REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou Faculté du génie de la construction Département de Génie Mécanique

Mémoire de fin d'études

En vue de l'obtention du diplôme Master2 Académique en Génie Mécanique

Option : ENERGETIQUE

Thème

CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA CROISSANCE CRISTALLINE DU SAPHIR AVEC CHANGEMENT DE PHASE

Proposé & Dirigé par :

M^{me}: MOKHTARI Faiza

Réalisé par : ARAB SAID Lyes OUZIA Kamel

Remerciements

Nous tenons à exprimer notre profonde gratitude envers notre promotrice M^m Mokhtari .F pour ces conseils précieux, sa patience, sa compréhension ainsi que sa totale disponibilité tout au long de notre travail.

Nous remercions également son mari pour sa précieuse aide.

Nous tenons aussi à remercier les membres du jury pour avoir accepte à évaluer notre travail, ainsi que tous les enseignant qui se sont succédés durant notre formation.

Et que toutes les personnes qui ont contribué de prés ou de loin à l'élaboration de notre travail trouvent ici l'expression de notre reconnaissance.

Dédicaces

Je dédie ce modeste travail A :

Mes très chers parents,

Mes frères, Mes sœurs

Ma famille,

Mes amis,

Lyes

Je dédie ce modeste travail A :

Mes très chers parents,

Mon frère, Mes sœurs

Ma famille,

Mes amis,

Kamel

<u>Sommaire</u>

| Nomenclature | 1 |
|---|----|
| Liste des figures | 2 |
| Liste des tableaux | 4 |
| Introduction générale | 5 |
| Chapitre I : Revue bibliographique | |
| I.1 Introduction | 7 |
| I.2 Techniques de la croissance cristalline | 7 |
| I.2.1. La méthode de tirage de Czochralski | 8 |
| I.2.2. Technique de Bridgman | 12 |
| I.2.3. Technique de la zone fondue flottante | 14 |
| I.3Technique de croissance cristalline HEM | 15 |
| I.3.1. Avantages de la méthode HEM | 20 |
| I.3.2. Inconvénients | 21 |
| I.4 Le saphir | 22 |
| I.4.1. Composition chimique | 25 |
| I.4.2. Structure cristalline | 25 |
| I.5.3. Couleur | 25 |
| I.5 Conclusion | 26 |
| Chapitre II : Pose de la problématique et description du code de calcul | |
| II.1 Introduction | 27 |
| II.2 Description Du Problème | 27 |
| II.2.1. Hypothèses simplificatrices | 27 |
| II.2.2. Hypothèse de Boussinesq | 27 |
| II.3 Equations dimensionnelles | 28 |
| II.4 Equations adimensionnelles | 31 |
| II.4.1 Conditions aux limites adimensionnelles | 32 |
| II.4.2 Nombres adimensionnels | 32 |
| II.4.2.1 Le nombre de Prandtl Pr | 32 |
| II.4.2.2 Le nombre de Grashof Gr | 32 |

| II.4.2.3 Le nombre de Rayleigh Ra | 33 |
|---|----|
| II.4.2.4 Le nombre de Stephan | 33 |
| II.5 Propriétés géométriques et thermodynamiques | 34 |
| II.6 Simulation numérique | 35 |
| II.6.1 Description du code de calcul Fluent | 35 |
| II.6.2 Procédure sous Fluent | 37 |
| II.6.3 Précision des calculs | 37 |
| II.6 .4 Choix du solveur | 38 |
| II.6.5 Schémas de discrétisation | 39 |
| II.6.6 Schémas d'interpolation de la pression sur les faces | 40 |
| II.6.7 Facteurs de relaxation | 41 |
| II.6 .8 Méthodes d'interpolations (Gradients) | 42 |
| II.6.9 Le pas temporel (écoulements instationnaires) | 42 |
| II.7 Maillage sous Gambit | 43 |
| II.7. 1. Maillage structuré (quadra/hexa) | 43 |
| II.7 .2. Maillage non structuré (tri/tétra.) | 44 |
| II.7.3 Maillage hybride | 44 |
| II.8 La méthode enthalpique | 45 |
| II.8 .1 Limitations | 46 |
| II.8.2 Théorie du Modèle Solidification/Fusion | 46 |
| II.9 Conclusion | 48 |
| Chapitre III : Résultats et discussions | |
| III.1 Introduction | 49 |
| III.2 Maillage du domaine | 49 |
| III.3 Résultats de la simulation numérique | 50 |
| III.3.1 Effet des dimensions de l'échangeur sur le front de solidification | 51 |
| III.3.2 Effet des dimensions de l'échangeur sur la température | 55 |
| III.3.3 Effet des dimensions de l'échangeur sur les composantes de la vitesse | 60 |
| III.3.4 Effet des dimensions de l'échangeur sur la fonction courant | 60 |
| III.3.4 Effet des dimensions de l'échangeur sur la pression | 64 |
| III.4 Conclusion | 68 |

| Conclusion générale | 69 |
|----------------------------|----|
| Références bibliographique | 71 |

| A | Facteur d'aspect axial | S.U |
|-----------------------|--|-------------------------------------|
| Amush | Constante caractéristique de l'interface de croissance | S.U |
| A_R | Facteur d'aspect radial | S.U |
| Cp_l | Capacité calorifique du liquide du saphir | J.Kg ⁻¹ .K ⁻¹ |
| f_l | Fraction liquide | S.U |
| g | Accélération de la pesanteur | Kg.s ⁻² |
| Gr | Nombre de Grashof | S.U |
| Η | Hauteur du creuset | Cm |
| k | Conductivité thermique du saphir liquide | w.k ⁻¹ .m ⁻¹ |
| L | Chaleur latente de fusion | J.Kg ⁻¹ |
| P ['] | Pression | Pa |
| Р | Pression caractéristique | Pa |
| Pr | Nombre de Prandtl | S.U |
| Q | Terme source | S.U |
| r | Coordonnée radiale | S.U |
| R_e | Rayon de l'échangeur | Cm |
| R_c | Rayon du creuset | Cm |
| Ra | Nombre de Rayleigh | S.U |
| Ste | Nombre de Stephan | S.U |
| t' | Temps | S |
| t | Temps caractéristique | S.U |
| Τ | Température | K |
| T_c | Température du creuset | K |
| T_f | Température de fusion | K |
| V | Vecteur vitesse | S.U |
| ΔT_{ex} | Température d'excès du chauffage | °C |
| V_C | Vitesse caractéristique | S.U |
| z | Coordonnée axiale | S.U |
| α | Diffusivité thermique | $m^2.s^{-1}$ |
| β | Coefficient de dilatation thermique | K ⁻¹ |
| μ | Viscosité dynamique | Kg.m ⁻¹ .s ⁻¹ |
| ρ | Densité du saphir | Kg.m ⁻³ |
| ρ_0 | indique la densité de référence | Kg.m ⁻³ |
| τ | La différence entre la température dans le bain et la température de | K |
| | fusion T_f | |
| υ | Viscosité cinématique | $m^2.s^{-1}$ |
| Ψ | Fonction courant | Kg $.s^{-1}$ |
| Ψ_{max} | Intensité maximale de la fonction courant | $Kg.s^{-1}$ |
| Θ | Température adimensionnelle | S.U |

Nomenclature des notations et symboles utilisés

S.U : sans unité

Liste des figures

| Figure I .1 : | Principe de la méthode de tirage de Czochralski Lingots obtenus par la technique, de Czochralski | 09 |
|-----------------|---|----|
| rigure 1.2 : | Lingols oblenus par la lechnique de Czochraiski | 10 |
| Figure I.3 : | Lingots de silicium obtenus par la technique de Czochralski | 11 |
| | (Diamètre=150mm-460mm) | |
| Figure I.4 : | Techniques de croissance cristalline horizontale de type Bridgman | 13 |
| Figure I.5 : | Techniques de croissance cristalline verticale de type Bridgman | 13 |
| Figure I.6 : | Technique de la zone fondue flottante | 15 |
| Figure I.7 : | Schéma du four de croissance HEM | 16 |
| Figures I.8 : | Lingots de saphir produits par la technique HEM. (a) : dans le creuset, (b) : | 18 |
| | après extraction du creuset, (c): lingot à interface solide-liquide plane, (d): | |
| | lingot à interface solide-liquide sous forme de dôme | |
| Figures I.9 : | Gisement du Dôme de Menoyre ; a : saphir BD ; b : saphir F2DLR ; saphir EM. | 22 |
| Figures I.10 : | Gisement du Mont Coupet ; a : saphir taillé collection Bayle ; b : saphir brut, | 23 |
| | collection Bayle ; c : saphir brut, collection Gerbier; d : zircon, collection Sdéi. | |
| Figures I .11 : | Lingots du saphir | 24 |
| Figure II.1 : | schéma du domaine de calcul | 29 |
| Figure II.2 : | Etapes Principales de la méthode des volumes finis. | 36 |
| Figure II.3 : | Schémas de discrétisation | 39 |
| Figure II.4 : | Maillage structuré et non structuré | 45 |
| Figure III.1 : | Variations de la pression maximale et de la fonction courant maximale pour | 50 |
| | différents maillage | |
| Figure III.2 : | Grille utilisée dans la simulation numérique | 50 |
| Figure III.3 : | Distribution de la température et le front de solidification à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 51 |
| Figure III.4 : | Distribution de la température et le front de solidification à t=50s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 52 |
| Figure III.5 : | Distribution de la température et le front de solidification à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 53 |

| Figure III.6 : | Distribution de la température et le front de solidification à t=180s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 53 |
|-----------------|---|---------|
| Figure III.7 : | l'avancement du front de solidification en fonction du temps pour différents facteurs d'aspects | 55 |
| Figure III.8 : | Variation de la température en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial (A_R =10%) et (A_R =75%) à t=5s, 50s, 100s et 180s | 56;57 |
| Figure III.9 : | Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 58 |
| Figure III.10 : | Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=50s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 58 |
| Figure III.11 : | Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 59 |
| Figure III.12 : | Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=180s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 60 |
| Figure III.13 : | Distribution de pression et lignes du courant à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 61 |
| Figure III.14 : | Distribution de pression et lignes du courant à t=50s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 62 |
| Figure III.15 : | Distribution de pression et lignes du courant à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 62 ; 63 |
| Figure III.16 : | Distribution de pression et lignes du courant à t=180s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial | 63 |
| Figure III.17 : | Variation de la pression en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial (A _R =10%) et (A _R =75%) à t=5s, 50s, 100s et 180s | 65 ; 66 |
| Figure III.18 : | Variation de la pression et de la température en fonction de la position sur l'axe pour le facteur d'aspect radial A_R =10% à t= 400s | 67 |
| Figure III.19 : | Variation de la pression en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial (A _R =10%) et (A _R =75%) à t=5s, 50s, 100s et 180s (portées dans les mêmes courbes) | 67 |

Liste des tableaux

| Propriétés géométriques du système de croissance | 34 |
|---|---|
| Propriétés thermo physiques du saphir | 34 |
| Nombres adimensionnels | 34 |
| Paramètres de sous relaxation | 42 |
| Valeurs de la pression maximale et de la fonction courant maximale pour différents maillages | 49 |
| | Propriétés géométriques du système de croissancePropriétés thermo physiques du saphirNombres adimensionnelsParamètres de sous relaxationValeurs de la pression maximale et de la fonction courantmaximale pour différents maillages |



Introduction générale

A l'aube du vingtième siècle est née une nouvelle discipline : la croissance cristalline. Le concept qui est à la base de cette discipline est simple et s'inspire de la nature. Il consiste à mettre un petit germe naturel de matériau dans une solution saturée ; un solide à structure ordonnée et définie épousant celle du germe, se constitue alors progressivement à partir du fluide, par dépôt de substance dissoute.

Bien que cette manière de faire soit simple et séduisante à la fois, les premiers cristaux obtenus étaient, jusqu'aux années cinquante, petits et imparfaits ; puisqu'ils contenaient des impuretés résiduelles indésirables, et surtout des défauts dans le réseau cristallin.

L'intérêt croissant des cristaux pour la recherche depuis les années 50 va faire apparaître de nouveaux procédés d'élaboration et la cristallogenèse va permettre d'obtenir des cristaux que la nature elle-même n'a pas su créer. Les nombreux travaux qui lui sont alors consacrés vont déboucher sur d'extraordinaires applications techniques, notamment dans le domaine de l'électronique et de l'optique. L'importance des monocristaux demeure aujourd'hui essentielle pour les technologies présentes et futures.

Longtemps considéré comme un art, la croissance cristalline est en passe de devenir une discipline des sciences à part entière, les bases théoriques des différents processus de croissance sont maintenant mieux comprises et l'obtention des cristaux parfaits, de dimensions et d'orientations désirées plus maitrisée.

Parmi les diverses techniques, qui peuvent être classées suivant la nature des équilibres de phases mis en jeu pour réaliser la croissance , celles mettant en jeu la fusion du matériau sont les plus couramment utilisées pour préparer des monocristaux de grandes dimensions ; citons les plus courantes : la méthode Czochralski(1918) ;la méthode Bridgman-Stockbarger(1925) ;ou encore la méthode par fusion de zone(1953) .cependant de nombreuses autres techniques, moins connues et souvent dérivées des précédentes , ont vu le jour, généralement pour pallier une difficulté inhérente à une technique déjà existante .

Tel est le cas de la méthode de l'échangeur thermique initialement nommée **HEM** (Heat Exchanger Method) en 1975 ; elle constitue la base de l'ensemble du présent mémoire. Sa

5

particularité réside dans la création d'un gradient thermique par un échanger thermique situé en dessous du creuset contenant le matériau à faire cristalliser qui est le saphir. [1]

Au premier chapitre, on décrit l'historique sur la croissance cristalline, les différentes techniques utilisées et principalement la méthode de l'échangeur thermique **HEM** (Heat Exchanger Method) car elle consiste la base de l'ensemble de notre présent mémoire. Ensuite, on décrit le matériau mise en jeu qui s'appelle le saphir, ses propriétés physiques et chimiques.

Dans le deuxième chapitre, on pose les différentes hypothèses simplificatrices ainsi que les équations régissant le processus de la croissance cristalline, et au cours de ce chapitre on aborde la description du code de la simulation numérique utilisé et le choix des paramètres de calcul. On donne une description de la méthode enthalpique employée par le code pour traiter le problème du changement de phase.

Dans le troisième chapitre, on présente les résultats obtenus en se basant sur l'étude de l'effet des dimensions de l'échangeur d'hélium sur les champs de température, de vitesse, de pression et surtout sur la forme et l'évolution du front de solidification.

Enfin, une synthèse des résultats obtenus est présentée en conclusion où l'on propose des perspectives préconisant de compléter le travail.



I.1 Introduction

Les cristaux naturels ont toujours été appréciés par l'homme pour leur beauté. Mais ce n'est que lorsque leur utilité pour le développement de la connaissance scientifique et pour les besoins d'une société technologique a été reconnue que les spécimens naturels ont laissé une place de plus en plus grande aux monocristaux de synthèse.

Il est évidemment plus difficile de faire croître des monocristaux que des matériaux polycristallins, et l'effort supplémentaire n'est justifié que si les monocristaux ont des propriétés exceptionnelles. Leurs principaux mérites sont l'anisotropie, l'uniformité de la composition et l'absence de joints de grains inévitablement présents dans des matériaux polycristallins.

Ensuite les cristaux ont motivé les chercheurs et les ingénieurs en vue de produire les principaux matériaux de l'électronique moderne, l'optoélectronique et d'autres techniques d'application. Le processus de formation de cristaux dans la nature ainsi que la préparation de cristaux dans les laboratoires et leur fabrication dans les usines (applications techniques) est appelée le domaine de «la croissance cristalline».

La cristallisation, au sens large, est le changement d'état qui donne lieu dans un solide, un liquide ou une vapeur, à la formation d'une phase solide cristallisée, c'est à dire à organisation géométrique régulière. Dans la pratique industrielle, elle est considérée comme la formation de cristaux d'un ou plusieurs solutés à partir de leur solution dans un liquide, le solvant. Les cristaux sont ensuite Retirés de la solution restante, appelée eau-mère ou liqueur-mère, par des opérations de Séparation solide-liquide, telles que la filtration et la centrifugation. Dans ce cas la Cristallisation peut être envisagée approximativement comme l'inverse de la dissolution. [1], [2]

I.2 Techniques de la croissance cristalline

D'après l'historique le premier fondateur du cristallogène scientifique est le professeur A. Verneuil. Dans un compte rendu à l'Académie des sciences en 1904, il décrit une technique de croissance par fusion à la flamme qui lui permet d'obtenir les premiers monocristaux de saphir et rubis. La première expérience de tirage d'un monocristal à partir d'un bain fondu, a été réalisée en 1916 par Jan Czochralski. Il s'agissait du tirage d'un fil d'étain monocristallin. Toutes les techniques de cristallisation, qui se sont développées

ensuite (Bridgman(1923), Kyropoulos (1926), Stockbarger(1936).....) vont attendre plusieurs années pour se développer. L'intérêt croissant des cristaux pour la recherche depuis les années 50 va faire apparaître de nouveaux procédés d'élaboration et la cristallogenèse va permettre d'obtenir des cristaux que la nature elle-même n'a pas su créer. Les nombreux travaux qui lui sont alors consacrés vont déboucher sur d'extraordinaires applications techniques, notamment dans le domaine de l'électronique et de l'optique. L'importance des monocristaux demeure aujourd'hui essentielle pour les technologies présentes et futures.

Les principales techniques de croissance cristalline utilisées actuellement pour produire les monocristaux vont être décrites ci-dessous [3].

I.21. La méthode de tirage de Czochralski : [2] ; [3]

La technique la plus couramment utilisée aujourd'hui pour la production de nombreux monocristaux est donc le tirage Czochralski. Elle consiste à cristalliser le matériau à partir de sa phase liquide en trempant à la surface du bain fondu un germe monocristallin orienté du cristal à obtenir. Le bain se solidifie sur le germe légèrement plus froid. Le cristal formé est extrait en tirant lentement ce germe vers le haut. On peut contrôler le diamètre de croissance du cristal en faisant varier la température du bain ou la vitesse de tirage. Aujourd'hui on utilise une pesée du cristal (ou du creuset) pour contrôler le diamètre du cristal. La température du bain, du moins à l'interface, est fixée par l'équilibre solide-liquide. En réalité, on fait varier l'apport de puissance au bain, le cristal compensant la différence en générant plus ou moins de chaleur latente de solidification, donc en modifiant son diamètre. La pesée du cristal n'est pas utilisée pour le silicium car le solide est plus léger que le liquide.



Figure I .1 : Principe de la méthode de tirage de Czochralski

Un appareillage Czochralski est généralement composé de 2 parties : une partie supérieure supportant la tête de tirage et une partie inférieure où se trouve le creuset calorifugé, chauffé par induction haute fréquence. Pour certains cristaux (silicium, LiNbO3, par exemple) un chauffage résistif peut être utilisé. L'ensemble doit pouvoir travailler aussi bien à l'air ambiant que sous gaz inerte ou sous vide. La perfection du cristal est souvent liée à la précision mécanique du dispositif de tirage, à la sensibilité de la pesée et au dispositif thermique entourant le creuset. L'interface de croissance que l'on peut ajuster en jouant sur la vitesse de rotation du germe doit être la plus plate possible afin d'éviter les tensions qui ont pour effet d'augmenter fortement la densité de dislocations. Du fait des hautes températures de fusion, les creusets doivent être constitués d'un matériau neutre chimiquement vis-à-vis du matériau à élaborer et de l'atmosphère, ce qui impose des métaux nobles : platine ou iridium pour les oxydes. En particulier l'utilisation de l'iridium interdit de travailler en atmosphère riche en oxygène. Dans le cas de semi-conducteurs ou de matériaux non oxydes, l'utilisation de creusets en quartz ou carbone peut être envisagée.



Figure I.2: Lingots obtenus par la technique de Czochralski

La croissance est généralement décomposée en 3 phases :

- l'affinage au diamètre du germe (quelques millimètres) qui permet d'éliminer les défauts en provenance de celui-ci,

- la réalisation de la tête du cristal qui consiste à atteindre plus ou moins rapidement le diamètre nominal du cristal (25, 50, 75,100... millimètres), ce qui permet de diminuer certains défauts du type dislocations par exemple,

le tirage au diamètre qui doit être le plus stable possible, sans fluctuations de diamètre, sans à-coups de puissance et de translation et qui peut durer plusieurs dizaines d'heures.
Enfin de tirage le cristal est soulevé lentement Les vitesses de croissance utilisées en technique Czochralski sont de l'ordre de quelques mm/heure pour les matériaux non dopés. En cas de dopage, notamment en vue d'un effet laser (néodyme dans YAG par exemple), il est nécessaire de diminuer fortement cette vitesse jusqu'à quelques dixièmes de mm par heure. Cette réduction a pour effet d'éviter les défauts liés à des phénomènes locaux de surfusion (appelés striations) et d'obtenir une concentration en dopant la plus homogène possible dans le cristal. Ce problème est particulièrement critique dans le cas de substitutions de cations ayant des rayons ioniques très différents.



Figure I.3: Lingots de silicium obtenus par la technique de Czochralski (Diamètre=150mm-460mm)

Pour certains cristaux particulièrement sensibles aux chocs thermiques (LiNbO3ou LaTiO3 par exemple), un four auxiliaire de recuit peut être ajouté. Les conditions de croissance dépendent fortement des cristaux étudiés. Outre les grenats (aluminates, gallates...), niobates et tantalates de lithium, la méthode Czochralski permet d'obtenir de nombreux monocristaux : aluminates (YAIO3, LaMgAI11O19), silicates (Y2SiO5, Gd2SiO5, Lu2SiO5), germanates (Bi4Ge3O12, Bi12GeO20), vanadates(YVO4), borates (YCa4B3O10, GdCa4B3O10), tungstates (CaWO4), mais également fluorures (LiYF4 notamment).

Pour la croissance de certains matériaux qui doivent être obtenus en grand diamètre, une méthode Czochralski modifiée a été mise au point, c'est la méthode Kyropoulos. Le concept de base est le même que pour le Czochralski mais après démarrage de la croissance, la translation est stoppée et le contrôle de la croissance est réalisé par une diminution de la puissance du générateur à haute fréquence. Cette méthode est essentiellement utilisée pour la croissance de gros cristaux d'halogénures alcalins (Nal, Csl...). Certains monocristaux semi-conducteurs et composés optoélectroniques (GaAs, InP...) sont difficiles à obtenir en raison de la dissociation du bain en cours de croissance. Une des solutions retenues pour éviter cet inconvénient consiste à emprisonner le bain. Ceci a permis de mettre au point des techniques de tirage, soit à travers un encapsulant, soit dans une ampoule scellée, soit sous pression contrôlée (quelques atmosphères pour GaAs).

I.2.2. Technique de Bridgman:

La méthode de croissance de Bridgman est fondamentalement un procédé de refroidissement contrôlée ayant lieu sous des conditions d'équilibre liquide-solide. La croissance a lieu, également, sous un gradient de la température, et le mécanisme doit produire un noyau dont le monocristal se propagera et se développera. Ceci est réalisé en déplaçant l'interface solide - liquide lentement (5-50 mm/jour) jusqu'à ce que la totalité de la charge fondue soit solidifiée.

Cette méthode repose également sur la technologie des hautes températures, variant entre 400 et 1400°C. Elle est utilisée pour les composés dont la phase fondue est toxique ou très réactive vis-à-vis de l'air ou en présente d'une forte tension de vapeur. Elle est employée pour la croissance de certains semi-conducteurs pour l'optique comme GaAs, AgGaS₂, AgGaSe₂, GaSe, Tl₃AsSe₃, ainsi que pour les halogénures alcalins comme CaF₂ et MgF₂.

Le creuset qui contient le matériau fondu est déplacé horizontalement en mouvement unidirectionnel à travers un gradient de température maintenu par le four; c'est la technique de Bridgman horizontale (figure I.4).

12



Figure I.4 : Techniques de croissance cristalline horizontale de type Bridgman



Figure I.5 : Techniques de croissance cristalline verticale de type Bridgman

Une seconde technique de Bridgman est actionnée verticalement (figure I.5) ; Comme son nom l'indique le creuset qui contient le matériau fondu est placé verticalement. Le bain est au dessus du cristal : la croissance est alors réalisée en ampoule scellée, introduisant une difficulté supplémentaire par rapport à la technique Czochralski.

Comparée à d'autres méthodes de croissance, la méthode de Bridgman est considérée comme un procédé simple mais plusieurs limitations existent. Cette technique ne peut pas

être appliquée à un matériau qui se décompose avant qu'il fonde, à des systèmes ayant des pressions élevées à l'état gazeux, ou à des matériaux révélant des transformations de phase solide-solide destructives qui affecteront la qualité du cristal.

Un autre inconvénient de cette technique est la nécessité d'utiliser une ampoule pour soutenir le bain, la différence des coefficients de dilatation thermique de l'ampoule et du solide pouvant induire des contraintes thermo élastiques lors du refroidissement induisant des défauts indésirables dans le lingot produit.

I.2.3. Technique de la zone fondue flottante :

C'est une technique alternative de celle de Czochralski. Elle a été employée la première fois pour la purification des matériaux. Les impuretés contenues dans le matériau d'alimentation restent alors dans le bain et peuvent être balayées ainsi par l'extrémité de la tige.

Le matériau se cristallise alors de nouveau pour devenir un monocristal pur. Le matériau polycristallin (typiquement sous forme de tige circulaire) est converti en monocristal par le chauffage de zone commençant à la surface où le germe de monocristal entre en contact avec le matériau polycristallin produisant ainsi des lingots de monocristal de grande pureté (c.-à-d. résistivité très élevée).

L'inconvénient de ce procédé réside dans la difficulté à maintenir une zone stable pour le tirage de lingots de grande taille. Par rapport à la technique de Czochralski, la distribution radiale du dopant n'est pas uniforme, de plus le diamètre des lingots de silicium demandés par la technologie des semi-conducteurs est beaucoup plus important dans la technique de Czochralski (plus de 300mm). [5]



Figure I.6 : Technique de la zone fondue flottante

I.3 Technique de croissance cristalline HEM [1, 5]

La méthode HEM est un procédé de croissance en creuset vertical d'un mono ou polycristal à partir de la phase liquide, la chaleur latente de solidification étant extraite à la partie inférieure du lingot grâce à un échangeur de chaleur.

Le four HEM est conçu de telle façon à ne pas développer de forts gradients de température en assurant une bonne symétrie thermique et une isolation multicouche toute autour. Le germe de cristal est placé à la base du creuset, il est mis sur l'échangeur de chaleur. Le creuset est ensuite rempli avec la charge de silicium (silicon feedstock) sur le germe cristallin.

Le four est constitué d'une zone de chaleur en graphite soutenue par des couches d'isolation en graphite. Cet ensemble est placé dans une étanche vide, chambre en acier inoxydable refroidie à l'eau. La chaleur est fournie par une palissade de type « graphite à chauffage résistif » alimentée par une alimentation triphasée appropriée. Un échangeur de chaleur à basse température est introduit par le fond de la chambre et la zone de chaleur. Cet échangeur de chaleur est un tube à extrémité fermé avec un tube à injection pour l'écoulement de l'hélium comme fluide de refroidissement.

Il n'y a pas de mouvement de pièces dans le four HEM, ceci minimise l'étanchéité requise. De plus, l'interface solide-liquide est immergée au dessous de la masse fondue (melt) par conséquent un petit orifice d'observation est incorporé dans la partie supérieure. Les autres orifices sont destinés à l'évacuation, le contrôle et les mesures de températures (pyrométrie). Ces caractéristiques permettent un bon design pour une bonne isolation de la zone chaude. Le contrôle de l'instrumentation est lié à un microprocesseur double-canal standard qui peut être facilement programmé pour l'apport de chaleur (heat input) que pour l'extraction de la chaleur (heat extraction).



Figure I.7: Schéma du four de croissance HEM

La zone de chauffage est conçue de telle sorte que, sans écoulement de liquide de refroidissement à travers l'échangeur, il n'y a pas de forts gradients thermiques dans le four. Ceci est atteint par une symétrie thermique, isolation multicouche tout autour de la zone de chaleur et la minimisation des pores d'observation. La HEM a été développée pour faire croître des cristaux de haute qualité. Un germe de cristal est placé au fond du creuset situé dans échangeur à haute température. La matière première est ensuite chargée dans le creuset au dessus du germe cristallin.

La chaleur fournie par le réchauffeur en graphite est transférée vers le creuset pour fondre la charge de silicium, Au cours du chauffage, le germe est maintenu à l'état solide en le refroidissant par le gaz d'hélium à travers l'échangeur de chaleur.

Après la refonte du germe, la croissance progresse en augmentant le débit de l'hélium et de ce fait la température de l'échangeur de chaleur diminue.

Au cours de la croissance, les gradients de température dans le cristal et le bain sont contrôlés indépendamment par l'échangeur de chaleur, et la température du four respectivement. A la fin du processus de croissance, l'écoulement du gaz à travers l'échangeur de chaleur décroit de façon à équilibrer la température dans le cristal au cours de son refroidissement.

Cette technique est unique en ce que le gradient de température contrôlé indépendamment du gradient du solide sans mouvement de creuset, de la zone de chaleur ou du lingot.

Le front de solidification est immergé, de façon à le stabiliser par le liquide environnant. Il est donc protégé des fluctuations de température, vibrations mécaniques, et courants de convection, par conséquent la rotation du creuset n'est pas nécessaire pour garantir la symétrie thermique.

Au cours de la croissance, le matériau froid est en bas et le bain chaud est en haut, minimisant ainsi les effets néfastes de la convection. La stabilité du champ de température aide à minimiser le sur-refroidissement, et assure une croissance uniforme donnant un cristal parfait et homogène chimiquement.

La forme de l'interface bain cristal est convexe, donc les impuretés se rassemblent sur les cotés du cristal et non pas au centre. Le contrôle précis de l'interface dans la technique HEM donne des taux de croissance élevés sous faibles gradients de température, cela réduit les tensions de solidification qui mène à la formation de défauts.

C.P.Khattak, F.Schmid [6,7] et J.Dong, P.Deng, [8] ont fait croître des cristaux de saphir de bonne qualité par la méthode HEM. Malgré sa haute température de fusion (2040°C) et sa faible conductivité thermique par rapport aux métaux, les plus

grands cristaux de saphir dans le monde ont été produits par cette méthode [8].

De grands lingots de NaMgF3 ont été produits par A.Oçafrain et al. [9] en utilisant la méthode HEM. V.Peters et al. [10] ont fait croître des cristaux de Sc2O3, selon la même référence les premiers cristaux produits par HEM sont des cristaux de scandia.









(c)

(d)

Figures I.8: Lingots de saphir produits par la technique HEM. (a) : dans le creuset, (b) : après extraction du creuset, (c): lingot à interface solide-liquide plane, (d): lingot à interface solide-liquide sous forme de dôme

En utilisant la méthode des éléments finis, J.H.Wang, D.H.Kim et J.S.Huh [11] ont modélisé numériquement la croissance HEM de BGO (Bismuth germanium Oxyde) pour étudier l'effet de différents paramètres du processus sur la forme de l'interface, le profil de température, et les lignes de courant. Ils ont observé que la déflection de l'interface de croissance devient maximale quand elle coïncide avec le coin du creuset. Cette déflexion maximale croit avec l'augmentation de la température de chauffage et elle est aussi influencée par la température de l'échangeur. En utilisant le code de calcul FIDAP, C.W.Lu, J.C.Chen et L.J.Hu [12] ont étudié numériquement l'effet de la température du four dans le système de croissance HEM de saphir sur la convexité de l'interface cristal-bain et l'augmentation de la taille du cristal, ils ont montré qu'une haute température de chauffage engendre une grande convexité, et que durant la baisse de cette température et quand elle atteint la température de fusion le volume du cristal augmente rapidement. On constate alors qu'une baisse progressive de la température de chauffage est nécessaire pour garder un taux de croissance constant.

J.C.Chen et C.W.Lu [13] ont étudié numériquement l'influence de la forme du creuset sur le champ thermique, dynamique et la forme de l'interface bain-cristal au cours de la croissance cristalline HEM de saphir. Ils ont montré qu'un creuset cylindrique à base incurvé aide à minimiser la convexité de l'interface de croissance et à supprimer les zones de fluide mort dans le bain et donc éviter le back-melting qui mène à des défauts dans la structure cristalline.

J.M.Kim et Y.K.Kim [14] ont produit et analysé des lingots de Silicium plycristallin d'une section carrée de 69cm et de 240kg de poids. Ils ont montré leur consistance et uniformité, et que leur utilisation dans la fabrication des cellules solaires montre une bonne performance, similaire aux lingots de silicium monocristallin produits par la technique de Czochralski.

A.Ahmanache, N.Zeraibi et E.Arquis [15] ont fait la première étude adimensionnelle (paramétrique) de la croissance cristalline HEM, en utilisant e code de calcul Fluent. Ils ont montré l'effet de certains nombres adimensionnels qui caractérisent le processus sur les profils de vitesse, de température et forme de l'interface.

En utilisant la technique HEM avec un contrôle simultané des températures de chauffage et de refroidissement, H.Rahab et al [16] ont fait croître des cristaux de NaBiW2O8 (NBW) et de Na5B2P3O13 (NBP) de quelques centimètres de diamètre.

H.B. Xiong, Y. Ma et L.L. Zheng [17] ont simulé le transfert de chaleur et l'écoulement du bain pour la croissance cristalline dans un procédé HEM modifié, qui combine les avantages du procédé HEM traditionnel et du procédé de Bridgman. Ils

19

ont montré que le four HEM modifié est approprié pour la croissance de grands monocristaux qui nécessite un bon contrôle de la température de chauffage, et que le gradient de température dans le cristal est faible par rapport à HEM traditionnel, ce qui minimise les défauts et fissures dans le lingot.

I.3.1. Avantages de la méthode HEM :

Certains matériaux présent une meilleure qualité cristalline lorsqu'ils sont produits par HEM (Al2O3 ; Bi4Ge3O12) ; l'origine se trouve, avant tout, dans la forme et dans la position (par rapport au liquide) particulières de l'interface durant la croissance.

De plus, HEM étant surtout dédié à la production industrielle, le facteur économique ne doit pas être négligé dans la comparaison des techniques.

• Absence de mouvement

La caractéristique principale du HEM est l'absence de mouvement durant le processus que ce soit du germe, du bain ou du four, ce qui évite de perturber l'interface de croissance, contrairement à la technique Czochralski (ou le germe subit un mouvement de rotation-translation ce qui entraine un fort courant dans le bain) et à la technique Bridgman-Stober (ou, soit le four, soit le creuset, subit une translation en continu).

• Position de l'interface

En comparaison avec Czochralski, ou l'interface est à la surface du bain, et donc les gradients de température locaux importants, dans HEM, l'interface solide-liquide est immergée; en conséquence, toute perturbation mécanique ou thermique dans le four est atténuée par la masse fondue avant d'atteindre l'interface.

De plus, le gradient thermique vertical au voisinage de l'interface est orienté vers le haut, contrairement à Czochralski, ce qui minimise la convection.

De ces deux phénomènes résultent des gradients de température stabilisants, avec des variations minimes à l'interface ; on peut donc s'attendre à une perfection cristalline plus grande et à une meilleure homogénéité chimique.

• Contraintes thermiques

20

Dans la technique de Czochralski , le cristal se situe dans une zone à forte gradient de température , hors du four , ce qui le soumet à un choc thermique pouvant engendrer des fissurations, ou nécessite l'apport d'un four de recuit.

Dans HEM, le cristal reste dans le four durant son refroidissement ; ainsi la formation de défauts issus des contraintes de solidification est réduite.

De plus, le cristal produit par HEM peut subir un recuit in-situ puisqu'il ne quitte pas la zone chaude. Il suffit d'abaisser la température du four juste en dessous de la température de fusion. Ainsi, par un refroidissement uniforme et contrôlé du cristal, on atténue les contraintes internes et on empêche la fissuration.

Cette caractéristique permet la production de lingots de grandes dimensions, et élimine une étape de recuit séparé, intérêts non négligeables d'un point de vue économique.

• Forme du lingot

Enfin, la forme du lingot étant déterminée par celle du creuset, la production de lingots de section carrée ou rectangulaire et dimensions variées est possible, dans un même four, contrairement au Czochralski, donnant un autre avantage économique à HEM dans la production de certains matériaux à applications spécifiques, en particulier le silicium pour les cellules solaires ou les barreaux de laser.

I.3.2. Inconvénients :

- La fusion et la solidification ont lieu dans un creuset, ce qui peut entrainer une pollution et des contraintes mécaniques; phénomènes que l'on évite par l'absence de contact du cristal avec le creuset dans Czochralski. L'existence de creuset avec lequel le liquide ne réagit pas pour être un frein à l'utilisation du HEM.
- La difficulté à suivre l'interface liquide-solide durant une croissance, en particulier lors de la fusion partielle du germe, rend la méthode parfois non reproductible et nécessite plusieurs essais de croissance pour chaque matériau, afin de cerner les paramètres thermiques adéquats.

 L'absence de mouvement, tout en étant un avantage, peut être un inconvénient puisqu'elle conduit à une mauvaise homogénéisation du bain et éventuellement du dopant, contrairement au Czochralski. Cependant, cet inconvénient est en partie compensé par les très faibles vitesses de croissance (mm /h).

I.4 Le saphir : [18]

Les gisements de saphirs les plus connus et les plus exploités dans le monde se trouvent principalement en Thaïlande, au Sri Lanka, en Chine, en Australie, en Afrique de l'Est et à Madagascar. Ils ont fait le plus souvent l'objet de descriptions et d'études géologiques (Jobbins & Berrangé, 1981 ; Coldham, 1985 ; Vichit, 1992 ; Bosshart, 1995 ; Coenraads 1995; Smith *et al.*, 1995 ; Guo *et al.*, 1996a ; Krzemnicki *et al.*, 1996 ; Schwarz *et al.*, 1996 ; Sutherland, 1996 *etc....*). Les occurrences françaises actuelles ne sont pas reconnues pour leur production en gemmes mais seulement en tant que curiosités minéralogiques. Cependant, cela n'a pas toujours été le cas, puisqu'au Moyen Age l'importation se concentrait dans une géographie restreinte à l'Europe Occidentale.

а

b

С



La région du Massif Central était alors réputée pour ces ressources en gemmes, comme c'est le cas des saphirs, grenats et hyacinthes (zircons rouges) du Puy en Velay. L'histoire de l'un de ces gisements a été retracée par Forestier (1993). Il s'agit d'un gisement de type alluvionnaire sur le ruisseau du Riou Pezzouliou dont le volcan du Croustet est la source. La ressource en gemmes de ce ruisseau est au moins connue depuis le XIII^{ième} siècle, et elle a fourni toute l'Europe médiévale, principalement au Moyen Age.



Figures I.10 : Gisement du Mont Coupet ; a : saphir taillé collection Bayle ; b : saphir brut, d collection Bayle ; c : saphir brut, collection Gerbier; d : zircon, collection Sac..

Les saphirs, grenats et hyacinthes du Velay ont été retrouvés dans les trésors de la Papauté, dans ceux de l'abbaye de St Denis, des rois de France... Ils ont été l'objet d'une exploitation massive jusqu'au début du XX^{ième} siècle, les gisements sont aujourd'hui presque épuisés. L'origine des saphirs a longtemps été attribuée à un simple métamorphisme ou métasomatisme, excluant totalement une origine magmatique (Forestier & Lasnier, 1969 ; Leyreloup, 1973 et 1993 ; Simonet, 1997 ; Muhlmeister *et al.* 1998).



Figures I .11 : Lingots du saphir

Les corindons proviendraient d'enclaves du socle remontées jusqu'à la surface lors d'une activité volcanique (cf. le diamant pour lequel la kimberlite n'est que le vecteur). Il est en effet attesté que l'origine de certains saphirs du Massif Central est attribuée à un métamorphisme, mais on peut se demander si c'est le cas de tous les gisements. La littérature plus récente démontre la possibilité d'une origine purement magmatique pour certains gisements de saphirs, ce qui est le cas de certains gisements d'Australie, de Chine et d'Asie.

I.4.1. Composition chimique

Les saphirs définissent les corindons de toutes les couleurs exceptées la couleur rouge pour laquelle le nom de rubis est réservé. Le corindon a pour formule chimique Al O 2 3 (52,9% d'aluminium et 47,1 pds % d'oxygène pour la forme pure incolore). Des éléments en trace peuvent se substituer à l'aluminium dans diverses proportions, comme le Ti, le Fe, le Cr, le V (éléments chromogènes) ou encore le Ga.

I.4.2. Structure cristalline

Le corindon cristallise dans le système rhomboédrique, et montre des habitus variés. Ozerov (1945) distinguait ces habitus en quatre morphologies de base, liés à des environnements géologiques particuliers : habitus di pyramidal, prismatique long, rhomboédrique et pinacoïdal. L'association de plusieurs de ces habitus donne des formes en tonnelet ou en barillet assez courantes.

La dureté du corindon s'élève à 9 sur l'échelle de Mohs (juste avant le diamant). Six atomes d'oxygène entourent un atome d'aluminium, formant l'octaèdre AIO_6 considéré comme très rigide. En fait les atomes d'aluminium occupent deux sites octaédriques sur trois. L'assemblage des octaèdres est compact, ce qui se traduit par une densité élevée de 3,98 à 4,02.

I.4.3. Couleur

Le saphir sans adjectif qualifie la pierre de couleur bleue. Pour les pierres d'autres couleurs, l'adjectif est ajouté, comme par exemple saphir rose ; certains saphirs ont des noms propres comme dans le cas de la variété Padparadshah qui a une couleur allant du rose à l'orange. Il existe des saphirs astéries qui montrent une étoile à 6 ou 12 branches, étoile due à la réflexion de la lumière sur de microscopiques inclusions épitactiques en aiguilles ou en plaquettes, qui sont souvent (mais pas toujours) du rutile.

Les différentes couleurs que peut prendre le saphir sont dues à la présence d'éléments en trace qui viennent se substituer à l'aluminium : ce sont principalement le fer, le titane et le chrome. La couleur bleue (caractéristique par exemple des saphirs du Massif Central).

I.5 Conclusion

Au cours de ce premier chapitre on a fait un recensement et analyse de la littérature spécifique à notre étude, pour cela on a définit les différentes techniques de la croissance cristalline mais notre travaille est basé sur la technique HEM (Heat Exchanger Method). On a

donné le principe de cette technique ainsi que ses avantages et ses inconvénients. On a décrit le saphir, ses propriétés chimiques et physiques.

Par la suite on s'intéresse à la simulation numérique de la croissance cristalline HEM. Pour ce faire, on a recours au code de calcul fluent avec une méthode qui s'appelle la méthode enthalpique.

CHAPITRE II: Pose De La Problématique Et Description Du Code De Calcul

II.1 Introduction

L'étude expérimentale de l'écoulement dans de vrais systèmes de croissance est très limitée. Cela est dû au fait que la visualisation n'est pas possible avec les températures opérant en phase réelle de croissance.

On se propose, ici, de décrire les conditions de travail liées à l'élaboration de cristal afin de formuler le modèle mathématique qui régit le problème physique considéré. Il s'agit essentiellement d'analyser les aspects phénoménologiques de la croissance cristalline avec la méthode HEM.

II.2 Description Du Problème

II.2.1. Hypothèses simplificatrices :

On impose un certain nombre d'hypothèses devant faciliter la procédure de modélisation liée au problème considéré.

- Les propriétés thermo physiques du fluide sont supposées constantes: la densité, la viscosité, la diffusivité thermique et la conductivité thermique.
- Le bain fondu est un fluide newtonien et incompressible satisfaisant à l'hypothèse de Boussinesq.
- L'écoulement du liquide au sein du creuset est laminaire.
- Symétrie axiale.
- L'approche enthalpique est utilisée pour traiter le changement de phase.
- Les parois du creuset sont considérées comme étant adiabatiques.
- L'échangeur thermique est à une température constante.

II.2.2. Hypothèse de Boussinesq

Cette approximation qui porte le nom de Joseph Boussinesq est utilisée dans le domaine des écoulements dû à la gravité, autrement, à dit la convection naturelle. Elle indique que les différences de densité sont suffisamment petits pour être négligées, sauf là où elles apparaissent en termes multipliés par g, l'accélération de la
pesanteur. En effet, lorsqu'aucune force extérieure n'est présente, cette variation de la masse volumique est la seule cause du mouvement ; elle ne peut donc être négligée vis-à-vis des autres termes de l'équation.

Les écoulements de Boussinesq sont présents dans la nature, à savoir, les fronts atmosphériques, la circulation océanique et les vents catabatiques, dans l'industrie, la dispersion des gaz denses et la hotte de ventilation, et aussi dans l'environnement des bâtis, la ventilation naturelle et le chauffage central.

Dans le cadre de cette approximation, la densité peut s'écrire comme suit :

$$\rho = \frac{\rho_0}{\left(1 + \beta\tau\right)}$$

où ρ_0 indique la densité de référence.

 β représente le coefficient de dilatation thermique. Pour les liquides, β est généralement de l'ordre de 10⁻⁴, ce qui justifie l'hypothèse de Boussinesq.

au est la différence entre la température dans le bain et la température de fusion T_f .

Donc le terme de gravité est censé être affecté par la densité qui varie selon la loi suivante :

$$\rho = \frac{\rho_0}{\left(1 + \beta\tau\right)} \approx \rho_0 \left(1 - \beta \cdot \tau\right)$$

Pour les autres termes de l'équation de Navier Stokes la densité est supposée constante.

L'ensemble creuset-cylindre tourne autour de l'axe Oz, c'est pourquoi nous admettons la symétrie axiale : $\partial/\partial \varphi = 0$.

II.3 Equations dimensionnelles :

Les équations régissant la dynamique de l'écoulement sont issues des principes de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'équation de conservation de l'énergie dans le bain et le cristal en ajoutant des termes sources qui traduisent de changement de phase. Vu l'axisymétrie du problème et les autres hypothèses énoncées

auparavant, la résolution des équations de système va se faire dans une géométrie bidimensionnelle limitée à une section rectangulaire axisymétrique du creuset représenté par le schéma de la figure II.1.



Figure II.1 schéma du domaine de calcul

Dans le cas d'un creuset cylindrique considéré dans le dispositif classique, la représentation du système d'équations précédent s'effectue dans une base de coordonnées cylindriques qui est la suivante :

• Equation de la continuité :

$$\frac{\partial V'_r}{\partial r'} + \frac{V'_r}{r'} + \frac{\partial V'_z}{\partial z'} = 0$$

• Equations de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial V'_{r}}{\partial t'} + V'_{r} \frac{\partial V'_{r}}{\partial r'} + V'_{z} \frac{\partial V'_{r}}{\partial z'} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P'}{\partial r'} + \upsilon \left[\frac{1}{r'} \frac{\partial}{\partial r'} \left(r' \frac{\partial V'_{r}}{\partial r'} \right) - \frac{V'_{r}}{r'^{2}} + \frac{\partial^{2} V'_{r}}{\partial z'^{2}} \right] - A_{mush} \cdot (I - f_{l}) V'_{r}$$

$$\frac{\partial V'_{z}}{\partial t} + V'_{r} \frac{\partial V'_{z}}{\partial r'} + V'_{z} \frac{\partial V'_{z}}{\partial z'} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P'}{\partial z'} + \upsilon \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial V'_{r}}{\partial r'} \right) - \frac{V'_{r}}{r'^{2}} + \frac{\partial^{2} V'_{r}}{\partial z'^{2}} \right] - A_{mush} \cdot (I - f_{I}) V'_{z} - g\beta \left(T' - T_{f} \right)$$

• Equation de l'énergie :

$$\frac{\partial T'}{\partial t'} + V'_{r} \frac{\partial T'}{\partial r'} + V_{z'} \frac{\partial T'}{\partial z'} = \alpha \left\{ \frac{1}{r'} \frac{\partial}{\partial r'} \left(r' \frac{\partial T'}{\partial r'} \right) + \frac{\partial^{2} T'}{\partial z'^{2}} \right\} + \frac{L}{Cp} \frac{\partial f'_{l}}{\partial t'}$$

Les propriétés thermo-physiques qui apparaissent dans les équations précédentes sont la densité ρ , la viscosité cinématique v, la diffusivité thermique α , ($\alpha = k/\rho \ Cp$), la conductivité thermique k, la capacité calorifique à pression constante Cp et T_f est la température de fusion. L est la chaleur latente de fusion, f_I est la fraction liquide. A_{mush} est une constante caractéristique de l'interface de croissance, elle doit être suffisamment élevée pour annuler les vitesses dans les cellules à l'état solide.

Conditions aux limites :

Tenant compte des hypothèses énoncées auparavant, les conditions aux parois du creuset sont adiabatiques, et la température de l'échangeur est constante, on la fait varier pour évaluer son effet sur les résultats de la simulation.

| Paroi latérale du creuset: | $\frac{\partial T}{\partial r} = 0$ | r :rayon du creuset |
|----------------------------------|-------------------------------------|--|
| Base du creuset: | $\frac{\partial T}{\partial z} = 0$ | Z=0 ;R _E ≤R≤R _C |
| Paroi supérieure du creuset: | $\frac{\partial T}{\partial z} = 0$ | Z=H |
| Echangeur thermique : 7 = | 0.1. T _f | |
| Condition initiale : $T = T_f$ | $+\Delta T_{ex}$ | |

Où ΔT_{ex} est la température d'excès du chauffage, dans notre cas ΔT_{ex} =27°C

II.4 Equations adimensionnelles :

La mise des équations sous forme adimensionnelle est intéressante car elle permet de limiter à quelques nombres sans dimension les coefficients qui caractérisent le problème posé.

En effet, pour transformer les équations phénoménologiques sous une forme adimensionnelle, il est nécessaire de définir, moyennant des grandeurs caractéristiques, des changements de variables. Pour ce faire, on fait appel aux grandeurs de référence suivantes :

Longueur : R_e rayon de l'échangeur. $r = r'/R_e$

Vitesse
$$\frac{\alpha}{R_e}$$
 $V = V'^*a/R_e$

Température T_f température de fusion $T = T'/T_f$

Temps
$$\frac{R_e^2}{lpha}$$
 $t = t'/(R_e^2/lpha)$

Le système d'équations régissant le problème s'écrit alors sous la forme adimensionnelle suivante :

• Equation de la continuité :

$$\frac{\partial V_{\rm r}}{\partial \rm r} + \frac{V_{\rm r}}{\rm r} + \frac{\partial V_{\rm z}}{\partial \rm z} = 0$$

• Equations de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial V_r}{\partial t} + V_r \frac{\partial V_r}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_r}{\partial z} = -\frac{\partial P}{\partial r} + Pr \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial V_r}{\partial r} \right) - \frac{V_r}{r^2} + \frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2} \right] + S \left(1 - f_1 \right) V_r$$
$$\frac{\partial V_z}{\partial t} + V_r \frac{\partial V_z}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_z}{\partial z} = -\frac{\partial P}{\partial z} + Pr \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial V_z}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 V_z}{\partial z^2} \right]$$
$$- Ra.Pr(\Theta - 1) + S \left(1 - f_1 \right) V_z$$

• Equation de l'énergie :

$$\frac{\partial \Theta}{\partial t} + V_r \frac{\partial \Theta}{\partial r} + V_z \frac{\partial \Theta}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Theta}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \Theta}{\partial z^2} + \frac{1}{Ste} \frac{df_1}{dt}$$

Z=0; $R_E \leq R \leq R_C$

II.4.1 Conditions aux limites adimensionnelles

Paroi latérale du creuset: $\frac{\partial \Theta}{\partial r} = 0$ **r** :rayon du creuset

 $\frac{\partial \Theta}{\partial z} = 0$

Base du creuset:

Paroi supérieure du creuset: $\frac{\partial \Theta}{\partial z} = 0$

Echangeur thermique : $\Theta = 0.01, 0.03, 0.05, 0.07, 0.1$

Condition initiale : $\Theta = 1 + \Delta \Theta_{ex}$

II.4.2 Nombres adimensionnels :

II.4.2.1 Le nombre de Prandtl Pr :

C'est un nombre_adimensionnel qui représente le rapport entre la diffusivité de quantité de_mouvement v (ou viscosité_cinématique) et la diffusivité thermique.

Ce nombre porte le nom de Ludwig_Prandtl, un physicien allemand.

On le définit de la manière suivante :

$$\Pr = \frac{\upsilon}{\alpha}$$

II.4.2.2 Le nombre de Grashof Gr :

C'est un nombre_sans_dimension utilisé en mécanique_des_fluides pour caractériser la convection naturelle dans le fluide. Il correspond au rapport des forces de gravité sur les forces visqueuses. Ce nombre porte le nom de Franz_Grashof, un physicien allemand.

On le définit de la manière suivante :

$$Gr = \frac{g\beta R_c^3 (T_c - T_f)}{\upsilon^2}$$

II.4.2.3 Le nombre de Rayleigh Ra :

C'est un nombre adimensionnel utilisé en mécanique <u>des</u> fluides et caractérisant le transfert de chaleur au sein d'un fluide, s'il est inférieur à une valeur critique de 2000, le transfert s'opère essentiellement par conduction, tandis qu'au-delà de cette valeur c'est la convection libre ou naturelle qui devient importante.

On peut le définir comme le produit du nombre de Grashof, reliant la force d'Archimède à la viscosité du fluide, et du nombre de Prandtl.

Ce nombre porte le nom de Lord Rayleigh, un physicien anglais.

On le définit de la manière suivante :

$$Ra = Gr.Pr$$

II.4.2.4 Le nombre de Stephan :

Le **nombre de Stefan** est un nombre sans dimension utilisé en phénomène de transfert pour étudier le transfert thermique lors d'un changement de phase solide-liquide. Il représente le rapport entre la chaleur sensible et la chaleur latente.

Ce nombre porte le nom de Josef Stefan, un physicien et mathématicien slovène.

On le définit de la manière suivante :

Avec :

$$Ste = \frac{CpT_f}{L}$$

- T_f température de fusion
- **T** température du système
- **C**_p chaleur spécifique
- L chaleur latente de fusion

Ce nombre est un paramètre important pour résoudre le problème de Stefan, problème qui consista à calculer la vitesse du changement de la glace polaire en eau. Il existe le nombre de Jakob qui caractérise le même type de problème, mais pour le changement de phase liquide-gaz.

II.5 Propriétés géométriques et thermodynamiques

| Rayon du creuset (cm) | R _c | 1.5 |
|--|----------------|---------------------|
| Rayon de l'échangeur (% R _c) | R _e | 10% , 25%, 50%, 75% |
| Hauteur du creuset (cm) | Н | 2 |

Tableau II.1 Propriétés géométriques du système de croissance:

Tableau II.2 Propriétés thermophysiques du saphir :

| Propriété | Unité | notation | valeur |
|-------------------------------------|-------------------------------------|----------|-----------------------|
| Densité | Kg.m ⁻³ | ρ | 3000 |
| Capacité calorifique | J.Kg ⁻¹ .K ⁻¹ | Ср | 1560 |
| Conductivité thermique | W.m ⁻¹ .K ⁻¹ | k | 3.5 |
| Viscosité cinématique | m ² .s ⁻¹ | υ | 1.58 10 ⁻⁵ |
| Visco sité dyna mique | Kg.m ⁻¹ .s ⁻¹ | μ | 0.0475 |
| Coefficient de dilatation thermique | к-1 | eta | 1.8 10 ⁻⁵ |
| Diffusivité thermique | m ² .s ⁻¹ | α | 7.48 10 ⁻⁷ |
| Température de fusion | К | Tf | 2323.15 |
| Chaleur latente de fusion | J.Kg ⁻¹ | L | 1100000 |

Tableau II.3 Nombres adimensionnels:

| Nombre | formule | valeur |
|-------------------------|---|------------------------|
| Prandtl | $\Pr = \frac{\upsilon}{\alpha}$ | 21.12 |
| Rayleigh | $Ra = \frac{g\beta R_e^3 T_f}{\upsilon.\alpha}$ | 3.4710 10 ⁴ |
| Stephan | $Ste = rac{CpT_f}{L}$ | 3.294649 |
| Facteur d'aspect axial | $A = \frac{H}{R}$ | 13.33;5.33; |
| | K _e | 2.66 ; 1.77 |
| Facteur d'aspect radial | $Ar = \frac{Re}{Rc}$ | 0.1;0.25 ;0.5 ;0.75 |

II.6 Simulation numérique

La simulation numérique est réalisée sur les deux logiciels GAMBIT et FLUENT permettent de réaliser des simulations 2D ou 3D en mécanique des fluides allant de la construction du maillage sur GAMBIT à la résolution des équations de Navier Stokes et au post-traitement avec TECPLOT.

Ces logiciels ont déjà conquis l'industrie automobile, aéronautique et spatiale en raison des interfaces graphiques puissantes et des options disponibles, permettent de réaliser des simulations quasiment sur tous types de géométries même les plus complexes (fixes ou mobiles) associées à des maillages fixes ou adaptatifs et avec des modèles physiques variés (diphasiques, turbulents, etc.).

II.6.1 Description du code de calcul Fluent: [19]; [5]

FLUENT est un code de calcul pour modéliser les écoulements des fluides et les transferts thermiques dans ou autour des géométries complexes.

Le logiciel FLUENT est basé sur la méthode de modélisation numérique connue pour sa puissance de calcul et facilité de mise en œuvre ; la méthode des volumes finis. Cette méthode a été décrite pour la première fois en 1971 par Patankar et Spalding.

Le principe de cette méthode est basé sur une technique de discrétisation qui convertit les équations de conservation aux dérivées partielles en équations algébriques. Ces dernières sont résolues numériquement. La technique des volumes de contrôle consiste à l'intégration des équations aux dérivées partielles sur chaque volume de contrôle pour obtenir les équations discrétisées qui conservent toutes les grandeurs physiques sur un volume de contrôle (VC).

La méthode des V.F s'articule autour de trois étapes principales : la génération du maillage, la discrétisation des équations de transport basées sur le principe d'intégration les équations sur un volume de control, et puis la résolution du système d'équations par différentes méthodes de résolution numériques directes et itératives.

"Fluent" utilise cette technique basée sur les étapes représentées dans la figure (II.2) donnée ci – après :

35



Figure II.2 : Etapes Principales de la méthode des volumes finis.

Fluent peut résoudre des problèmes d'écoulement avec des mailles non structurées qui peuvent être produites pour des géométries complexes, avec une facilité relative. Les types de mailles supportées sont des mailles, en 2D, triangulaires ou quadrilatérales, ou en 3D tétraédriques/hexaédriques/pyramidales (Help FLUENT), et les mailles (hybrides) mixtes.

FLUENT supporte le langage de programmation C, et utilise pleinement la flexibilité et la puissance offertes par ce langage (allocation de la mémoire dynamique). En outre, il utilise une architecture qui permet une exécution simple ou parallèle en tant que plusieurs processus simultanés sur le même poste de travail ou sur des postes séparés, pour une meilleure rapidité et donc efficacité.

FLUENT s'utilise à travers une interface graphique. L'utilisateur avancé peut adapter ou augmenter selon les besoins, l'interface en écrivant des macros et des fonctions de menu, afin d'automatiser certaines procédures.

Pour résoudre des problèmes en mécaniques de fluides thermiques ou dynamiques, par les logiciels FLUENT et GAMBIT, on doit d'une manière générale suivre les étapes suivantes :

- > Création de la géométrie sous le logiciel GAMBIT,
- > Choix de la stratégie de maillage et création de plusieurs grilles,
- Définition des conditions aux limites dans GAMBIT,
- Définition du problème sous le logiciel FLUENT,
- Calcul avec FLUENT pour les différents cas retenus,
- Analyse des résultats obtenus.

Fluent peut modéliser les phénomènes suivants:

- Ecoulements 2D ou 3D ;
- Etats permanents ou transitoires ;
- Ecoulements incompressibles ou compressibles, non visqueux, laminaires ou turbulents, Newtonien ou non;
- Transfert de chaleur, par conduction, par convection ou radiatif ;
- Les écoulements avec changements de phases ;
- Ecoulements en milieu poreux.

II.6.2 Procédure sous Fluent

Au chargement de la géométrie sous Fluent, il s'agit, en premier lieu, de mettre la géométrie à l'échelle appropriée, mètres, centimètres, millimètres ou pousses. Ce logiciel permet aussi de réordonner les nœuds, les surfaces et les cellules en mémoire, de telle façon qu'ils aient la même disposition dans la grille et dans la mémoire. Ceci permet d'améliorer les performances du calcul et l'efficacité de l'accès à la mémoire.

II.6.3 Précision des calculs :

Selon la complexité du problème traité, deux versions sont disponibles sous Fluent, à savoir, « simple précision » et « double précision » (help Fluent).

Dans le mode « double précision », les nombres à virgule flottante sont représentés en utilisant 64 bits, alors que le mode « simple précision » utilise une représentation à 32bits. Le premier mode demande plus d'espace mémoire. Cependant, vu la complexité du phénomène de la croissance cristalline, la présence de différents modes de convection (convection naturelle, convection thermocapillaire de Marangoni, convection forcée,..) et le couplage des équations gouvernantes, on a opté pour le mode « double précision ».

II.6 .4 Choix du solveur:

FLUENT nous permet de choisir l'une des deux méthodes numériques suivantes :

Une méthode du solveur basée sur la pression.

Une méthode de solveur basée sur la densité.

L'approche basée sur la pression a été développée pour les écoulements incompressibles à faible débit, alors que l'approche basée sur la densité a été principalement utilisé pour les écoulements compressibles à grande vitesse (help Fluent).

Dans les deux méthodes, le champ de vitesse est obtenu à partir des équations de conservation de la quantité de mouvement. Dans l'approche basée sur la densité, l'équation de continuité est utilisée pour obtenir le champ de densité alors que le champ de pression est déterminé à partir de l'équation d'état.

Dans l'approche basée sur la pression, le champ de pression est obtenu en résolvant l'équation de la pression ou l'équation de correction de la pression qui est obtenue par manipulation les équations de la continuité et de la conservation de la quantité de mouvement.

En utilisant l'une de ces méthodes, FLUENT permet de résoudre les équations intégrales de la conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie et d'autres scalaires tels que la turbulence et des espèces chimiques. Dans les deux cas, une technique basée sur le volume de contrôle est utilisé qui se compose de:

- Division du domaine en volumes de contrôle.
- L'intégration des équations gouvernantes sur les volumes de contrôle individuellement pour construire des équations algébriques des variables dépendantes discrètes inconnues, tels que la vitesse, la pression et la température.
- Linéarisation des équations discrétisées et la résolution du système d'équations linéaires pour donner les nouvelles valeurs des variables dépendantes.

II.6.5 Schémas de discrétisation :

Sous "FLUENT", les variables stockées au centre de la cellule doivent êtres interpolées aux faces du volume de contrôle. Il est possible de choisir entre différents schémas de

38

discrétisation pour les termes convectifs des équations, alors que les termes diffusion sont automatiquement discrétisés au second ordre pour plus de précision. Il reste que la discrétisation au premier ordre procure une meilleure convergence, alors que le **"Second**

Order Upwind Scheme" est de rigueur pour les écoulements non alignés au maillage.

Il existe, également, d'autres schémas de discrétisation tels que :

Le schéma "QUICK" (Quadratic Upwind Interpolation for Convective Kinetics) : procure une meilleure précision que le schéma au second ordre pour les écoulements rotationnels et tourbillonnaires (Swirling) avec un maillage régulier. Cependant, il n'est pas recommandé pour un maillage triangulaire.

Le schéma "Power Law" : plus précis que le "First Order Upwind Scheme" pour les écoulements à très bas nombres de Reynolds (<5).



Figure II.3 : Schémas de discrétisation

II.6.6 Schémas d'interpolation de la pression sur les faces:

Dans la plupart des cas, le schéma "Standard" est acceptable pour des écoulements spécifiques. On peut choisir parmi les options suivantes:

Le schéma force de volume pondéré "Body-Force-Weighted" est recommandé pour les écoulements impliquant d'importantes forces de volume (ex. convection naturelle à haut nombre de Rayleigh).

Le schéma "PRESTO" (PREssure Staggering Option) est approprié pour les écoulements hautement tourbillonnaires à grande vitesse de rotation, ou les écoulements dans des domaines fortement courbés.

Le schéma linéaire "Linear" est disponible comme alternative dans le cas où les autres options ont des difficultés de convergence ou génèreraient des comportements non physiques.

Le schéma au "Second Ordre" est à utiliser pour les écoulements compressibles et pour améliorer la précision en écoulements incompressibles.

Si les vitesses sont définies aux nœuds d'un volume de contrôle ordinaire (comme les autres scalaires: pression et température), il est démontré qu'un champ de pression hautement non uniforme agit comme un champ uniforme sur les équations de quantité de mouvement discrétisées. La solution passe par la définition des vitesses sur une grille décalée "Staggered grid" et l'emploi d'algorithmes tels que "SIMPLE" (Semi-Implicit Method for a Pressure Linked Equations) pour assurer ce lien ou couplage entre la pression et la vitesse. La famille des algorithmes "SIMPLE" est essentiellement une procédure "d'estimation et de correction" pour le calcul de la pression sur la "grille décalée" des composantes de la vitesse.

"FLUENT" propose trois méthodes pour le couplage pression-vitesse :

Les deux premières, assez similaires, sont la méthode "SIMPLE" et la méthode "SIMPLEC" (SIMPLE Consistent). Cette dernière méthode se différencie de la première par le fait qu'on peut lui assigner un facteur de relaxation (correction) de pression proche de 1, ce qui accélère la convergence dans la plupart des cas, mais peut conduire à des instabilités de la solution.

Méthode "PISO" (Pressure-Implicit with Splitting of Operators): Cette méthode fait partie des algorithmes de la famille "SIMPLE". Elle est recommandée pour les écoulements instationnaires ou pour les maillages contenant des cellules très obliques "highly skewed".

Dans le présent travail, on utilise un modèle géométrique en 2D et les équations régissant l'écoulement en régime laminaire instationnaire. L'algorithme PISO est adopté pour le

40

calcul. Il consiste en une étape de prédiction et deux étapes de corrections. Il peut être vu comme étant une extension de SIMPLE avec des étapes de correction supplémentaires et offre un plus de garantie pour la convergence et la précision de la solution.

II.6.7 Facteurs de relaxation

En cas de difficultés de convergence et en raison de la non-linéarité des équations de transport, il est nécessaire d'opérer un changement d'une variable caractéristique du problème en accélérant ou en ralentissant d'une itération à l'autre la variation de la variable considérée. Ceci est typiquement réalisé via les processus de sous-relaxation (ralentissement) et de sur-relaxation (accélération).

Sur-relaxation : Ce processus est souvent utilisé avec la méthode de Gauss-Seidel. La méthode obtenue s'appelle alors SOR (Successive Over-Relaxation) très peu utilisée avec la méthode ligne par ligne.

Sous-relaxation: Ce processus est pratique pour les problèmes non-linéaires car il permet d'éviter la divergence des méthodes itératives en réduisant le changement de la variable considérée pendant chaque itération sous une forme simple.

Le code de calcul offre les meilleures valeurs des facteurs de relaxation pour une large gamme d'écoulements. Néanmoins, si on remarque qu'au cours du calcul les résidus commencent à s'amplifier, il est préférable de réduire ces derniers. Par contre, si on observe une convergence très lente mais sûre, on pourra les augmenter prudemment, surtout le facteur de relaxation lié à l'équation de continuité.

En générale, la convergence peut être accélérée en suivant les trois étapes suivantes :

- Fournir de meilleures conditions aux limites,
- Démarrer à partir d'une solution précédente,
- Augmenter progressivement les facteurs de sous-relaxation.

Les paramètres de sous relaxation permettent d'accélérer la convergence du calcul. Dans notre cas, les valeurs de ces paramètres sont présentées sur le tableau II.4.

Tableau II.4 Paramètres de sous relaxation

41

| Variables | Facteurs de Relaxation |
|-----------------------|------------------------|
| Pression | 0.7 |
| Densité | 1 |
| Forces de volume | 1 |
| Quantité de mouvement | 0. 7 |

II.6.8 Méthodes d'interpolations (Gradients)

Les gradients des variables sont nécessaires pour évaluer les flux diffusifs, les dérivées de vitesse et pour des schémas de discrétisation d'ordre élevé.

Les gradients des variables aux centres des faces des mailles peuvent être déterminés en utilisant trois approches:

Green-Gauss cell-Based : Méthode par défaut et la solution peut mener à une fausse diffusion.

Green-Gauss Node-Based : Méthode plus précise et minimise la valeur de la fausse diffusion. Elle est recommandée pour des maillages tri et tétradimensionnels.

Least-Squares cell-Based: Cette méthode est recommandée pour des maillages polyédriques.

Les gradients des variables sur les faces des mailles sont calculés en utilisant une série de Taylor multidimensionnelle.

II.6.9 Le pas temporel (écoulements instationnaires)

A chaque étape de calcul, le solveur réitère jusqu'à la convergence avant d'avancer au pas suivant. L'initialisation de la solution définit la solution initiale et doit être réaliste. Ces étapes sont répétées avec une précision de 1/1000 jusqu'à ce que l'erreur dans chaque volume de contrôle soit réduite à la valeur souhaitée.

Pour le solveur, basé sur la pression, le pas temporel est défini dans le panneau ITERATE où:

- Δt doit être assez petit pour résoudre les caractéristiques dépendantes du temps et s'assurer que la convergence est atteinte dans le nombre d'itérations maximum défini pour chaque pas.
- L'ordre de grandeur du pas temporel peut être estimé par :
- L'estimation du pas de temps peut également être choisie de sorte que les caractéristiques instationnaires de l'écoulement puissent être résolues (par exemple écoulement connu au cours d'une période).

II.7 Maillage sous Gambit :

La création de la géométrie ainsi que le maillage s'est fait sous le progiciel **"Gambit".** Ce mailleur propose des solutions étendues pour les géométries les plus compliquées et permet de réaliser des géométries en **2D** ou **3D** et de construire le maillage. Il génère des fichiers avec une extension ***.msh pour FLUENT.** [20]

Gambit regroupe trois fonctions essentielles:

- Définition de la géométrie du problème (construction si la géométrie est simple ou bien import de la géométrie CAO),
- Maillage et vérification du maillage,
- Définition des frontières (Type de conditions aux limites) et définition des domaines de calcul.

Dans notre cas, la génération du maillage constitue une phase importante sachant que la précision et l'exactitude des résultats numériques en dépendent. Sous Gambit, on peut choisir les trois types de maillage suivants :

II.7. 1. Maillage structuré (quadra/hexa)

Il est facile à générer en utilisant une géométrie multi bloc et présente les avantages suivants :

 Economique en nombre d'éléments avec un nombre inférieur de mailles par rapport à un maillage non structuré équivalent. Réduit le taux des erreurs numériques car l'écoulement se trouve aligné avec le maillage.

Inconvénients :

- Difficile à générer dans le cas d'une géométrie complexe.
- Qualité du maillage pas toujours satisfaisante pour les géométries complexes.

II.7 .2. Maillage non structuré (tri/tétra.)

Les éléments de ce type de maillage sont générés arbitrairement sans aucune contrainte quant à leur disposition.

Avantage :

- Peut être généré sur une géométrie complexe tout en gardant une bonne qualité des éléments.
- Les algorithmes de génération de ce type de maillage (tri/tétra) sont très automatisés.

Inconvénients :

- Très gourmand en nombre de mailles comparativement au maillage structuré.
- Engendre des erreurs numériques (fausse diffusion), généralement, plus importantes comparativement au maillage structuré.

II.7.3 Maillage hybride

C'est un maillage généré par un mélange d'éléments de différents types, triangulaires ou quadrilatéraux en 2D, tétraédriques, prismatiques ou pyramidaux en 3D. Ce maillage est caractérisé par la combinaison entre les avantages du maillage structuré et ceux du maillage non structuré.

| Structuré | | Non structuré |
|-----------|--|---------------|

Figure II.4: Maillage structuré et non structuré

II.8 La méthode enthalpique

Pour résoudre le problème du changement de phase dans la croissance cristalline, Fluent utilise la méthode enthalpique ou enthalpy-porosity method [21,22,23]. V.R.Voller [21] a développé cette méthode pour résoudre numériquement les problèmes de changement de phase (solidification ou fusion) couplés à des phénomènes de convection et/ou diffusion. Au lieu de travailler avec une grille décalée, une grille fixe est utilisée avec une approche enthalpique qui ne nécessite pas une condition à l'interface de croissance.

FLUENT offre les fonctionnalités suivantes pour la modélisation de la solidification et de la fusion:

- Résoudre le problème solidification et/ou fusion en métaux purs, ainsi que dans les alliages binaires.
- Modélisation des processus de coulée continue (i.e., traction "de matière solide en dehors du domaine).
- La modélisation de la résistance thermique de contact entre le matériau solidifié et des parois (par exemple, la présence d'un entrefer).
- Post-traitement des quantités liées à la solidification / fusion (c.-à-d fraction liquide et des vitesses de traction).

Ces capacités de modélisation permettent au logiciel Fluent de simuler un large éventail de problèmes solidification/fusion, y compris la fusion, la congélation, la croissance cristalline, et la coulée continue.

II.8 .1 Limitations

Les restrictions suivantes s'appliquent au modèle de la solidification/fusion dans FLUENT:

- Le modèle solidification/fusion peut être utilisé uniquement avec le solveur segregated (séparé), il n'est pas disponible avec les solveurs couplés.
- Le modèle solidification/fusion ne peut pas être utilisé pour les écoulements compressibles.
- On ne peut pas modéliser le transport des espèces ou tout autre type de réaction de flux en conjonction avec le modèle solidification/fusion.
- Sur les modèles multiphasiques (VOF, mixture, et eulérien), seul le modèle VOF peut être utilisé avec le modèle solidification / fusion.
- On ne peut pas spécifier les propriétés des matériaux séparément pour les matières solides et liquides.

II.8.2 Théorie du Modèle Solidification/Fusion

L'interface liquide-solide est considérée comme étant une zone poreuse dont la porosité est égale à la fraction liquide. Ainsi la porosité des cellules liquides est égale à 1, et celle des cellules solides est égale à 0.

Cette méthode tient compte de la chaleur latente de solidification en attribuant dans l'équation de l'énergie, à chaque cellule, une valeur de cette chaleur correspondante à la température de la cellule.

Au cours du changement de phase, la chaleur latente correspondante à la cellule est ajustée pour tenir compte de son évolution. Cet ajustement est pris en compte dans un terme source S_T ajouté à l'équation de l'énergie :

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla T = \alpha \Delta T + S_T$$

L'avantage de cette technique est qu'on n'a pas besoin d'une condition explicite à l'interface de croissance pour garantir la conservation de l'énergie.

Un autre terme source est ajouté aux équations de Navier Stokes pour annuler la vitesse dans les cellules solidifiées :

$$\frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \vec{V}.\nabla \vec{V} = \upsilon \Delta \vec{V} + S_V.\vec{V}$$

Dans le cas de la croissance d'un matériau pur, A.D.Brent et al. [23] ont proposé les formules suivantes pour les termes sources :

$$S_{T} = \frac{L}{Cp} \frac{df_{l}}{dt}$$
$$S_{V} = -A_{mush} (l - f_{l})$$

Où f_l est la fraction liquide : pourcentage du volume de la cellule qui est en état liquide

L est la chaleur latente de solidification.

 A_{mush} est une constante caractéristique de l'interface de croissance, elle doit être suffisamment élevée pour annuler les vitesses dans les cellules à l'état solide.

Dans les cellules liquides $S_v = \theta$, on retrouve donc les équations de Navier Stokes ordinaires. Au niveau des cellules solides $S_T = \theta$, la vitesse s'annule, donc il ne reste que l'équation de transfert de chaleur dans le solide (sans terme source).

II.9 Conclusion :

Dans ce chapitre on a procédé à la mise en équations hydrodynamiques et thermiques gouvernant le problème étudié ainsi que les conditions aux limites associées.

On tente, par la suite, de résoudre le problème par approche numérique en utilisant le logiciel Fluent.

On tentera de mettre en évidence les mécanismes qui interviennent dans la croissance HEM au niveau le champ thermique et du champ dynamique afin de mieux comprendre le phénomène. Ensuite on essaie d'établir les conditions et critères nécessaires pour obtenir un cristal de bonne qualité.



III.1 Introduction

La méthode HEM est un procédé de croissance vertical, en creuset, la chaleur latente de solidification étant extraite de la partie inférieure du lingot grâce un échangeur de chaleur. Il est indispensable de connaître et de contrôler la forme de l'interface de solidification car elle influence la qualité de la croissance cristalline, et donc la performance des cristaux. L'interface plane est très favorable, elle conduit à un cristal homogène chimiquement. Il est obtenu en extrayant la chaleur de façon uniforme par le fond du creuset.

Afin d'obtenir un cristal de bonne qualité, notre travail consiste a faire varier le rayon de l'échangeur ensuite analyser son effet sur la cristallisation du saphir.

III.2 Maillage du domaine

Dans le but d'avoir des résultats indépendants du maillage, On a fait une étude du maillage (grid dependency) pour obtenir le maillage adéquat. Ce dernier va nous permettre d'avoir de bons résultats en un temps raisonnable. On a utilisé le logiciel de maillage Gambit 2.0 pour partitionner le domaine de calcul. Après avoir testé plusieurs grilles (Tableau III.1) et tracé les résultats en fonctions du nombre de nœuds (Figure III.1), on a opté pour un maillage uniforme de 160*120 (Figure III.2) qui donne des résultats indépendants du nombre de nœuds.

| Maillage | Nombre de nœuds | Pression maximale | Fonction de courant |
|----------|-----------------|-------------------|--|
| | | (Pa) | maximale (Kg. s ⁻¹ * 10 ⁻⁶) |
| 20*15 | 336 | 0.4462 | 3.7075 |
| 40*30 | 1271 | 0.2505 | 2.4528 |
| 80*60 | 4941 | 0.1318 | 2.1164 |
| 100*75 | 7676 | 0.1065 | 2.0768 |
| 120*90 | 11011 | 0.0893 | 1.5016 |
| 160*120 | 19481 | 0.0675 | 1.9810 |
| 200*150 | 30351 | 0.0543 | 1.9508 |





Figure III.1 Variations de la pression maximale et de la fonction courant maximale pour différents maillage





III.3 Résultats de la simulation numérique:

Dans ce qui suit, on fait varier le rayon de l'échangeur pour voir son effet sur différentes grandeurs caractéristiques de la croissance cristalline du saphir, à savoir, l'interface de

croissance cristalline, la température, la pression, la fonction courant et les composantes radiale et axiale de la vitesse. Les valeurs des rayons étudiées sont de $R_e=0.10.R_c$, $0.25.R_c$, $0.50.R_c$ et $0.75.R_c$. Ces valeurs correspondent respectivement aux facteurs d'aspect radial A_R = 10%, 25%, 50% et 75%. Où R_e , R_c et A_R représentent respectivement les rayons de l'échangeur, du creuset et le facteur d'aspect radial.

III.3.1 Effet des dimensions de l'échangeur sur le front de solidification :

Les figures III.3, III.4, III.5 et III.6 donnent la distribution de la température et la forme du front de solidification à t=5s, 50s, 100s et 180s respectivement pour les différentes valeurs du facteur d'aspect radial considérées.













 $A_{R} = 75\%$

Figure III.3 Distribution de la température et le front de solidification à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial









 $A_R = 50\%$







 $A_R = 10\%$







Figure III.5 Distribution de la température et le front de solidification à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial











 $A_R = 75\%$



Le front de solidification sépare deux régions de natures différentes : solide et liquide. Sur l'interface de croissance, la fraction liquide est de 0.5. Dans le solide (en couleur bleue) la valeur de la fraction liquide est de 0. Dans le liquide (en couleur rouge) elle est égale à 1.

On remarque que la forme du front de solidification est sphérique pour les faibles rayons de l'échangeur (A_r =10%). Au fur et à mesure que le rayon de l'échangeur augmente on voit que la forme de l'interface de solidification devient plane et presque parallèle à la base du creuset (R_E =75%).

En avançant dans le temps, on note que pour les faibles rayons de l'échangeur le front de solidification se déplace lentement en gardant toujours la forme sphérique (10%,25%). Cependant, pour les grandes valeurs du facteur d'aspect on voit un avancement rapide (50%,75%).

Dans le cas où le rayon de l'échangeur est grand (A_R =75%) à t=50s (figure III.4), presque la moitié liquide s'est solidifié et la forme de l'interface commence à devenir plane et parallèle à la base du creuset par contre l'échangeur de rayon (25%) moins qu'un quart du saphir liquide devient cristal et l'interface à une forme hémisphérique.

À t=100s, on observe que l'avancement est lent pour les faibles rayons de l'échangeur avec une interface de solidification sphérique. L'interface garde une allure plane et parallèle à la base du creuset pour les grandes valeurs de facteur d'aspect, ce qui montre une croissance uniforme et indiquant une bonne qualité du cristal produit.

Pour l'échangeur de faible rayon on voit que même pas la moitié du liquide s'est solidifié à t=180s avec une interface incurvée par contre pour les échangeurs de grandes valeurs on remarque que le creuset en saphir s'est entièrement cristallisé, c'est le cas surtout pour l'échangeur de rayon Re=75% R_c. Pour ce dernier, la solidification totale du liquide sera obtenue au bout de quelque seconde avec un front de croissance quasiment linéaire, ce qui est favorable pour la qualité du lingot du saphir produit, car ce lingot va être découpé par la suite en plaquettes pour des utilisations industrielles.

Pour avoir plus de précision sur la vitesse de la croissance cristalline dans les différents cas étudiés, on a tracé les courbes de la figure III.7. Pour chaque point, on a calculé la position qui correspond à l'intersection entre l'interface de croissance et l'axe de symétrie. Les

54

courbes tracées ont quasiment la même allure, elles croient en exponentielle. Cependant, l'avancement du front de solidification en fonction du temps pour différents facteurs d'aspects montre une vitesse très élevée pour l'échangeur de rayon élevé (A_R =75%) tandis qu'elle est trop réduite pour les le cas des échangeurs à faibles dimensions (A_R =10%).



Figure III.7 : l'avancement du front de solidification en fonction du temps pour différents facteurs d'aspects

III.3.2 Effet des dimensions de l'échangeur sur la température

La température la plus basse est située au niveau de l'échangeur, elle est croissante en fonction de la hauteur du creuset. On observe que la forme des isothermes est conforme avec la forme du front de solidification pour tous les cas étudiés. On note que l'isotherme correspondante à la température de fusion (dans notre cas c'est le saphir T_f=2323.15K) coïncide toujours avec l'interface de croissance cristalline correspondante à la valeur de la fraction liquide 0.5.

Au début de la croissance cristalline, les lignes isothermes sont très proches les unes des autres au voisinage de l'échangeur, elles deviennent distantes en s'éloignant. On note ici le développement d'une couche limite thermique induite par l'échange de chaleur par refroidissement. Au dessus du front de solidification la température est constante, cela est dû à l'absence d'échange thermique.

Au fur et à mesure que le cristal de saphir croît, la couche limite disparaît et les isothermes s'éloignent les unes des autres surtout pour les échangeurs de grandes dimensions pour lesquels les lignes isothermes deviennent presque parallèles à la base du creuset. Lorsque le rayon de l'échangeur augmente le refroidissement sera plus rapide ainsi que l'avancement de l'interface de solidification, cela est dû à la grande surface d'échange qui engendre une extraction d'une grande quantité de chaleur.

Pour avoir plus de précision sur l'évolution de la température on trace les courbes de la figure III.8 donnant l'évolution de celle-ci sur l'axe de symétrie.







Figure III.8 Variation de la température en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial (A_R =10%) et (A_R =75%) à t=5s, 50s, 100s et 180s





 $A_R = 50\%$

 $A_R = 75\%$

Figure III.9 Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial













Figure III.10 Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=50s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial









 $A_R = 50\%$

 $A_R = 75\%$

Figure III.11 Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial









 $A_R = 50\%$

 $A_{R} = 75\%$

Figure III.12 Distribution de vitesses axiales (à gauche) et radiales (à droite) à t=180s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial

III.3.3 Effet des dimensions de l'échangeur sur les composantes de la vitesse :

Les figures III.9, III.10, III.11 et III.12 donnent la distribution de la vitesse axiale et la vitesse radiale à t=5s, 50s, 100s et 180s respectivement pour les différentes valeurs du facteur d'aspect radial considérées.

Dans les contours de la vitesse radiale, on note la présence de deux vortex, le premier à intensité positive se situant prés de l'interface de croissance et le deuxième à intensité négative dans la partie supérieure du creuset. Le vortex positif se déforme suivant la forme de l'interface de croissance. Au cours du temps les dimensions de ces vortex diminuent.

Pour la vitesse axiale, un vortex d'intensité positive est situé prés de la paroi du creuset et un demi-vortex à intensité négative dont le centre est situé sur l'axe de symétrie. Les valeurs des vitesses radiale et axiale sont nulles dans la partie solide.

Au cours du temps, la vitesse axiale subit plus de changement par rapport à la vitesse radiale, cela est dû à l'avancement du front de solidification que se fait axialement.

III.3.4 Effet des dimensions de l'échangeur sur la fonction courant :

Les figures III.13, III.14, III.15 et III.16 donnent la distribution de la pression et des lignes du courant à pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial à t=5s, 50s, 100s et 180s.

On note que la fonction courant est nulle sous l'interface de solidification ce qui correspond à la partie solide. Cependant, les lignes de courant forment des tourbillons dans la partie liquide. Dans chaque résultat, on donne l'intensité maximale de la fonction courant. Ces tourbillons se déforment en épousant la forme de l'interface. Au cours du temps, ils se déplacent vers la partie supérieure du creuset et leurs tailles s'affaiblie car le saphir devient progressivement cristallin. On note ici que les valeurs de la fonction courant sont trop faibles car dans ce procédé de croissance il n'existe pas des parties mobiles, et pas de convection naturelle comme le processus de Czochralski décrit dans le premier chapitre.









 $A_R = 50\%$

 $A_R = 75\%$

Figure III.13 Distribution de pression et lignes du courant à t=5s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial





 $A_R = 50\%$

 $A_R = 75\%$

Figure III.14 Distribution de pression et lignes du courant à t=50s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial





 $A_R = 25\%$
Chapitre III : résultats et discussions



Figure III.15 Distribution de pression et lignes du courant à t=100s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial









 $A_{R} = 50\%$

 $A_R = 75\%$

Figure III.16 Distribution de pression et lignes du courant à t=180s pour différentes valeurs du facteur d'aspect radial

III.3.4 Effet des dimensions de l'échangeur sur la pression :

Au début du processus de la croissance cristalline (t=5s), on note une forte de concentration des lignes isobares prés des échangeurs surtout pour les cas des faibles rayons et une distribution quasi-uniforme des pressions loin des échangeurs.

On note que pour tout les cas étudiés, la pression est élevée prés de l'échangeur et elle diminue en son voisinage. Ensuite, elle augmente progressivement en allant vers la paroi supérieure du creuset. On remarque aussi que les lignes isobares sont très concentrées prés de l'échangeur surtout pour les faibles valeurs du facteur d'aspect radial et elles sont distantes et uniformément réparties en s'éloignant de la base. Autrement dit, le gradient de pression est très fort prés de l'échangeur, il s'affaiblie loin de celui-ci. Cette variation de la pression et des gradients de pression sont provoqués essentiellement par le transfert de chaleur et le changement de phase liquide-solide au voisinage de l'échangeur.

En avançant dans le temps, on note que pour les cas des échangeurs à faible rayons (10% et 25%), la forme des lignes isobares loin de l'échangeur changent de linéaires parallèles à la base à une forme non linéaire. Elles s'enroulent sur elles-mêmes donnant naissance à des lignes isobares de forme elliptiques symétriques par rapport à l'axe. Par contre prés de l'échangeur les lignes isobares gardent la même allure. Le changement de la forme des isobares et l'apparition des isobares elliptiques est due principalement à la forme sphérique du front de solidification. Cela est justifié par l'absence de cette forme d'isobares pour le cas des échangeurs à grandes dimensions (50% et 75%) qui correspond à une croissance à interface quasiment plane.

À fur et à mesure que le front de solidification avance, on constate une diminution de la concentration des lignes isobares prés des échangeurs de faible rayon (10%, 25%). Cependant, cette diminution de la concentration des lignes isobares est plus importante pour les cas des grandes valeurs du facteur d'aspect.

Pour avoir plus de précision sur l'évolution de la pression en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial extrêmes $A_R=10\%$ et $A_R=75\%$ on trace les courbes montrées dans les figures III.17, III.18 et III.19.

64

Les courbes tracées montrent que la pression devient une fonction monotone, c.à.d. elle décroit en allant de l'échangeur vers la paroi supérieure du creuset. Le pic présent au début de la croissance n'existe plus maintenant surtout pour le cas des grands rayons de l'échangeur. Cela est dû au fait que la proportion du volume du saphir cristallisée est grande.



à t=50s pour A_R =10%

à t=50s pour A_R =75%

Chapitre III : résultats et discussions



à t=180s pour A_R=10%

à t=180s pour A_R =10%







Figure III.18 : Variation de la pression et de la température en fonction de la position sur l'axe pour le facteur d'aspect radial A_R =10% à t= 400s



Figure III.19 : Variation de la pression en fonction de la position sur l'axe pour les valeurs du facteur d'aspect radial (A_R =10%) et (A_R =75%) à t=5s, 50s, 100s et 180s (portées dans les mêmes courbes)

III.4 Conclusion :

Après avoir observé et analysé les résultats obtenus pour les différentes valeurs du rayon de l'échangeur dans le but d'avoir un cristal de bonne qualité. Dans le domaine de croissance cristalline cette bonne qualité requiert une forme d'interface de solidification la plus plane possible et une vitesse de croissance la plus constante possible, et dans notre travail la géométrie qui correspond a ces critères c'est l'échangeur de grande valeur du facteur d'aspect radial (A_R =75%).

Alors quand la dimension de l'échangeur est grande la qualité de saphir obtenu sera meilleure. Cependant, une grande surface d'échange nécessite un cout de croissance cristalline élevée donc on propose d'étudier l'influence des autres paramètres de la croissance, à savoir, la température de l'échangeur, la géométrie du creuset, le débit du liquide de refroidissement (Hélium) etc.

Conclusion générale :

La recherche des techniques garantissant l'obtention d'un cristal de bonne qualité reste une préoccupation constante dans le domaine de la croissance cristalline.

L'avantage principal de la méthode HEM étudié dans ce mémoire vient du fait que le matériau froid est en bas et le bain chaud est en haut, minimisant ainsi les effets néfastes de la convection. Le champ de température est plus stable par rapport aux autres techniques de croissance ce qui peut minimiser le sur-refroidissement, et assurer une croissance uniforme donnant un cristal parfait et homogène chimiquement.

Pour les faibles rayons de l'échangeur la forme du front de solidification est sphérique et l'avancement de la croissance cristalline est lent. L'interface solide-liquide est plane et presque parallèle à la base du creuset pour des grandes dimensions de l'échangeur et la vitesse de croissance est élevée. La qualité des cristaux (monocristallinité ; faible taux de défauts ; homogénéité de composition....) requiert une forme d'interface de solidification la plus plane possible et une vitesse de croissance la plus constante possible.

Cependant, pour une forme convexe de l'interface bain cristal, les impuretés se rassemblent sur les cotés du cristal et non pas au centre. Un cristal de saphir de forme hémisphérique peut être utilisé pour des applications militaires.

La forme des isothermes suit toujours la forme du front de solidification et l'isotherme correspondante à la température de fusion coïncide avec l'interface de croissance cristalline. Des forts gradients de température ont été trouvés au voisinage de l'échangeur au début de la croissance cristalline donnant naissance à une couche limite thermique induite par l'échange de chaleur par refroidissement. Cette dernière disparaît en avançant dans le temps.

Lorsque le rayon de l'échangeur augmente le refroidissement est plus rapide ainsi que l'avancement de l'interface de solidification, cela est dû à la grande surface d'échange qui engendre une extraction d'une grande quantité de chaleur.

Le champ de pression nous a fournit plusieurs indications. On note ici que ce paramètre n'a pas été étudié auparavant par les spécialistes du domaine de la croissance cristalline à notre connaissance. Prés de l'échangeur, le gradient de pression est très fort au début de la

69

croissance, il s'affaiblie loin de celui-ci. Cette variation de la pression et des gradients de pression sont provoqués essentiellement par le transfert de chaleur et le changement de phase liquide-solide au voisinage de l'échangeur. Quand la proportion du volume du saphir cristallisée devient grande la pression décroit axialement.

Tous ces résultats, ainsi que beaucoup d'autres obtenus ou en cours de traitement illustrent la richesse des phénomènes rencontrés à travers cette étude (les différentes forme de front de la solidification ; la répartition des pressions et des températures...), malgré la difficulté du problème appréhendé. Ceux-ci font appel à une série de futurs travaux complémentaires afin de pouvoir répondre aux nombreuses questions soulevées à travers cette étude.

A la lumière de ces premiers résultats, il est souhaitable, voir nécessaire, de compléter ces essais préliminaires, par un deuxième volet consacré à la variation des autres paramètres de la croissance cristalline tels que la température de l'échangeur; le débit du liquide de refroidissement et la géométrie de creuset. En outre, on propose d'intégrer des sousbroutines (UDF, User Define Functions) afin de donner des propriétés thermophysiques différentes pour le solide et le liquide.

Il convient, également, d'approfondir la présente étude en considérant l'aspect tridimensionnel du procédé et de prendre en considération toutes les parties constituantes du système, liquide, solide ou gazeuse afin d'approcher les conditions réalistes de la croissance et donc avoir les critères nécessaires à l'obtention d'un cristal de bonne qualité.

Références bibliographique

[1] Thèse doctorat Arlette OCAFRAIN, Université Bordeaux France(1995)

[2] A .Verneuil, Annales de Chimie et de Physique 8e série III (1904), 20.

[3] Growth and characterization of non-linear optical materials. Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials 20, 1/2 (1990)

[4] Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB-CNRS, UPR 9048, Université de Bordeaux1)

[5] Thèse doctorat Mme FAIZA MOKHTARI épouse MERAH USTHB, Alger (2010)

[6] C.P.Khattak , F.Schmid, Silicon processing for Photovoltaics II p. 153 (1987).

[7] C.P.Khattak , F.Schmid, J. Cryst. Growth Vol. 255 p. 572 (2001)

[8] J.Dong , P.Deng, J. Cryst. Growth Vol. 261 p. 514 (2004)

[9] A.Oçafrain, J.P.Chaminade, O.Viraphong, R.Cavagnat, M.Couzi et M.pouchard, J. Cryst. Growth Vol. 166 p. 414 (1996)

[10] V.Peters, A.Boltz, K.Petermann, G.Huber, J. Cryst. Growth Vol. 237 p. 879 (1996)

[11] J.H.Wang, D.H.Kim, J.S.Huh, J. Cryst. Growth Vol. 174 p. 13 (1997)

[12] C.W.Lu, J.C.Chen, L.J.Hu, Mod. Sim. Mat. Sci. and Eng. Vol. 10 p. 147 (2002)

[13] J.C.Chen, C.W.Lu, J. Cryst. Growth Vol. 266 p. 239 (2004)

[14] J.M.Kim, Y.K.Kim, Solar Energy Materials & Solar Cells, Vol. 81 p. 217 (2004)

[15] A.Ahmanache, N.Zeraibi, E.Arquis, 5th International Workshop on Modeling in Crystal

Growth (IWMCG-5). September 10-13, 2006, Bamberg (Germany)

[16] H. Rahab, D. Ouadjaout, A. Manseri, O.Viraphong and J.P. Chaminade, Journal of Crystal Growth (2007), doi:10.1016/j.jcrysgro.2006.12.059

[17] H.B. Xiong, Y. Ma and L.L. Zheng, J. of Crys.Growth (2007)

DOI:10.1016/j.jcrysgro.2006.12.014

[18] Etude minéralogique des saphirs du Sioulot, du Mont Coupet et du Menoyre

[19] Thèse magister LEBBI Mohamed, Ecole militaire polytechnique Alger (2008)

- [20] Thèse magister LALAOUA Adel, Ecole militaire polytechnique Alger (2010)
- [21] V.R.Voller, C.Prakash, International J. Heat Mass Trans. Vol.30 No 8 p.1709 (1987).
- [22] V.R.Voller, C.R.Swaminathan, Numerical Heat Transfer, Part B Vol.19 p.175 (1991)
- [23] A.D.Brent, V.R.Voller, K.J.Reid, Num. Heat Trans., Vol.13 p.297 (1988)