je remercie, également, le corps enseignant de la faculté des sciences et en particulier du département physique et son chef le professeur Hocine AOUICHICHE pour le savoir transmis durant les années de Licence et Master.

Enfin, je remercie mes amis et plus particulièrement ma famille, surtout mon père, ma mère, mon frère et ma sœur, leur affection et leur soutien ont fait ma force et les mots ne suffisent pas pour leur dire ce qu'ils représentent pour moi.

Résumé

Nous présentons dans ce manuscrit un rapport de stage du Master Nanophysique option "Photonique" de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO). Ce stage a été effectué sous la responsabilité des professeurs Hamid BOUZAR et Jean Marc DEBIERRE. Nous avons étudié durant ce stage la solidification dirigée du silicium photovoltaïque. Nous nous sommes intéressés à la cinétique de croissance de l'interface solide-liquide. Pour cela, nous avons développé un code de champ de phase à une dimension afin de reproduire les effets d'attachement cinétique observés durant les expériences réalisées par l'équipe "Microstructures de Croissance Auto-organisées" (MCA) de l'Institut Matériaux Microélectroniques Nanosciences de Provence (IM2NP), tout en validant notre code grâce à des tests de convergence. Les résultats obtenus nous ont permis d'atteindre un gain considérable en temps de calcul, ce qui ouvre des perspectives encourageantes, pour la thèse qui suivra au sein de l'équipe MCA, vers l'adaptation du code à trois dimensions aux paramètres expérimentaux pour obtenir des résultats quantitatifs, comparables aux expériences.

Abstract

We present in this manuscript an internship report of the Master in Nanophysics option "Photonics" of the University Mouloud Mammeri of Tizi-Ouzou (UMMTO). This internship was carried out under the responsibility of professors Hamid BOUZAR and Jean Marc DEBIERRE.

During this internship, we studied the directed solidification of photovoltaic silicon. We are interested in the growth kinetics of the solid-liquid interface. For this, we have developed a one-dimensional phase field code in order to reproduce the effects of kinetic attachment observed during the experiments carried out by the "Microstructures de Croissance Auto-organisées" (MCA) team of the Institut Matériaux Microélectroniques Nanosciences de Provence (IM2NP), while validating our code through convergence tests.

The results obtained allowed us to achieve a considerable gain in computing time, which opens up encouraging prospects for the thesis which will follow within the MCA team, towards the adaptation of the three-dimensional code to the experimental parameters for obtain quantitative results, comparable to experiments

Table des matières

Introduction	6
1 Aperçu sur la solidification dirigée du silicium photovoltaïque	7
1.1 Généralités sur le silicium photovoltaïque	7
1.2 Effet photoélectrique	7
1.2.1 Principe de fonctionnement des cellules solaires	10
1.3 Fabrication des cellules solaires photovoltaïques	10
1.3.1 La méthode Czochralski	10
1.3.2 Méthode de la zone flottante	11
1.3.3 Solidification dirigée du silicium	12
1.3.4 Procédé de fabrication des cellules solaires	12
1.4 Cinétique de croissance du front de solidification du silicium pur	13
1.4.1 Contexte expérimental	14
1.4.2 Croissance d'une interface rugueuse et à facette : coefficient de Jackson	16
2 Généralités sur le champ de phase	17
2.1 Le modèle du champ de phase	17
2.2 Relation avec les équations physiques : développement asymptotique	19
2.3 Anisotropie cristalline	20
2.4 Préconditionnement	21
2.5 Discrétisation de l'équation du champ de phase	22
3 Simulations en champ de phase	24
3.1 Paramètres utilisés	24
3.2 Effet des paramètres numériques sur la position du front de solidification pour le champ de phase classique	25
3.3 Effet des paramètres numériques sur la position du front de solidification en utilisant le champ de phase préconditionné	28
3.4 Effet du décalage de la fenêtre d'observation dans le temps sur la position du front de solidification	31
Conclusion et perspectives	35

Table des figures

1.1	Spectre du rayonnement solaire [10].	8
1.2	Structure de bande du silicium pur. La bande du gap indirecte (valeur de 1.11 eV) est indiquée entre les deux lignes pointillées.	9
1.3	Illustration du dopage de silicium, type N, avec du phosphore[10].	9
1.4	Illustration du dopage de silicium, type P, avec du bore [10].	9
1.5	Méthode de Czochralski [10].	11
1.6	Lingots de silicium monocristallin obtenus par la méthode de Czochralski : celui de gauche a un diamètre de 200 mm et celui de droite un diamètre de 150 mm [10]. . .	11
1.7	Méthode de la zone flottante [10].	12
1.8	Principe d'une expérience de solidification dirigée.	12
1.9	Étapes de fabrication des cellules solaires [10].	13
1.10	a) Position stationnaire de l'interface. b) Position de l'interface à l'équilibre [9]. . . .	15
1.11	Vitesse de croissance en fonction du sous-refroidissement, comparaison entre : résultats de l'équipe MCA pour le silicium pur et résultats de Fujiwara [9].	15
2.1	Représentation spatiale du champ de phase φ et du champ de phase préconditionné ψ	18
2.2	Maillage régulier utilisé pour discrétiser le barreau de silicium. Les conditions aux limites sont imposées sur les points 0 et $N+1$	22
3.1	Variation de ζ en fonction du temps pour des ξ différents, à $h = 0.4$ et $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ	27
3.2	Variation de ζ en fonction de h à $\xi = 5000$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ	27
3.3	Variation de ζ en fonction de ξ à $h = 0.4$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ	28
3.4	Variation de ζ en fonction de h à $\xi = 5000$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ de phase préconditionné ψ	29
3.5	Variation de ζ en fonction de ξ à $h = 0.8$ et pour pas de temps numérique $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ de phase préconditionné ψ	30
3.6	Comparaison de ζ en fonction de h pour le champ de phase classique et préconditionné (paramètre d'échelle $\xi=5000$). Pour le code en champ ψ , $\delta t = 0.2 \times h^2$ et pour le code en champ φ , $\delta t = 0.1 \times h^2$. La valeur $h=1.0$ entourée par un cercle, correspond à la valeur qu'on choisira dans la suite de nos simulations avec le champ ψ	30
3.7	Comparaison de ζ en fonction de ξ pour le champ de phase classique et préconditionné. Pour le code en champ ψ , $h = 0.8$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$. Pour le code en champ φ , $h = 0.4$ et $\delta t = 0.1 \times h^2$	31
3.8	Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage et sans décalage pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ	32
3.9	Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ	32
3.10	Schéma d'exécution d'un programme CUDA.	33

3.11 Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage, en simple précision, pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ 33

Introduction

Ce travail de nature numérique, proposé par le professeur Jean Marc DEBIERRE, porte sur l'étude de la solidification dirigée du silicium photovoltaïque par la méthode du champ de phase.

Le choix de ce sujet est lié au rôle prépondérant que joue le silicium dans le domaine de l'industrie photovoltaïque depuis plusieurs décennies. En effet, l'exploitation de l'énergie solaire réduit considérablement l'émission de gaz à effet de serre, issus des énergies fossiles, et responsables du réchauffement climatique. Cependant le développement de l'industrie photovoltaïque nécessite encore des avancées significatives pour répondre à la demande toujours plus exigeante de rendements élevés et de coûts réduits. La fabrication des panneaux solaires à base de silicium se déroule en trois étapes principales :

- la purification de la matière première qui permet d'obtenir le silicium.
- la solidification : c'est cette étape qui permet l'obtention des lingots qui sont ensuite découpés en plaquettes.
- la fabrication des cellules solaires à partir des plaquettes obtenues.

Le phénomène étudié dans le cadre de mon stage est la solidification dirigée qui permet d'obtenir des lingots de silicium suffisamment purs et quasiment monocristallins. On s'intéressera plus précisément à l'interface entre les deux phases, solide et liquide, ainsi qu'à la dynamique de formation du solide à l'interface.

De nos jours, l'observation à l'échelle du micron est devenue possible grâce au développement de la résolution des caméras qui permet d'effectuer des caractérisations in-situ de la solidification. De plus, l'avènement des supercalculateurs et de la parallélisation mettant à profit l'architecture des GPU (Graphics Processing Unit) a repoussé les limites des moyens et des temps de calcul et a donc impulsé la simulation numérique.

Dans ce contexte, ce mémoire s'étend sur trois chapitres complémentaires entre eux qui traitent respectivement de généralités sur la solidification dirigée du silicium où certains résultats expérimentaux sont considérés, de la méthode du champ de phase et enfin des résultats des simulations numériques obtenus au cours de ce stage. Ces chapitres sont suivis par une conclusion générale et des perspectives.

Chapitre 1

Aperçu sur la solidification dirigée du silicium photovoltaïque

Il s'agit ici de présenter quelques concepts sur la solidification dirigée du silicium photovoltaïque dont beaucoup seront nécessaires pour la discussion des résultats obtenus dans les chapitres suivants. La première partie du chapitre est dédiée à quelques généralités sur le silicium photovoltaïque et au principe de fonctionnement des cellules solaires. Dans la seconde partie, on présente quelques procédés utilisés pour la fabrication des cellules solaires photovoltaïques, le cas particulier de la solidification dirigée étant considéré. La dernière partie du chapitre, contient des notions de base sur la cinétique de croissance du front de solidification du silicium.

1.1 Généralités sur le silicium photovoltaïque

Le silicium est un matériau semi-conducteur utilisé notamment pour des applications photovoltaïques. Dans cette partie, on présentera quelques généralités sur l'effet photovoltaïque et on décrira le procédé de fabrication des cellules solaires à base de silicium ainsi que leurs principes de fonctionnement.

1.2 Effet photoélectrique

L'effet photoélectrique utilisé dans les cellules solaires, permet de convertir directement l'énergie lumineuse en énergie électrique dans un matériau semi-conducteur. À 0 K, les semi-conducteurs ont le comportement des isolants. En effet, la bande de valence est totalement remplie alors que la bande de conduction est entièrement vide. Quand la température augmente, les électrons de la bande de valence sont excités thermiquement et ils sautent vers la bande de conduction où ils circulent librement, ce qui augmente la conductivité électrique du semi-conducteur. En réalité, la conductivité électrique dépend du rapport $E_g/k_B T$ entre la largeur de la bande interdite et l'énergie thermique. Quand ce rapport est grand, la conductivité est faible. Pour le silicium, $E_g \simeq 1.11$ eV et $k_B T \simeq 26$ meV à 300 K [1]. Afin d'augmenter la courant électrique, il faudrait avoir plus d'électrons dans la bande de conduction. Pour cela, le semi-conducteur peut être exposé à des ondes lumineuses qui exciteront les électrons de la bande de valence. Les électrons qui recevront une énergie égale ou supérieure à E_g , se déplaceront vers la bande de conduction, laissant des états vides dans la bande de valence appelés trous.

Dans un semi-conducteur pur, le nombre de porteurs est faible à température ambiante. Pour augmenter la conductivité électrique des semi-conducteur, on y introduit des impuretés. Ce

procédé est appelé dopage.

Pourquoi le silicium ?

Le silicium a été choisi pour réaliser les cellules solaires photovoltaïques car c'est un élément très abondant sur terre [2] et aussi pour ses propriétés électroniques. Le gap du silicium est proche du maximum du spectre du rayonnement solaire. En effet, on voit sur la figure (1.1) que la longueur d'onde maximale du spectre solaire correspond à $\lambda_{max}=504$ nm (vert), soit une énergie

$$E_{max} = \frac{hc}{\lambda_{max}} = 2.46eV. \quad (1.1)$$

Les photons ont donc suffisamment d'énergie pour faire franchir le gap aux électrons de valence ($h\nu \geq E_g$). Le silicium est caractérisé par la présence de quatre électrons sur sa couche périphérique. Dans le silicium solide, chaque atome est lié à quatre voisins, et tous les électrons de la couche périphérique participent aux liaisons.

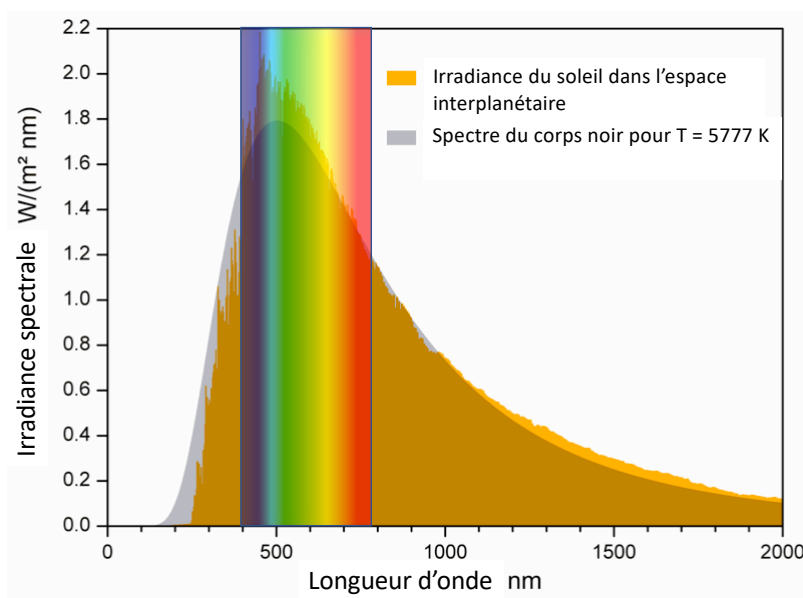


FIGURE 1.1 – Spectre du rayonnement solaire [10].

Dopage de type N

On remplace un atome de silicium par un atome pentavalent. Quatre des électrons assurent les liaisons avec les atomes voisins de silicium et le cinquième resté disponible va être excité vers la bande de conduction très facilement par l'agitation thermique. D'où le nombre d'électrons de conduction qui va fortement augmenter : dans ce cas, le nombre de trous est très inférieur au nombre d'électrons libres. On obtient ainsi un cristal dopé N (négatif), le dopant utilisé est souvent du phosphore.

Dopage de type P

Lorsqu'on introduit des atomes trivalents, les trois électrons vont assurer les liaisons covalentes avec trois atomes voisins mais laisser un trou au niveau du quatrième. Ce trou se

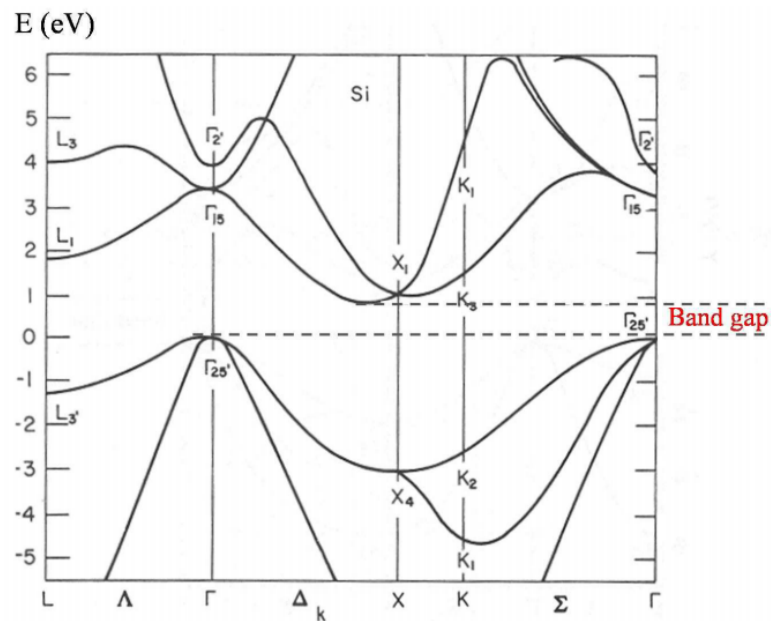


FIGURE 1.2 – Structure de bande du silicium pur. La bande du gap indirecte (valeur de 1.11 eV) est indiquée entre les deux lignes pointillées.

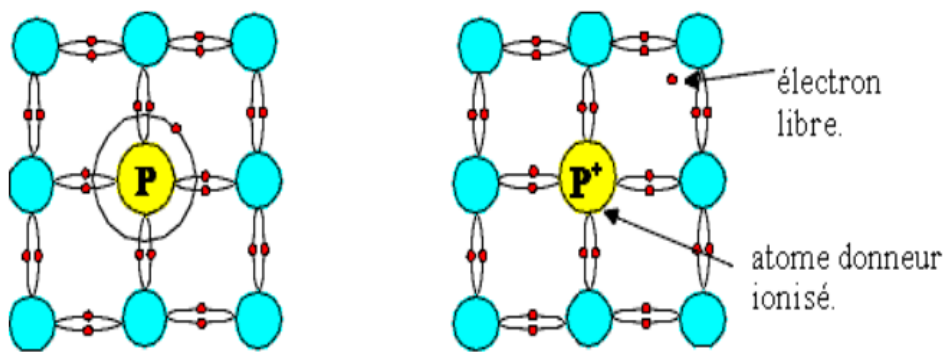


FIGURE 1.3 – Illustration du dopage de silicium, type N, avec du phosphore[10].

déplace de proche en proche dans le cristal pour créer un courant. Ici le nombre de trous est très supérieur au nombre d'électrons libres du cristal intrinsèque, on obtient donc un cristal dopé P (positif), le dopant utilisé est souvent du bore.

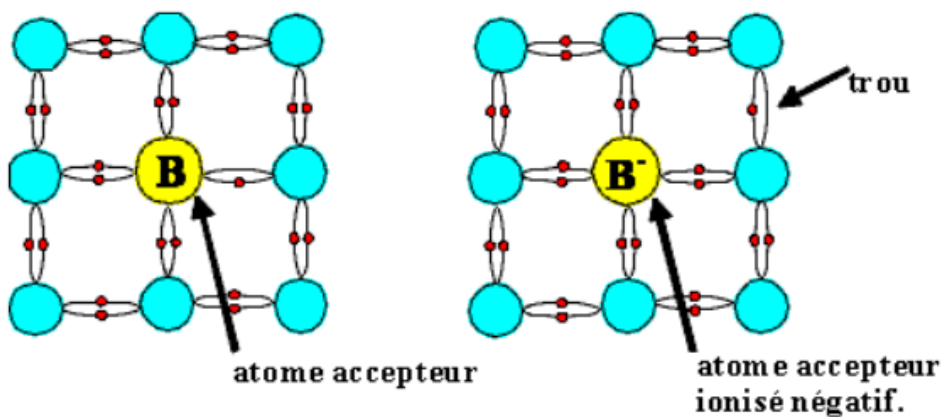


FIGURE 1.4 – Illustration du dopage de silicium, type P, avec du bore [10].

1.2.1 Principe de fonctionnement des cellules solaires

Afin de tirer un profit de l'effet photoélectrique dans la production d'énergie électrique, il est plus efficace de créer une jonction P-N qui est l'accolement d'une région dopée P et d'une région dopée N. À proximité de la jonction, les électrons de conduction excédentaires coté N passent au coté P pour se recombiner avec des trous. Ainsi, une charge d'espace statique négative se crée coté P et une charge d'espace statique positive se crée coté N. La région où réside cette charge d'espace est appelé zone de charge d'espace ou zone de déplétion.

Principe de fonctionnement d'une cellule solaire photovoltaïque

La cellule solaire est une photodiode à jonction PN de grande surface qui génère une tension électrique sans l'aide d'une source d'énergie auxiliaire. Lorsque les photons issus du soleil frappent la cellule, certains sont réfléchis et d'autres sont transmis ou absorbés dans la cellule solaire, seuls les photons absorbés participent à l'effet photoélectrique. La conversion photovoltaïque met en jeu trois phénomènes physiques, intimement liés et simultanés :

- l'absorption de la lumière dans le matériau,
- le transfert d'énergie des photons aux charges électriques,
- la collecte des charges.

Il est donc clair que les matériaux constituant une cellule solaire doivent avoir des propriétés optiques et électriques spécifiques pour permettre la conversion photovoltaïque. Dans le but de collecter un courant électrique à partir des paires électron-trou générées, un champ électrique permettant de les dissocier est nécessaire.

1.3 Fabrication des cellules solaires photovoltaïques

Pour fabriquer des panneaux solaires, des plaquettes de Si sont nécessaires. Les tranches de Si sont obtenues par découpe à travers des lingots de Si monocristallin ou polycristallin. Les méthodes courantes pour obtenir du Si monocristallin sont : la méthode de Czochralski [3] et le processus de la zone flottante. Un aperçu de ces deux méthodes est donné ci-dessous.

1.3.1 La méthode Czochralski

Pour produire du silicium monocristallin, on utilise la même technique que dans l'industrie des composants électroniques. La méthode Czochralski [3] est l'une des seules permettant d'obtenir de gros monocristaux de qualité optique suffisante. Le matériau à élaborer est d'abord porté à la fusion dans un creuset (figure 1.5). Un germe monocristallin est approché du centre de la surface du bain, avec laquelle il est mis en contact. Le liquide remonte par capillarité le long du germe, créant une interface triple liquide-solide-gaz. Le germe est ensuite lentement tiré vers le haut, à des vitesses de l'ordre du millimètre par heure, pour former un monocristal. L'ensemble de la croissance est effectuée en maintenant le cristal en rotation, de manière à homogénéiser le bain et à contrôler la forme de l'interface solide/liquide. Cependant, les lingots de silicium développés par la méthode de Czochralski contiennent des impuretés puisque le creuset qui contient le liquide, se dissout partiellement. Pour certains dispositifs électroniques, en particulier ceux exigés pour des applications de puissance élevée, le silicium obtenu par la méthode de Czochralski n'est pas assez pur. Pour ces applications, le silicium conçu par la méthode de zone flottante peut l'améliorer.

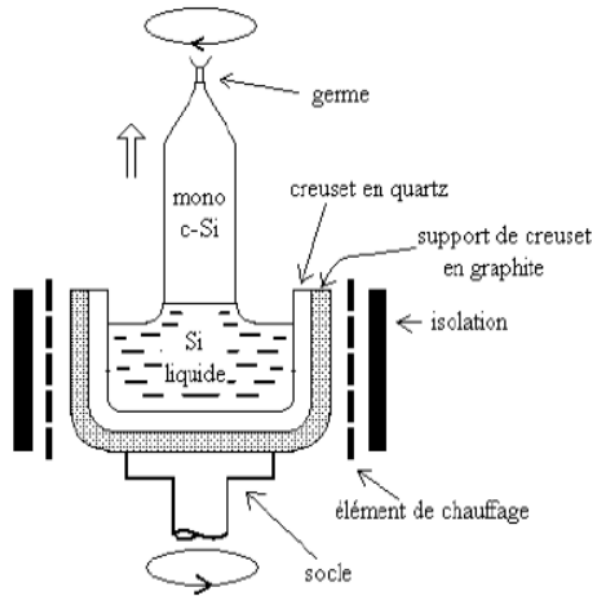


FIGURE 1.5 – Méthode de Czochralski [10].



FIGURE 1.6 – Lingots de silicium monocristallin obtenus par la méthode de Czochralski : celui de gauche a un diamètre de 200 mm et celui de droite un diamètre de 150 mm [10].

1.3.2 Méthode de la zone flottante

Du silicium extrêmement pur peut être obtenu par la méthode de la zone flottante [4] qui s'est maintenant imposée dans le domaine des semi-conducteurs. Une fine tranche du lingot de silicium à purifier est fondue. La zone fondue est progressivement déplacée d'une extrémité du cristal à l'autre. Elle est maintenue par la tension superficielle. Un contrôle judicieux des températures, des vitesses de déplacement et de rotation conduit à la recristallisation de tout le barreau. Les impuretés qui s'accumulent dans la zone fondue sont ainsi entraînées à l'extrémité du lingot qui peut être découpé après solidification. L'opération peut être répétée plusieurs fois jusqu'à obtenir le niveau de pureté désiré. La pureté du lingot monocristallin est déterminée par la pureté du matériau de départ, par celle de l'atmosphère ambiante (vide poussé, gaz inerte) et par les parois du récipient. Des lingots de 15-20 cm de diamètre et de plusieurs dizaines de kilogrammes sont ainsi aisément fabriqués. Les cristaux fabriqués par la méthode de la zone flottante sont très purs grâce à l'absence de contact entre la phase fondue et un creuset. Par contre, leurs résistances mécanique et thermique sont relativement faibles.

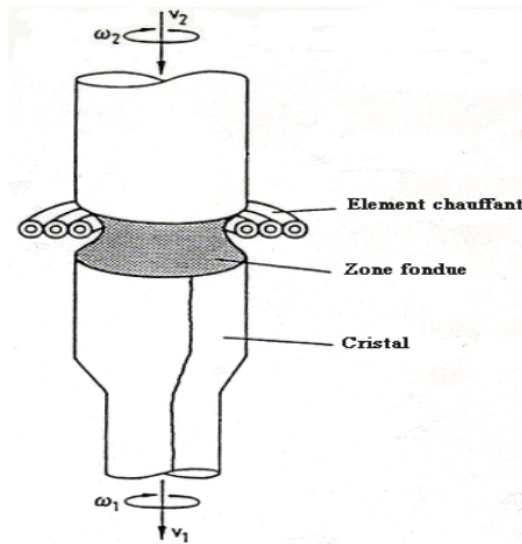


FIGURE 1.7 – Méthode de la zone flottante [10].

1.3.3 Solidification dirigée du silicium

Le phénomène étudié au cours du stage est la solidification, à savoir la transformation physique de l'état liquide vers l'état solide. Selon les conditions expérimentales, la croissance de la phase solide peut être libre ou dirigée. La solidification libre d'un corps pur [5] démarre d'un germe cristallin plongé dans un liquide sous refroidi. Une dendrite croît en choisissant elle-même sa vitesse d'avancée, sa forme et sa direction en fonction du sous refroidissement qu'on lui impose. Dans les procédés industriels et naturels, des gradients thermiques locaux existent en général. L'importance de la solidification sous gradient thermique nous a donc poussé à laisser de côté la croissance libre et à nous intéresser au phénomène le plus répandu, la solidification dirigée.

Le principe de la solidification dirigée dans un four de Bridgman est présenté sur la figure (1.8). L'expérience consiste à faire croître un solide cristallin à partir d'un liquide en lui imposant un gradient de température G et en le déplaçant à une vitesse v_p contrôlée.

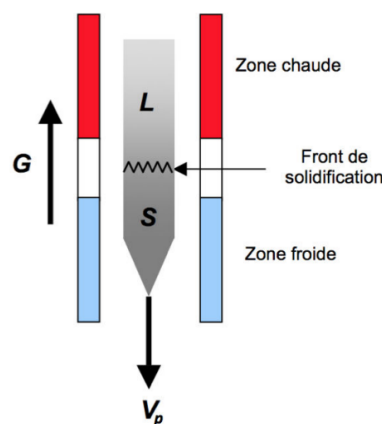


FIGURE 1.8 – Principe d'une expérience de solidification dirigée.

1.3.4 Procédé de fabrication des cellules solaires

Une fois que les lingots de silicium sont obtenus, des plaquettes de silicium sont coupées. À partir de ces plaquettes, des cellules solaires [6] sont fabriquées en plusieurs étapes :

- a) Dopage : les plaquettes de silicium sont dopées afin d'obtenir une jonction PN.
- b) Texturation : après dopage, les défauts superficiels sont éliminés. Pour limiter la recombinaison des porteurs de charge, une couche antireflet est déposée sur la face avant. Habituellement, la couche antireflet est en nitrure de silicium ou en oxyde de silicium. Cette étape permet de maintenir la conductivité d'une façon plus durable dans le temps : une jonction P-N efficace est ainsi formée.
- c) Contacts métalliques : pour récupérer l'excès des électrons et obtenir un courant électrique, deux contacts métalliques sont déposés à l'avant et à l'arrière de la cellule. Généralement, Ag et Al sont choisis pour cela.
- d) Encapsulation : un panneau solaire est composé de plusieurs cellules solaires. L'encapsulation du panneau est nécessaire pour sa protection. Le panneau est encapsulé entre deux couches d'éthylène-acétate de vinyle ou poly (butyral vinylique). Ces deux polymères sont à la fois transparents, étanches et résistants à la chaleur. Pour gagner en rigidité, l'ensemble est placé entre deux plaques de verre puis enserré dans un cadre métallique, souvent en aluminium.

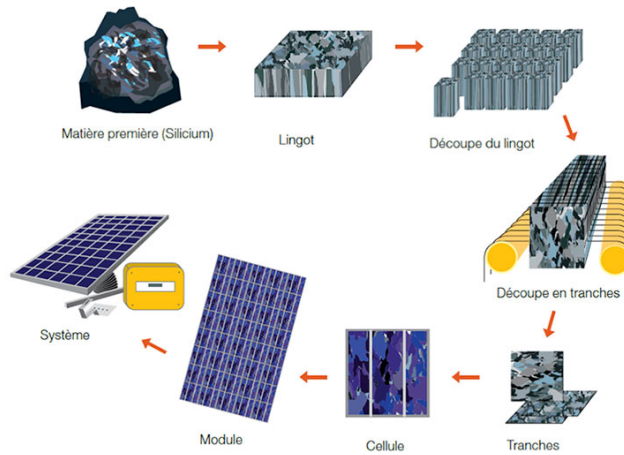


FIGURE 1.9 – Étapes de fabrication des cellules solaires [10].

1.4 Cinétique de croissance du front de solidification du silicium pur

La cinétique de croissance et la stabilité de l'interface peuvent être reliées au sous-refroidissement de l'interface solide-liquide qui s'écrit

$$\Delta T = T_M - T, \quad (1.2)$$

où T_M est la température de fusion et T est la température de l'interface solide-liquide. Le sous-refroidissement cinétique dépend de l'orientation cristalline du solide. La vitesse de croissance est généralement liée au sous-refroidissement par une équation du type [7]

$$v_p = f(\Delta T), \quad (1.3)$$

où f est une fonction qui dépend du mécanisme d'attachement des atomes. Dans le cas d'une croissance uniforme ou d'une interface rugueuse, la vitesse de croissance suit une loi linéaire :

$$v_p = \mu \Delta T, \quad (1.4)$$

où μ est une constante qui prend en compte la probabilité d'incorporation des atomes à l'interface, la géométrie du cristal et la chaleur latente de solidification.

Fujiwara [8] a déterminé une relation entre la vitesse v_p et le sous-refroidissement ΔT , en réalisant des expériences sur la croissance du silicium. La température de fusion, T_M , a été déterminée lorsque l'interface était immobile. Ensuite, le silicium fondu a été amené à une température inférieure à T_M , de sorte que le cristal pouvait croître dans la masse fondue sous-refroidie. Plusieurs valeurs du sous-refroidissement ont été imposées et pour chacune d'entre elles, la vitesse de croissance de l'interface solide-liquide a été mesurée. Les expérimentateurs [8] ont ainsi déterminé une relation entre la vitesse de croissance de l'interface solide-liquide et le sous-refroidissement,

$$v_p = 7.5\Delta T. \quad (1.5)$$

Pour établir cette relation, il n'y avait aucun contrôle de l'orientation des grains cristallins durant la croissance. Cette relation peut donc être considérée comme l'équation s'appliquant à la cinétique de croissance de l'interface solide-liquide du silicium pur en moyenne.

1.4.1 Contexte expérimental

Durant ces dernières années, des expériences [9] ont été réalisées par l'équipe MCA (Microstructures de Croissance Auto-organisées) de l'IM2NP dans le but de déterminer le sous-refroidissement, dans les conditions de la solidification dirigée. Ces expériences sont réalisées en fonction de la vitesse de croissance du silicium pur, en utilisant le principe de la radiographie par rayons X. Cette technique permet de suivre l'évolution de l'interface solide-liquide pendant la croissance, in situ et en temps réel. Les vitesses de croissance et les positions de l'interface solide-liquide sont directement mesurées sur les images. Le gradient de température est fixé à $G=15$ K/cm.

Pour obtenir le sous-refroidissement de l'interface solide-liquide, les expérimentateurs [9] ont mesuré le décalage, Δz , entre la position de l'interface solide-liquide et la position d'équilibre (figure 1.10). Le sous-refroidissement est obtenu par

$$\Delta T = G\Delta z. \quad (1.6)$$

Cette technique a été répétée pour 4 vitesses de tirage différentes (5, 10, 20 et 30 $\mu\text{m/s}$). Après avoir mesuré le décalage Δz pour chaque vitesse, le sous-refroidissement ΔT est calculé avec l'équation (1.6). La figure (1.11) montre le sous-refroidissement en fonction de la vitesse qui varie linéairement pour le silicium pur [9],

$$v_p(\mu\text{m}) = (8 \pm 2)\Delta T(K). \quad (1.7)$$

Ces résultats (figure 1.11) sont en bon accord avec ceux de Fujiwara malgré les différences dans les conditions expérimentales. En effet, les deux lois obtenues sont linéaires et les coefficients sont du même ordre de grandeur. Cet accord montre qu'il existe à l'interface solide-liquide du silicium pur, un sous-refroidissement cinétique dépendant de la vitesse de croissance.

La température locale de l'interface est donnée par l'équation de Gibbs-Thomson adimensionnée qui exprime l'équilibre thermodynamique,

$$u_i = -\frac{d_0}{R} - \beta v_n = \frac{c_p}{l_h}(T - T_M), \quad (1.8)$$

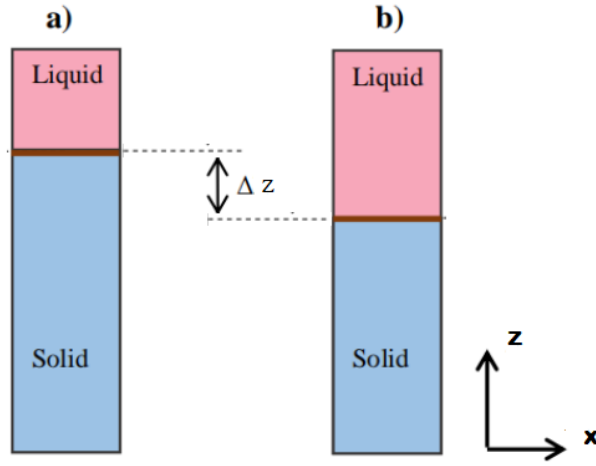


FIGURE 1.10 – a) Position stationnaire de l’interface. b) Position de l’interface à l’équilibre [9].

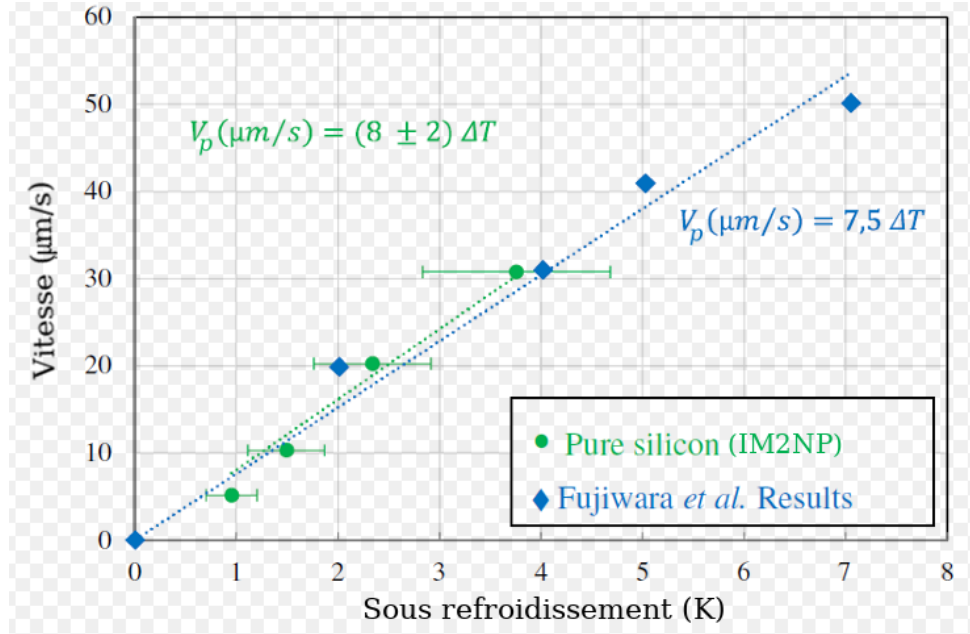


FIGURE 1.11 – Vitesse de croissance en fonction du sous-refroidissement, comparaison entre : résultats de l’équipe MCA pour le silicium pur et résultats de Fujiwara [9].

d_0 et R étant la longueur capillaire et le rayon de courbure local, β et v_n étant le coefficient d’attachement cinétique et la vitesse normale à l’interface respectivement. Dans la suite de notre travail, on considérera un front de solidification plan ($R \rightarrow \infty$) donc, aux temps longs, on aura

$$u_i = -\beta v_p = -\frac{c_p}{l_h} \Delta T, \quad (1.9)$$

où c_p et l_h sont la chaleur spécifique à pression constante et la chaleur latente respectivement. En utilisant la relation de Fujiwara (équation 1.5), on obtient

$$\beta = \frac{c_p}{l_h \times 7.5}. \quad (1.10)$$

Ce qui donne, pour le silicium, une valeur du coefficient d’attachement cinétique $\beta = 0.5 \cdot 10^{-4}$ s/ μm soit $\beta = 0.5$ s/cm. Cette valeur du coefficient cinétique sera utilisée par la suite dans nos simulations numériques.

1.4.2 Croissance d'une interface rugueuse et à facette : coefficient de Jackson

Pour déterminer si la morphologie de l'interface est à facette ou rugueuse, K. Jackson [10] a proposé un paramètre défini par

$$\alpha = \frac{nl_h}{Zk_B T_M}, \quad (1.11)$$

où l_h est la chaleur latente de fusion, k_B la constante de Boltzmann, T_M la température de fusion, Z est le nombre de proches voisins dans le cristal et n est le nombre de proches voisins à l'interface. La morphologie de l'interface est déterminée par le critère suivant :

- interface à facette, si $\alpha > 2$,
- interface rugueuse, si $\alpha < 2$.

Le plan [111] du silicium qui est le plus dense, contient un nombre de proches voisins $n=3$, le nombre de plus proches voisins dans le silicium est $Z=4$, donc $\alpha=2.7$, contrairement au plan [100] et [110] où $n=2$ ($\alpha=1.6$) et $n=1$ ($\alpha=0.9$) respectivement. Le plan [111] du silicium est donc le seul qui développe des facettes durant la croissance de l'interface solide liquide.

Chapitre 2

Généralités sur le champ de phase

La description de la solidification par des simulations numériques reste un défi à cause des instabilités qui apparaissent au niveau de l'interface solide-liquide. Ces instabilités qui sont génériques pour les problèmes aux frontières libres dépendant du temps (PFLDT) [11] sont régies par les lois de la physique non linéaire. En effet, compte tenu des conditions de conservation à l'interface solide-liquide et de la géométrie complexe de l'interface, la solidification devient un problème non linéaire qui n'a pas de solution analytique exacte.

La méthode du champ de phase permet néanmoins de s'attaquer à ce problème. Pour cette raison, elle est devenue une méthode standard de résolution des PFLDT. Grâce à l'utilisation d'un paramètre d'ordre qui décrit l'état local de la matière, elle donne accès au champ de température et à la position de l'interface solide-liquide, quelle que soit sa complexité, ceci sans résoudre les équations du mouvement en chaque point de l'interface.

Les origines du modèle du champ de phase se trouvent dans la thermodynamique hors équilibre et la théorie de Landau [12] des transitions de phase. La méthode consiste à suivre l'évolution d'un paramètre d'ordre φ qui varie dans l'espace et dans le temps, passant de +1 dans la phase solide (état ordonné) à -1 dans la phase liquide (état désordonné), en variant de manière continue à travers l'interface. Ce paramètre d'ordre est donc un champ scalaire qu'on appelle champ de phase.

2.1 Le modèle du champ de phase

Dans cette partie, on présentera le modèle du champ de phase développé par Alain Karma [5]. La solidification d'un corps pur est gouvernée par l'équation physique de la diffusion de la chaleur,

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D \nabla^2 u, \quad (2.1)$$

où le coefficient de diffusion de la chaleur D est le même dans les phases solide et liquide dans le cas du problème symétrique que l'on considère ici.

À l'interface solide-liquide, la conservation de la chaleur est donnée par

$$v_n = D \left[(\vec{\nabla} u)_S - (\vec{\nabla} u)_L \right] \vec{n}. \quad (2.2)$$

Ici,

$$\vec{n} = -\frac{\vec{\nabla} \varphi}{|\vec{\nabla} \varphi|} \quad (2.3)$$

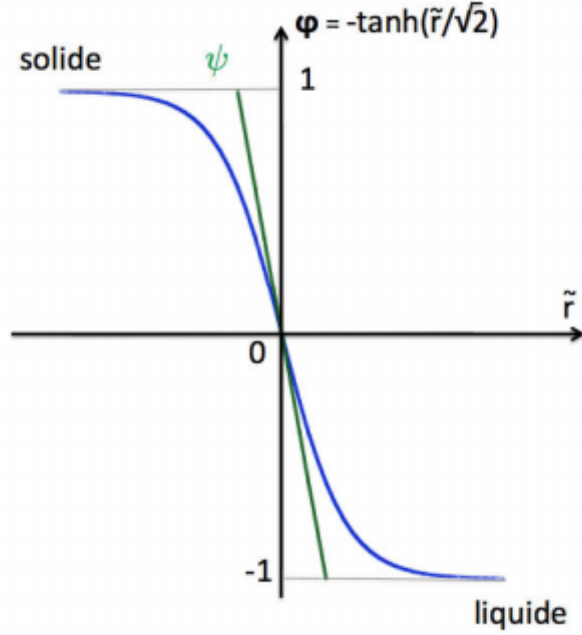


FIGURE 2.1 – Représentation spatiale du champ de phase φ et du champ de phase préconditionné ψ .

est le vecteur normal à l'interface solide-liquide, dirigé vers le côté liquide et v_n est la vitesse normale de cette interface.

Dans le cadre de la formulation variationnelle isotherme, on écrit la fonctionnelle de l'énergie libre F du système comme l'intégrale dans tout l'espace d'une densité d'énergie libre

$$F[\varphi, T] = \int \left\{ \frac{[W(\vec{n})]^2}{2} |\vec{\nabla} \varphi|^2 + f(\varphi) + \lambda u g(\varphi) \right\} dV, \quad (2.4)$$

où la largeur de l'interface $W(\vec{n})$ dépend de l'orientation de l'interface par rapport à une direction de référence. L'équation d'évolution du champ de phase est obtenue en exprimant la relaxation de l'énergie libre F vers un minimum,

$$\tau(\vec{n}) \frac{\partial \varphi}{\partial t} = -\frac{\delta F}{\delta \varphi} = W^2(\vec{n}) \nabla^2 \varphi - f'(\varphi) - \lambda u g'(\varphi), \quad (2.5)$$

où $\tau(\vec{n})$ est un temps de relaxation caractéristique. Comme φ augmente dans le temps (solidification), l'équation (2.5) implique que l'énergie libre F décroît avec le temps pour tendre vers un équilibre thermodynamique.

En raison de l'équilibre solide-liquide à l'interface, on impose que $f(\varphi)$ ait la forme d'un double puits qui a 2 minima à $\varphi = \pm 1$,

$$f(\varphi) = (-\varphi^2/2 + \varphi^4/4). \quad (2.6)$$

L'équation d'évolution du champ de température est donnée par

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D \nabla^2 u + \frac{1}{2} \frac{\partial h(\varphi)}{\partial t}. \quad (2.7)$$

Pour garantir que le modèle du champ de phase conserve la chaleur latente générée à l'interface, $h(\varphi)$ doit satisfaire la condition

$$\frac{h(\varphi = +1) - h(\varphi = -1)}{2} = 1. \quad (2.8)$$

Ce qui nous permet de choisir $h(\varphi)$ et $g(\varphi)$ indépendamment. Le choix se porte habituellement sur

$$g(\varphi) = \varphi - 2\varphi^3 + \varphi^5, \quad (2.9)$$

qui garde les minima de l'énergie libre à $\varphi = \pm 1$ indépendamment de u , avec

$$h(\varphi) = \varphi. \quad (2.10)$$

2.2 Relation avec les équations physiques : développement asymptotique

Afin de relier les équations du champ de phase (2.5) et (2.7) aux équations physiques (2.1) et (2.2), on se sert de l'analyse asymptotique [13][14]. On se contente dans cette partie de donner le principe et les résultats de l'analyse développée par A. Karma [13]. L'analyse asymptotique commence par un changement de variable. La longueur capillaire d_0 et le temps caractéristique $t_0 = \frac{d_0^2}{D}$ sont utilisés respectivement comme unité de longueur l et de temps t . Ces grandeurs sont alors adimensionnées comme

$$l \longrightarrow l' = \frac{l}{d_0} \quad (2.11)$$

$$t \longrightarrow t' = \frac{tD}{(d_0)^2}. \quad (2.12)$$

Les équations (2.5) et (2.7) deviennent dans ce cas

$$\xi^2 D^* \frac{\partial \varphi}{\partial t'} = \xi^2 \nabla'^2 \varphi - f'(\varphi) - \lambda u g'(\varphi), \quad (2.13)$$

où on a posé

$$D^* = \frac{D\tau_0}{W_0}, \quad (2.14)$$

et

$$\frac{\partial u}{\partial t'} = \nabla'^2 u + \frac{1}{2} \frac{\partial \varphi}{\partial t'}. \quad (2.15)$$

Par la suite, on omettra les primes pour simplifier les écritures. L'épaisseur de l'interface adimensionnée $\xi = \frac{W_0}{d_0}$ détermine le raccordement entre la zone interne (ZI) et la zone externe (ZE). Elle est donc choisie comme paramètre du développement asymptotique. La zone interne est destinée à décrire le système à l'échelle de l'épaisseur de l'interface W_0 . Il se trouve que le paramètre d'ordre varie très rapidement dans la direction normale à l'interface, sur une distance de quelques longueurs capillaires seulement (quelques nm). Cependant, sa variation s'étend sur une longueur de l'ordre du rayon de courbure (quelques μm) dans la direction tangente à l'interface. Pour ajuster les deux échelles de longueur, nous définissons une nouvelle variable d'espace,

$$\eta = \frac{r}{\xi}, \quad (2.16)$$

où r est la coordonnée suivant la normale à l'interface située en $r = 0$, avec $r > 0$ du côté liquide. En tenant compte de ces changements de variable et des conditions aux limites ($\varphi \simeq 1$ pour $\eta \lesssim -10$ et $\varphi \simeq -1$ pour $\eta \gtrsim 10$), on obtient la solution (à l'ordre 0),

$$\varphi_0 = -\tanh\left(\frac{\eta}{\sqrt{2}}\right), \quad (2.17)$$

et

$$u_0 = 0. \quad (2.18)$$

À l'ordre 1 du développement asymptotique, on obtient

$$u_1 = -\frac{a_1 W_0}{\lambda} R - \frac{a_1 \tau_0}{\lambda W_0} \left(1 - \frac{a_2 \lambda W_0}{D \tau_0}\right) v_n, \quad (2.19)$$

avec $a_1 = 5\sqrt{2}/8 \approx 0.8839$ et $a_2 = 47/75 \approx 0.6267$ [13].

Les équations (2.19) et (1.8) devant être les mêmes, on obtient

$$d_0 = a_1 \frac{W_0}{\lambda}, \quad (2.20)$$

soit

$$\lambda = a_1 \xi \quad (2.21)$$

et, d'après [9],

$$\beta = a_1 \left[\frac{\tau_0}{a_1 \xi W_0} - a_2 a_1 \frac{W_0}{D} \right] \quad (2.22)$$

qu'on peut écrire comme

$$\beta = \beta_0 \left[1 - \frac{a_2 a_1 \xi}{D^*} \right], \quad (2.23)$$

avec

$$\beta_0 = \frac{\tau_0}{\xi W_0}. \quad (2.24)$$

2.3 Anisotropie cristalline

Pour un solide anisotrope, l'énergie de surface s'écrit,

$$\gamma(\vec{n}) = \gamma_0 a_s(\vec{n}) \quad (2.25)$$

où γ_0 est une constante et $a_s(\vec{n})$ est une fonction sans dimension caractéristique du réseau cristallin. La relation de Gibbs-Thomson vue précédemment (équation 1.8) doit donc être adaptée pour prendre en compte les effets de cette anisotropie. On peut incorporer cette fonction d'anisotropie dans le modèle du champ de phase à travers l'épaisseur d'interface [16]

$$W(\vec{n}) = W_0 a_s(\vec{n}). \quad (2.26)$$

L'anisotropie cristalline influence également le coefficient d'attachement cinétique

$$\beta(\vec{n}) = \beta_0 a_k(\vec{n}). \quad (2.27)$$

Le terme cinétique faisant intervenir le temps par le biais de la vitesse de l'interface, il est naturel de l'associer au temps de relaxation τ_0 , qui devient alors

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 \left[a_k(\vec{n}) a_s(\vec{n}) + \frac{a_2 \lambda}{D^*} a_s(\vec{n})^2 \right], \quad (2.28)$$

en repartant de l'équation (2.22) et en remplaçant W_0 par $W_0 a_s(\vec{n})$ et τ_0 par $\tau_0 a_\tau(\vec{n})$. Ce résultat peut bien s'écrire sous la forme

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 a_\tau(\vec{n}). \quad (2.29)$$

On obtient alors le coefficient d'attachement cinétique sous la forme

$$\beta(\vec{n}) = \frac{a_1 \tau_0}{\lambda W_0} \left[\frac{a_\tau}{a_s} - \lambda a_2 \frac{W_0^2 a_s}{D \tau_0} \right]. \quad (2.30)$$

Pour des directions de croissance où $a_k=0$ (pas d'attachement cinétique), avec $\lambda = \frac{D^*}{a_2}$, on obtient

$$a_\tau = a_s^2, \quad (2.31)$$

donc

$$\tau = \tau_0 = \beta_0 d_0 \xi^2, \quad (2.32)$$

avec

$$\beta_0 = a_1 a_2 \frac{\xi d_0}{D}. \quad (2.33)$$

Pour des directions de croissance où $a_k \neq 0$, comme la direction [111] que l'on considère ici et en posant $a_s=1$, on obtient

$$a_\tau = a_k + 1 = \frac{1}{\tau_0} \left[\beta d_0 \xi^2 + \frac{a_1 a_2 \xi W_0^2}{D} \right], \quad (2.34)$$

donc

$$\tau = d_0 \beta \xi^2 + \tau_0. \quad (2.35)$$

2.4 Préconditionnement

Dans cette partie, on remplace le champ de phase classique φ par le champ de phase preconditionné ψ introduit par Glasner [17]. On utilise W_0 et τ_0 comme unités d'espace et de temps. La variation du champ de phase φ se fait sur un petit intervalle de longueur (environ $10W_0$), ce qui rend difficile le suivi de l'interface sur le maillage numérique. Le principe du preconditionnement est d'effectuer un changement de variable afin de linéariser ce profil pour le rendre variable dans tout l'espace (figure 2.1). La nouvelle variable est donnée par

$$\psi = \sqrt{2} \tanh^{-1}(\varphi). \quad (2.36)$$

Ce changement de variable permet, pour une précision numérique donnée, d'utiliser un pas de réseau plus grand, ce qui réduit considérablement le temps de calcul. L'équation d'évolution du champ de phase devient

$$\begin{aligned} a_\tau \frac{\partial \psi}{\partial t} &= \sqrt{2} [\varphi - a_1 \xi (1 - \varphi^2) u] + a_s^2 [\nabla^2 \psi - \sqrt{2} \varphi (\vec{\nabla} \psi)^2] + 2 a_s \vec{\nabla} a_s \vec{\nabla} \psi \\ &+ \frac{\sqrt{2}}{(1 - \varphi^2)} \vec{\nabla} \vec{A} \end{aligned} \quad (2.37)$$

et celle du champ de température

$$\frac{\partial u}{\partial t} = a_0 \xi \nabla^2 u + \frac{1}{2\sqrt{2}} (1 - \varphi^2) \frac{\partial \psi}{\partial t}, \quad (2.38)$$

où \vec{A} est le vecteur d'anisotropie.

Dans la suite on fera une étude unidimensionnelle où $a_s = 1$ et $\vec{A} = \vec{0}$ et pour laquelle l'équation (2.37) devient

$$a_\tau \frac{\partial \psi}{\partial t} = \sqrt{2} [\varphi - a_1 \xi (1 - \varphi^2) u] + \nabla^2 \psi - \sqrt{2} \varphi (\vec{\nabla}^2 \psi). \quad (2.39)$$

De plus on utilisera l'approximation de la température gelée (qui sera expliquée dans le prochain chapitre) pour laquelle il n'est plus nécessaire de résoudre l'équation (2.38).

2.5 Discrétisation de l'équation du champ de phase

Nous utiliserons la méthode des différences finies afin de résoudre l'équation (2.39). On fixe dans le code la position initiale du front de solidification z_i à un dixième de la longueur du barreau de silicium par rapport à son extrémité gauche. On fixe à $t = 0$ le champ de phase préconditionné $\psi = -\frac{z-z_i}{W_0}$. Les simulations numériques sont réalisées sur un maillage régulier

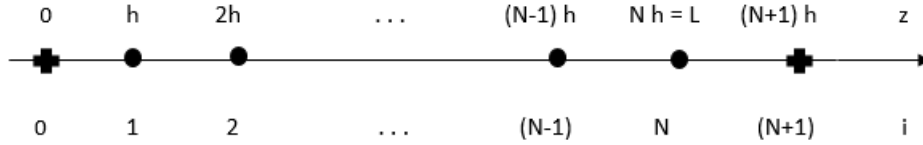


FIGURE 2.2 – Maillage régulier utilisé pour discrétiser le barreau de silicium. Les conditions aux limites sont imposées sur les points 0 et $N+1$.

de paramètre h (voir figure 2.2). Les équations sont ensuite intégrées sur un pas de temps δt et cette procédure est répétée n fois jusqu'à atteindre des durées $t = n\delta t$ comparables aux expériences. Notons bien que h et δt sont des grandeurs adimensionnées par W_0 et τ_0 respectivement. On utilise la méthode des différences finies du second et du premier ordre en espace et du premier ordre en temps pour le champ ψ . Le laplacien et le gradient sont ainsi calculés comme,

$$\nabla^2 \psi_i = \frac{\psi_{i+1} + \psi_{i-1} - 2\psi_i}{h^2} \quad (2.40)$$

et

$$\frac{\partial \psi_i}{\partial z} = \frac{\psi_{i+1} - \psi_{i-1}}{2h} \quad (2.41)$$

où i est un indice entier qui repère le point du maillage situé en $z = ih$.

La dérivée temporelle du champ ψ au point z et au temps $t + \delta t = (n+1)\delta t$ est calculée comme,

$$\frac{\partial \psi_i^n}{\partial t} = \frac{\psi_i^{n+1} - \psi_i^n}{\delta t}. \quad (2.42)$$

L'équation (2.39) s'écrit alors,

$$\psi_i^1 = \psi_i + \frac{1}{a_\tau} \left\{ \frac{\delta t}{h^2} [\psi_{i+1} + \psi_{i-1} - 2\psi_i] + \sqrt{2}\delta t [\varphi_i - (1 - \varphi_i^2)\lambda u] - \sqrt{2}\delta t \varphi_i \left[\frac{\psi_{i+1} - \psi_{i-1}}{2h} \right]^2 \right\}, \quad (2.43)$$

avec $\psi_i^1 = \psi_i^{n+1}$, $\psi_i = \psi_i^n$ et a_τ est donné par l'équation (2.34).

À une dimension, le critère de stabilité de la méthode des différences finies nous impose la condition

$$\delta t \leq \frac{1}{2} h^2 a_\tau. \quad (2.44)$$

Où on ne considère que le terme de la dérivée temporelle et le terme du laplacien, c'est à dire une équation de diffusion avec un coefficient de diffusion $D = \frac{1}{a_\tau}$. Quand on ajoute les autres termes, cela a tendance à réduire le facteur $f_s = \frac{1}{2}$. En pratique on prendra tantôt $f_s = 0.1$ et tantôt $f_s = 0.2$.

Effort de calcul en fonction de ξ et h

Considérons un barreau de longueur L , contenant N_z points, données pendant un temps t_0 .

$$L = N_z h W_0 = N_z d_0 h \xi$$

et

$$t_0 = N_t \delta t \tau_0 = N_t \delta t a_1 a_2 d_0^2 \frac{\xi^3}{D}.$$

D'où

$$N_z \sim \frac{1}{h \xi}$$

et

$$N_t \sim \frac{1}{\delta t \xi^3}.$$

Le critère de stabilité du schéma explicite impose que

$$\delta t = f_s h^2 a_\tau = f_s h^2 \left(1 + \frac{\beta D}{a_1 a_2 d_0 \xi} \right).$$

L'effort numérique est donnée par

$$\varepsilon_{num} = N_z N_t = \frac{1}{f_s h^3 \left(\xi^4 + \frac{\beta D \xi^3}{a_1 a_2 d_0} \right)} \sim \frac{1}{h^3 \xi^3}. \quad (2.45)$$

Le terme en ξ^4 est négligeable devant le terme en ξ^3 .

Chapitre 3

Simulations en champ de phase

L'objectif de ce chapitre est de valider le code numérique utilisé, en s'appuyant sur les résultats des expériences de la solidification dirigée du silicium. En effet, il s'agit de reproduire les effets d'attachement cinétique qui ont été observés durant les expériences en vérifiant que la position du front de solidification est décalée par rapport à celle de la température d'équilibre.

Cette étude est réalisée grâce à des simulations numériques unidimensionnelles. Le code est validé grâce à des tests systématiques de convergence selon l'épaisseur de l'interface et selon le pas du réseau. Nous allons ainsi montrer qu'on peut obtenir un gain considérable de temps de calcul, ce qui rendra possible l'étude tridimensionnelle dans le cadre de la thèse qui suivra. Les simulations se feront, en premier lieu, avec le champ de phase classique φ puis en y incorporant l'idée du préconditionnement proposée par Glasner [17].

En dernier lieu, le domaine de calcul sera réduit et décalé dans le temps pour nous permettre de suivre une portion du barreau moins grande et donc de limiter l'effort de calcul.

3.1 Paramètres utilisés

Les valeurs des paramètres physiques et numériques sont présentées dans le tableau 1.

Paramètres physiques	Symbole	Valeur
Coefficient d'attachement cinétique	β	0.5 s/cm
Coefficient de diffusion	D	0.23 cm ² /s
Longueur capillaire	d_0	1.94×10^{-8} cm
Longueur du barreau	L	1 cm
Vitesse de tirage	v_p	1.11×10^{-4} cm/s
Chaleur spécifique à pression constante	c_p	19.8 J/(mol.K)
Chaleur latente	l_h	50.2 KJ/mol
Gradient thermique	G	47.57 K /cm
Température de fusion	T_M	1687 K
Largeur de l'interface	W_0	$(0.97 - 19.4) \times 10^{-4}$ cm
Position initiale de l'interface	z_i	0.1 cm

Paramètres numériques	Expression	Valeur
Paramètre d'échelle	$\xi = \frac{W_0}{d_0}$	$(0.5 - 10) \times 10^4$
Pas d'espace	$h = \frac{\delta s}{W_0}$	(0.2 - 1.4)
Pas de temps	$\delta t = 0.15 \times h^2$	(0.006 - 0.294)

TABLE 3.1 – Valeurs des paramètres physiques et numériques utilisés dans les simulations numériques d'un barreau de silicium.

3.2 Effet des paramètres numériques sur la position du front de solidification pour le champ de phase classique

L'objectif de cette partie est de visualiser l'effet des paramètres numériques utilisés, pas d'espace h et paramètre d'échelle ξ , sur la précision de la position du front z_f en effectuant des tests de convergence.

Le problème traité étant la croissance d'un front plan suivant une direction [111], Il n'est donc pas nécessaire de prendre en compte l'anisotropie de l'énergie de surface. On fait aussi une approximation sur le profil de température dans le barreau en supposant qu'il s'ajuste instantanément à celui imposé dans le four car la diffusion de la chaleur est très rapide. On considère ainsi un profil de température linéaire

$$T(z, t) = T_M + G(z - v_p t - z_i). \quad (3.1)$$

Il n'est donc pas nécessaire de résoudre l'équation de la chaleur (2.1) ou de simuler l'équation (2.38). L'équation de champ de phase simulée dans cette partie est

$$a_\tau \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} + [\varphi - \lambda u(1 - \varphi^2)][1 - \varphi^2]. \quad (3.2)$$

On impose des conditions miroirs sur les deux extrémités du barreau ($i=0$ et $i=N+1$),

$$\frac{\partial \varphi}{\partial z} = 0, \quad (3.3)$$

soit

$$\varphi_0^n = \varphi_1^n \quad (3.4)$$

et

$$\varphi_{N+1}^n = \varphi_N^n. \quad (3.5)$$

Dans un premier temps, on établit l'expression analytique de z_f afin de comparer les résultats des simulations à l'expression obtenue. Dans l'état stationnaire, c'est à dire pour des temps suffisamment longs, la vitesse de l'interface v_n tend vers la vitesse de tirage du front de solidification v_p . l'équation de Gibbs-Thomson s'écrit alors

$$u_i = -\beta v_p. \quad (3.6)$$

D'autre part, la température de fusion T_M correspond à une position $z_i - v_p t$. Le retard du front par rapport à la position d'équilibre est symptomatique de l'existence d'une surfusion ΔT (équation 1.9) qu'on relie à Δz par l'équation 1.6. Dans ce cas, Δz s'écrit

$$\Delta z = z_f - z_i - v_p t, \quad (3.7)$$

soit

$$u = \frac{\Delta z}{z_0} = \frac{G c_p}{l_h} \Delta z. \quad (3.8)$$

On obtient

$$z_0 = \frac{l_h}{c_p G}. \quad (3.9)$$

La longueur z_0 est fixe dans le code où elle sert à adimensionner Δz . Pour retrouver l'expression de la position d'interface, il suffit de faire l'égalité entre les équations (3.6) et (3.8)

$$z_f = -\beta v_p z_0 + z_i + v_p t, \quad (3.10)$$

en faisant l'approximation $v_n = v_p$. Dans le code, on va mesurer la position de l'interface z_f qui sera repérée dans la suite par la position adimensionnée

$$\zeta = \frac{v_p t + z_i - z_f}{\beta v_p z_0}. \quad (3.11)$$

Cette dernière doit être égale à 1 pour obtenir un bon accord entre le numérique et l'analytique dans l'état stationnaire.

On distingue sur la figure (3.1) un régime transitoire et un régime permanent. Le régime transitoire vient du fait que l'interface ne suit pas instantanément la vitesse de tirage, car au départ elle est influencée par la condition initiale qui ne correspond pas à un état stationnaire. On voit d'ailleurs que l'état stationnaire est bien atteint pour des temps suffisamment longs où la vitesse de l'interface s'ajuste avec la vitesse de tirage. On voit aussi sur la figure (3.1) que les résultats du code sont plus proches du résultat physique $\zeta = 1$, pour des valeurs du paramètre d'échelle ξ plus petites. En effet, nous avons montré dans le chapitre précédent que les équations du champ de phase se raccordent de manière asymptotique aux équations physiques. Ce raccordement ne devient satisfaisant que lorsque le rapport $\xi = W_0/d_0$ est suffisamment petit, ce qui impose une largeur de l'interface solide-liquide suffisamment petite.

On observe tout d'abord sur les figures (3.2) et (3.3) que la valeur stationnaire du rapport ζ est proche de la valeur 1 pour un pas d'espace numérique h et pour un paramètre d'échelle ξ

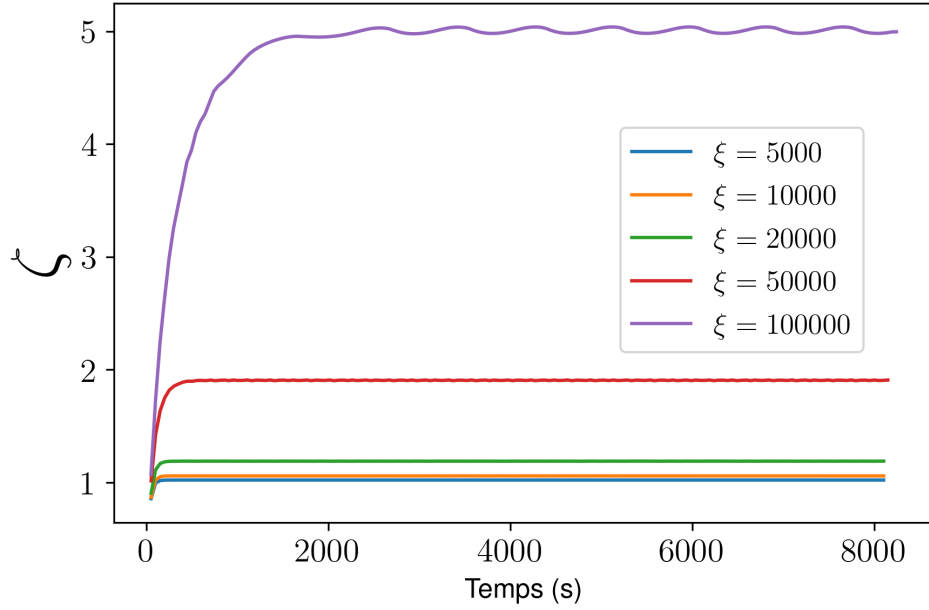


FIGURE 3.1 – Variation de ζ en fonction du temps pour des ξ différents, à $h = 0.4$ et $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ .

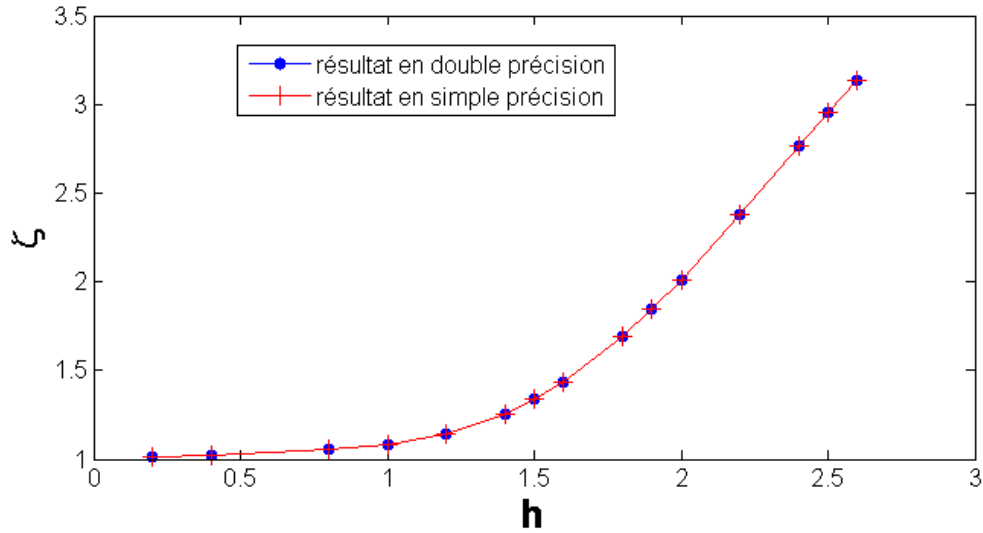


FIGURE 3.2 – Variation de ζ en fonction de h à $\xi = 5000$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ .

plus petits. On a bien une meilleure convergence en les diminuant, ce qui était prévisible. En ce qui concerne le paramètre d'échelle ξ , le fait de le diminuer implique que le raccordement des équations du champ de phase aux équations physiques est bien réalisé. Par ailleurs, plus on diminue le pas d'espace h plus les résultats donnés par le code numérique sont précis, car l'approximation des différences finies utilisée précédemment sur l'équation du champ de phase est meilleure en diminuant le pas d'espace h . En effet, le développement limité au voisinage de z donne

$$\varphi(z \pm h, t) = \varphi(z, t) \pm h \frac{\partial \varphi(z, t)}{\partial z} + \frac{h^2}{2} \frac{\partial^2 \varphi(z, t)}{\partial z^2} \pm \frac{h^3}{6} \frac{\partial^3 \varphi(z, t)}{\partial z^3} + O(h^4), \quad (3.12)$$

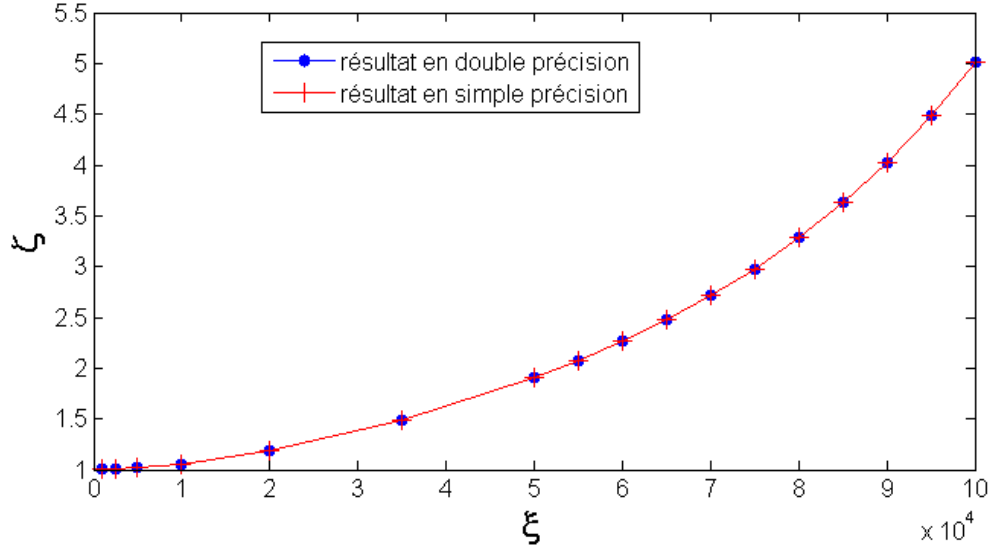


FIGURE 3.3 – Variation de ζ en fonction de ξ à $h = 0.4$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.1 \times h^2$ avec le champ de phase classique φ .

on a donc une meilleure précision pour un pas d'espace numérique h petit. Par contre, le nombre d'opérations numériques augmente quand le pas d'espace h diminue. On a en effet

$$N_t = \frac{t}{\tau \delta t}, \quad (3.13)$$

où t est la durée de l'expérience et N_t le nombre de pas de temps avec δt qui varie en h^2 . De plus, vu que l'effort numérique varie en $\frac{1}{h^3 \xi^3}$ (equation 2.45), en diminuant le pas d'espace numérique et le paramètre d'échelle le temps de calcul devient plus grand.

Dans notre cas, et d'après les figures (3.2) et (3.3), on peut se permettre de choisir $h = 1.0$ qui correspond à $\zeta = 1.08$ (92% de convergence) et $\xi = 5000$ qui correspond à $\zeta = 1.04$ (96% de convergence). Ces choix nous permettent d'obtenir une exécution du code suffisamment rapide tout en gardant des résultats suffisamment précis.

On voit aussi sur les deux figures que les résultats obtenus en double précision s'accordent très bien avec ceux trouvés en simple précision. Les calculs peuvent donc être faits avec un code en simple précision qui permet de réaliser un gain en espace mémoire et qui donnera également un gain de temps sur les GPU que nous utiliserons par la suite.

3.3 Effet des paramètres numériques sur la position du front de solidification en utilisant le champ de phase préconditionné

Dans cette partie, on mesure toujours la position du front de solidification z_f mais en adoptant le champ de phase preconditionné,

$$\psi = \sqrt{2} \tanh^{-1}(\varphi). \quad (3.14)$$

Par la suite, on reprend les mêmes tests de convergence que ceux faits précédemment avec le champ φ , en comparant la valeur du rapport ζ à 1. Le but de cette partie est de montrer que

le passage vers le champ préconditionné nous permet d'utiliser un pas d'espace numérique h plus grand tout en ayant des résultats aussi précis.

L'équation de champ de phase simulée dans cette partie est

$$a_\tau \frac{\partial \psi}{\partial t} = \sqrt{2} [\varphi - \lambda u (1 - \varphi^2)] + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} - \sqrt{2} \varphi \left(\frac{\partial \psi}{\partial z} \right)^2, \quad (3.15)$$

où a_τ est le même que celui donné dans l'équation (2.34).

De même qu'avec le champ φ , on voit sur les figures (3.4) et (3.5) que le rapport ζ converge

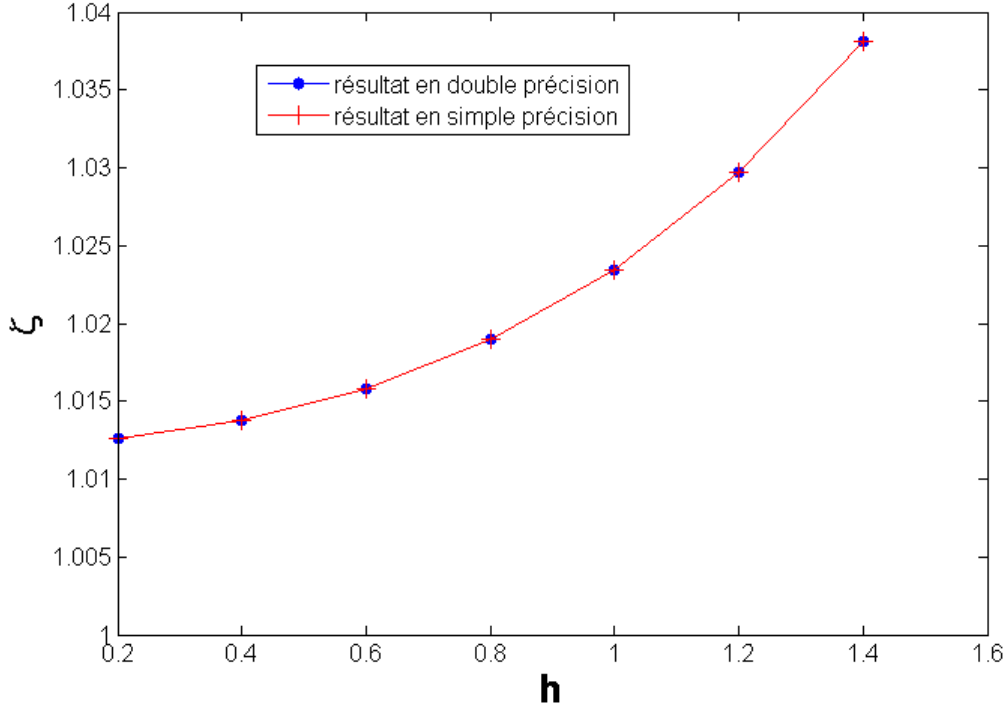


FIGURE 3.4 – Variation de ζ en fonction de h à $\xi = 5000$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ de phase préconditionné ψ .

vers 1 lorsqu'on diminue le pas d'espace h et le paramètre d'échelle ξ , les raisons restent les mêmes que celles citées précédemment. La comparaison des figures (3.2) et (3.3) (champ φ) avec les figures (3.4) et (3.5) (champ ψ) est illustrée sur les figures (3.6) et (3.7). On constate que les résultats obtenus avec le champ de phase préconditionné sont nettement plus précis que ceux obtenus avec le champ de phase classique.

Tout d'abord, on observe sur la figure (3.6) que pour un pas d'espace h donné la convergence est meilleure avec le champ de phase préconditionné. On voit aussi qu'avec le champ préconditionné, la valeur du pas d'espace numérique $h = 1.4$ serait acceptable vu que le rapport ζ correspondant est 1.038, soit une convergence de 96%!

Sur la figure (3.7), on voit qu'avec le champ ψ , et en fixant le pas d'espace numérique à $h = 0.8$, la valeur du paramètre d'échelle $\xi = 10\,000$ correspond à une convergence de 95%! On peut conclure que même si on augmente le pas d'espace numérique avec le champ de phase préconditionné, les résultats obtenus restent tout de même précis.

De plus, les résultats en double et en simple précision représentés sur les figures (3.4) et (3.5) sont en bon accord ce qui nous amène à choisir au final les valeurs du paramètre d'échelle $\xi = 5000$, soit une largeur d'interface $W_0 = 0.97 \mu\text{m}$ et du pas d'espace numérique $h = 1.0$ qui seront utilisées dans la suite de notre travail. On peut dire qu'utiliser un code avec le champ

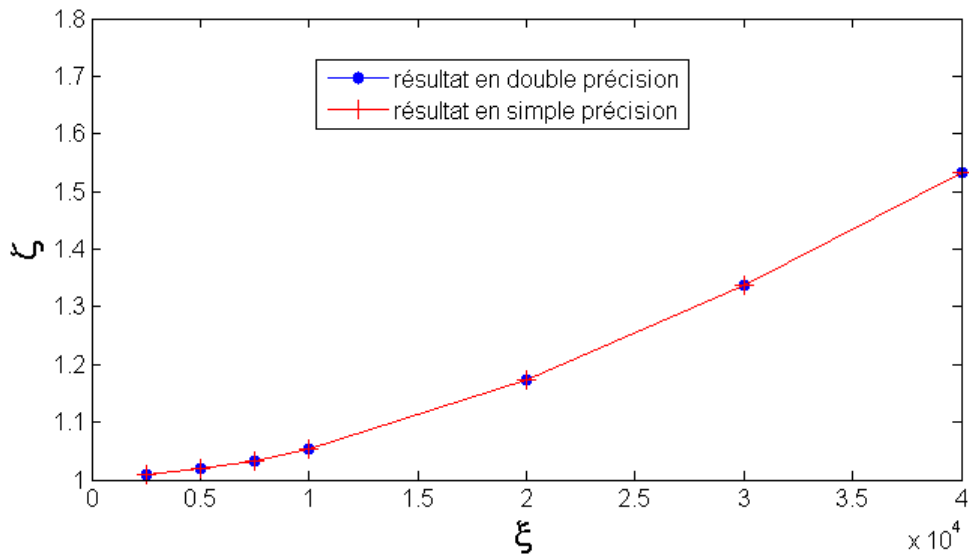


FIGURE 3.5 – Variation de ζ en fonction de ξ à $h = 0.8$ et pour pas de temps numérique $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ de phase préconditionné ψ .

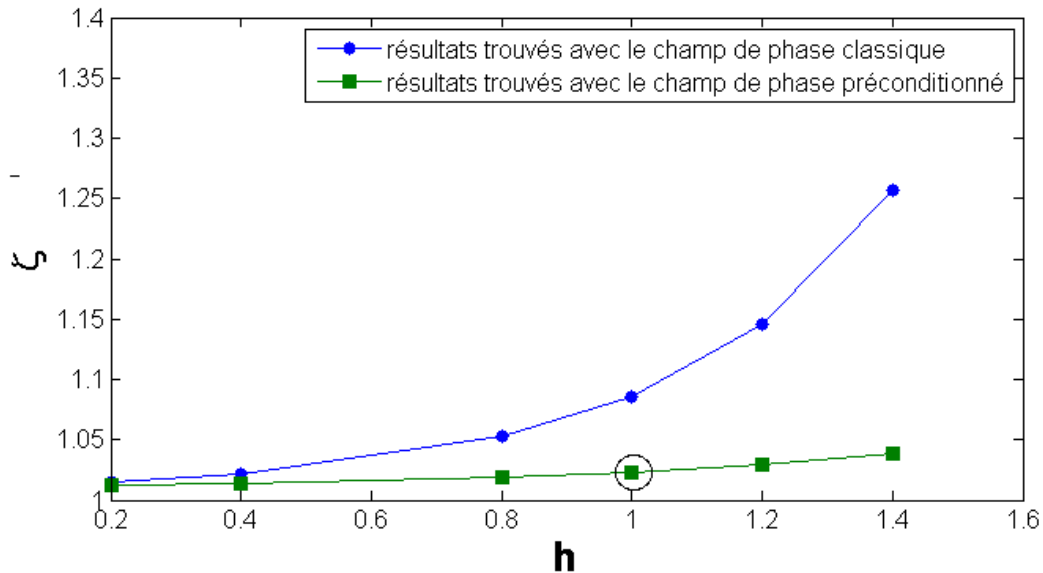


FIGURE 3.6 – Comparaison de ζ en fonction de h pour le champ de phase classique et préconditionné (paramètre d'échelle $\xi=5000$). Pour le code en champ ψ , $\delta t = 0.2 \times h^2$ et pour le code en champ φ , $\delta t = 0.1 \times h^2$. La valeur $h=1.0$ entourée par un cercle, correspond à la valeur qu'on choisira dans la suite de nos simulations avec le champ ψ .

préconditionné ψ et en simple précision nous permettra d'obtenir le meilleur gain de temps et d'espace mémoire et donc d'optimiser le code tridimensionnel.

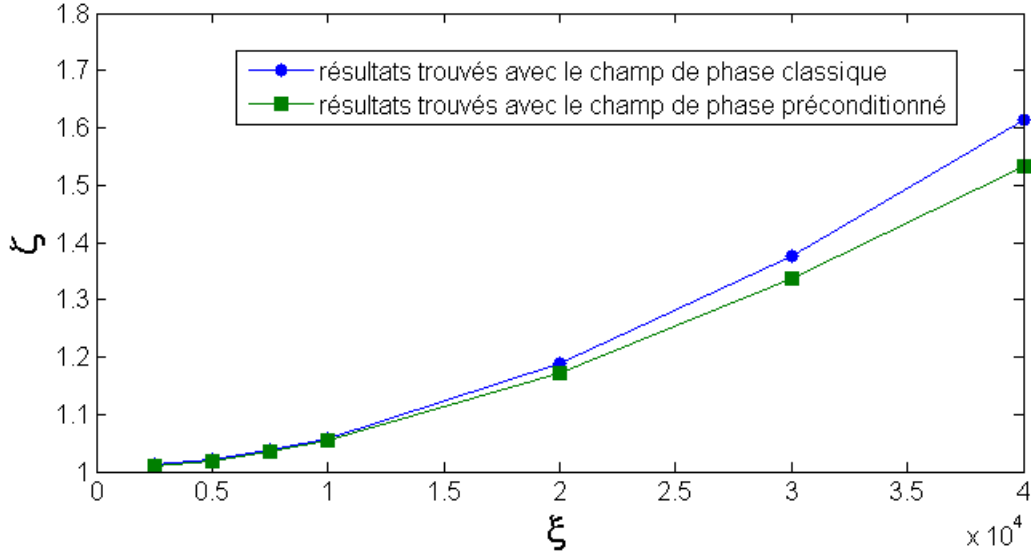


FIGURE 3.7 – Comparaison de ζ en fonction de ξ pour le champ de phase classique et préconditionné. Pour le code en champ ψ , $h = 0.8$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$. Pour le code en champ φ , $h = 0.4$ et $\delta t = 0.1 \times h^2$.

3.4 Effet du décalage de la fenêtre d’observation dans le temps sur la position du front de solidification

Le but de cette partie est de suivre une portion limitée du barreau de part et d’autre de la position du front de solidification, donc d’utiliser un domaine moins grand que dans le cas précédent où on simulait la totalité du barreau.

Pour cela, on effectue un décalage sur le système dans le temps en se focalisant sur la partie du barreau située autour de l’interface qui se déplace vers la droite. En pratique, on est donc obligé de ramener le champ de phase constamment vers la fenêtre de calcul fixe en décalant le champ de phase globalement vers la gauche. Ce décalage n’a lieu que lorsque l’interface dépasse le point du maillage suivant. Pour le domaine de calcul, on prend 20 points du côté liquide afin d’atteindre une valeur de $\varphi = -1$ et 100 points du côté solide car, à 3 dimension, le front aura une géométrie plus complexe (facettes, sillons...), donc il faudra prévoir suffisamment de points pour observer la structuration du front de solidification. Choisir 100 points du côté solide, reste donc assez représentatif du temps de calcul qu’on aura dans le cas d’une étude tridimensionnelle, ce qui nous permet d’adapter directement cette méthode à un code tridimensionnel.

Sur la figure (3.8), on a comparé les résultats trouvés en utilisant un code avec décalage à ceux du code sans décalage, tout en vérifiant la convergence temporelle du rapport ζ . On voit que les deux courbes sont en bon accord. Cependant, on remarque une légère différence sur quelques points, ce qui est prévisible. Cette différence découle des effets suivants :

- En décalant les points du maillage, on n’a plus les mêmes conditions aux limites que dans le cas où on simule la totalité du barreau.
- La longueur du système est plus petite que dans le cas où on ne décale pas les points du maillage. La propagation des valeurs imposées aux limites du système se fait donc sur de plus petites distances.
- La dernière cause est due à la position du front de solidification. En effet, cette position est constamment en mouvement entre les points i_f et $i_f + 1$, et vu que le front de

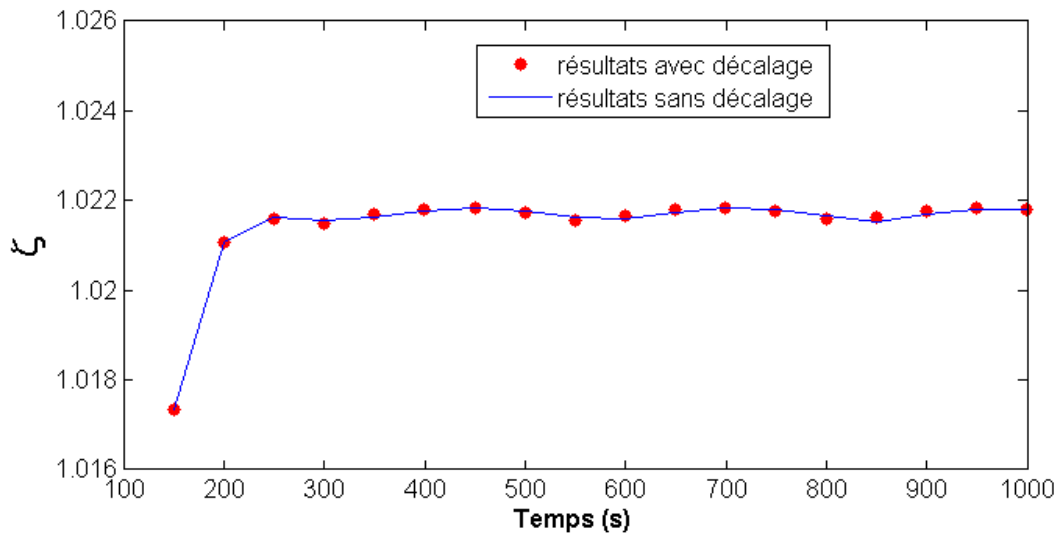


FIGURE 3.8 – Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage et sans décalage pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ .

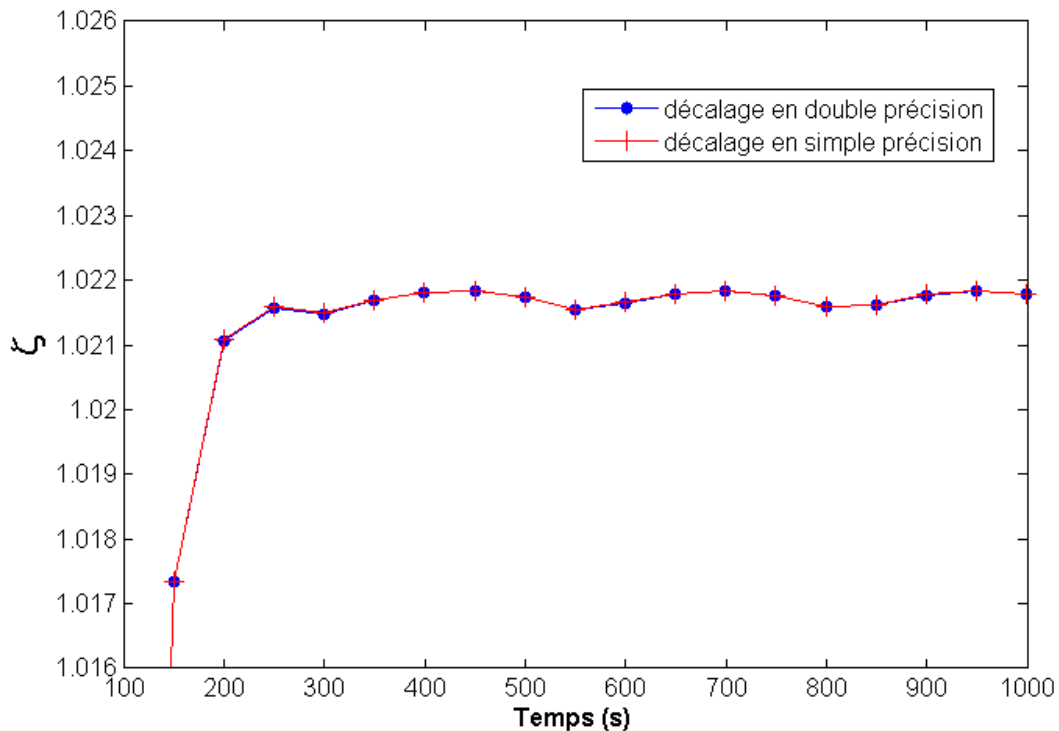


FIGURE 3.9 – Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ .

solidification avance avec une vitesse imposée au cours du temps, il sera donc à des positions relatives différentes à chaque décalage, créant ainsi des sortes d'oscillations numériques qui contribuent à la différence entre les deux courbes.

Cependant, on voit bien que ce désaccord entre les deux courbes reste faible (de l'ordre de 10^{-3}). De plus, le fait de se focaliser sur la région de l'interface, nous a permis de gagner en temps de calcul par rapport à une étude faite sur tout le barreau. En effet, le nombre

de points du maillage pour la totalité d'un barreau de silicium de longueur $L=1$ cm est $\frac{L}{hW_0} \simeq 10^4$, alors que pour la portion du barreau considéré autour de l'interface, le nombre de points du maillage est de 120 points, ce qui fait un facteur d'environ 85 entre les deux maillages ! L'exécution du code numérique devient donc plus rapide et se fait sur un temps plus petit, sans presque perdre pour autant en précision.

D'après la figure (3.9), les résultats obtenus en décalant le système avec un code en double et en simple précision sont toujours en bon accord.

Parallélisation

Le but de cette partie est de montrer que l'utilisation d'un code GPU nous permet d'obtenir encore un gain considérable en temps de calcul. La mémoire du GPU est divisée en

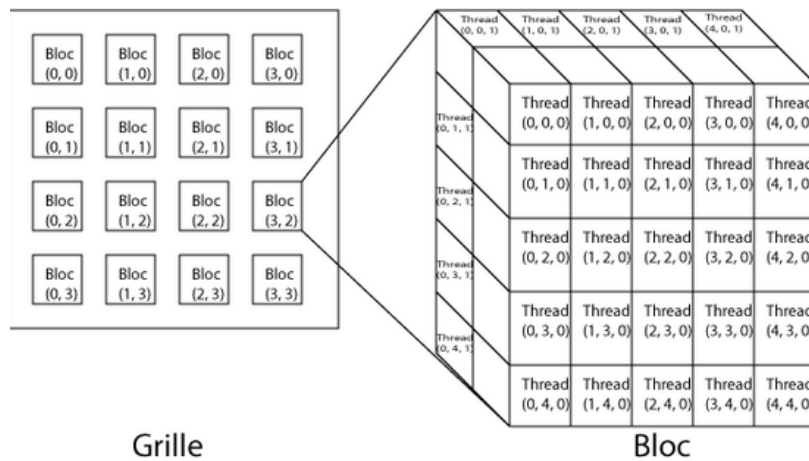


FIGURE 3.10 – Schéma d'exécution d'un programme CUDA.

Bloc et en Thread (figure 3.10). On a développé un code en CUDA contenant un découpage de la mémoire de (512,1,1). Chaque pixel de la cage GPU traite un point du maillage dans le code. La comparaison entre les résultats trouvés avec un code CPU et GPU sont illustrés sur la figure (3.11).

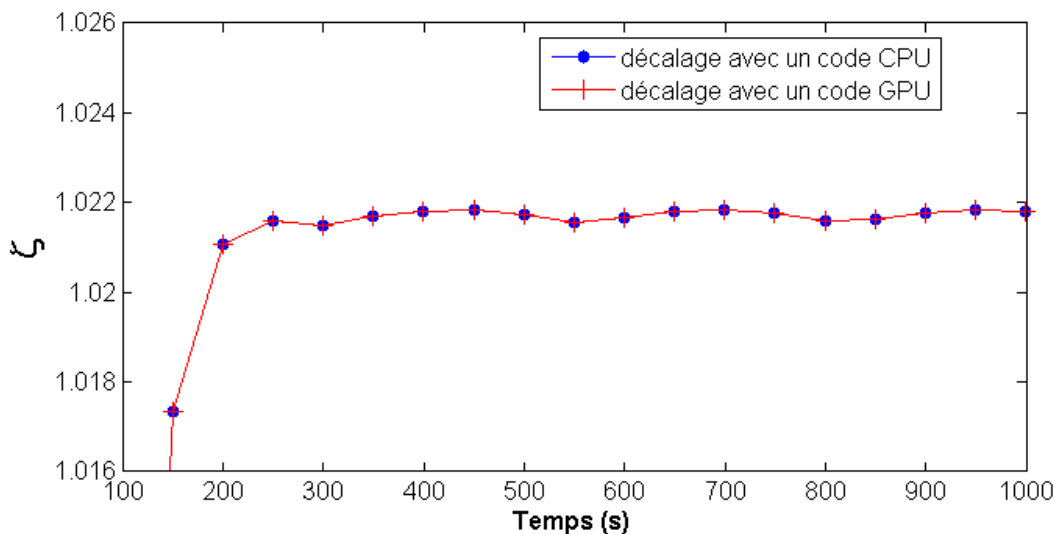


FIGURE 3.11 – Variation de ζ en fonction du temps obtenue avec décalage, en simple précision, pour un pas d'espace numérique $h = 1.0$, $\xi = 5000$ et $\delta t = 0.2 \times h^2$ avec le champ ψ .

Tout d'abord, on observe sur la figure (3.11) un très bon accord entre les résultats obtenus avec un code CPU et les résultats obtenus avec un code GPU. De plus, on donne ci-dessous les temps de calcul obtenus dans le cas du code CPU et du code GPU. Ces codes résolvent l'équation du champ de phase préconditionné pour un domaine contenant 120 points de maillage. Pour ce code, le temps de calcul est divisé par 16 en faisant les calculs en GPU!

Code CPU
real : 13.86s

Code GPU
real : 0.86s

Donc, travailler en utilisant le champ de phase préconditionné avec un code GPU en simple précision et un décalage des points du maillage, nous permettra de réduire d'une manière considérable le temps de calcul et nous donnera la possibilité de faire des simulations à 3D.

Conclusion et perspectives

Ce stage a porté sur l'étude de la cinétique de croissance de l'interface solide-liquide durant la solidification dirigée d'un barreau de silicium, par le biais de simulations numériques unidimensionnelles en champ de phase. Les résultats obtenus reproduisent bien les effets d'attachement cinétique observés dans les expériences sur la solidification dirigée du silicium. Les tests de convergence réalisés durant nos simulations avec un champ de phase classique φ , un champ de phase préconditionné ψ et en se focalisant autour de la position de l'interface solide-liquide, nous ont permis d'obtenir un gain considérable en temps de calcul. On donne, ci-dessous, les temps de calcul trouvés en passant d'un pas d'espace $h=0.4$ avec le code en champ φ à $h = 1.0$ avec le code en champ ψ , pour un paramètre d'échelle $\xi=5000$ et pour un pas de temps numérique $\delta t = 0.2 \times h^2$.

Code en champ φ	Code en champ ψ	Code ψ décalé CPU
14m48.55s	02m32.75s	0m13.86s

Code ψ décalé GPU
0m0.86s

En combinant le gain apporté par le préconditionnement, le décalage des points du maillage et l'utilisation des GPU, on arrive à un gain d'environ 1000! Ce gain nous permettra, par la suite, de généraliser ce code à un code à 3D, qui est nécessaire pour obtenir des résultats quantitatifs que l'on peut comparer directement aux expériences.

Ce stage m'a été très profitable dans le sens où j'ai pu découvrir le monde de la recherche et développer grandement mon intérêt pour le domaine de la solidification. Il l'a été d'autant plus que les résultats obtenus au cours de ce travail ouvrent des perspectives vers l'obtention de résultats quantitatifs.

Durant mes trois années de thèse, au sein de l'équipe MCA de l'IM2NP, j'aborderai par le biais de simulations numériques de champ de phase, différents aspects quantitatifs liés à la cinétique de l'interface solide-liquide du silicium. Les points principaux qui seront abordés, concerneront la croissance simultanées de deux grains d'orientations cristallines différentes et la germination de macles [18], généralement de type $\Sigma 3$, qui est souvent favorisée sur les facettes [111] du silicium.

Il faudra incorporer dans le code à 3D en champ de phase, les énergies de surface et les coefficients d'attachement cinétique qui permettront d'étudier la formation des facettes et micro-facettes [111] du silicium au niveau de l'interface solide-liquide. De plus, les expériences réalisées sur du silicium polycristallin, montrent que les joints de grains peuvent être soit facetté-facetté soit facetté-rugueux, ce qui affecte leur trajectoire de croissance. L'étude numérique faite dans ce cas fera appel au formalisme du champ de phase étendu à plus d'une phase solide et ses résultats auront pour but d'interpréter les comportements qui ont été observés expérimentalement [19].

Bibliographie

- [1] C. Kittel, Physique de l'état solide. Dunod (2008)
- [2] G. S. May, C. J. Spanos, Wiley-Intersciences, chapitre 1 (2006).
- [3] A. Pajaczkowska, J. Cryst. Growth, **401**, 5-6 (2014).
- [4] Y. Delannoy, J. Cryst. Growth, **360**, 61-67 (2012).
- [5] W. J. Rappel and A. Karma, Phys. Rev. E, **57**, 4323–4349 (1998).
- [6] A. McEvoy, T. Markvort, L. Castanes, Elsevier, (2013).
- [7] M. C. Flonings, New York : Mcgrw-Hill, (1974).
- [8] K. Fujiwara and al, Acta Mater, **56**, 2663-2668 (2008).
- [9] T. Riberi-Béridot. PhD thesis, Aix-Marseille Université (2017).
- [10] K. A. Jackson, Liquid Metals and solidification. ASM Cleveland (1958).
- [11] W. J. Rappel and A. Karma, Phys. Rev. E, **53**, R3017–R3020 (1996).
- [12] E. M. Lifshitz and L. D. Landau, Physique statistique, Mir, (1967).
- [13] W. J. Rappel and A. Karma, Phys. Rev. E, **57**, 4323–4349 (1998).
- [14] B. Echebarria, R. Folch, A. Karma, and M. Plapp, Phys. Rev. E, **70**, 061604 (2004).
- [15] A. K. Boukellal, A. K. Sidi Elvalli, and J. M. Debierre, J.Cryst. Growth, **522**, 37–44 (2019).
- [16] A. Boukellal, PhD thesis, Aix-Marseille Université (2019).
- [17] K. Glasner, J. Compt. Phys, **174**, 695-711 (2001).
- [18] B. Gallien, PhD thesis, Université de Grenoble (2014).
- [19] X. Yang, K. Fujiwara, K. Maeda, J. Nozawa, H. Koizumi, and S. Uda, J. Cryst. Growth, **22**, 574–580 (2014).