

# Simulation numérique par une approche porosité–enthalpie de la convection thermo-solutale dans une ampoule de croissance cristalline

André Lamazouade\*, Mohammed El Ganaoui, Dominique Morvan, Patrick Bontoux

Irphe, UMR 6594 CNRS, 38 rue J.-Curie, Technopôle de Château-Gombert, 13451 Marseille cedex 20, France

(Reçu le 3 juin 1998, accepté le 8 février 1999)

*Abridged English version at the end of the text*

**Abstract** — Numerical simulation of thermo-solutal convection during Bridgman crystal growth. The vertical Bridgman–Stockbarger technique is a directional solidification technique. The material is loaded into an ampoule, and solidified by varying the temperature field with a translation of the ampoule through a furnace. The hydrodynamic is governed by both solutal and thermal convective instabilities. The resolution of the problem uses an homogenised formulation of the conservation equations, the enthalpy approach, issued from classical mixture theories. The energy equation is formulated with the enthalpy variable. Solving the conservation equations in the whole domain allows not to track the interface, as its shape is not needed in the resolution. The numerical simulation is done using a finite-volume method. We present here studies on two type of Bridgman configurations. The first one is an inverted Bridgman configuration of a pure material. The results show the interaction between the interface and the hydrodynamic of the unsteady melt. The second is a solidification of a binary alloy, where the temperature gradient has a stabilising effect. The results show the influence of the convection on the distribution of dopant in the solidified crystal. © Elsevier, Paris.

vertical Bridgman–Stockbarger technique / solutal and thermal convective instabilities / enthalpy approach / mixture theories / finite-volume method

**Résumé** — La technique de Bridgman–Stockbarger est une technique de solidification dirigée. Le matériau, initialement fondu au sein de l'ampoule de croissance, est solidifié par déplacement d'un gradient de température. L'hydrodynamique dans le bain fondu est gouvernée par la compétition entre des instabilités thermiques et solutales. La mise en équations du problème utilise une formulation homogénéisée des équations de conservation, la formulation enthalpique, issue de la théorie des mélanges. L'équation de l'énergie utilise la variable enthalpie. La résolution des équations sur tout le domaine permet d'utiliser un maillage fixe, sans avoir à connaître le profil de l'interface a priori. La simulation numérique utilise une méthode de volumes finis. Nous présentons ici les études de deux types de configuration de solidification. La première porte sur la solidification d'un matériau pur en configuration de Bridgman chauffée par le bas. Les résultats montrent l'interaction entre les déformations de l'interface et le bain fondu instationnaire. La deuxième porte sur la solidification d'un alliage binaire, où le gradient de température a un effet stabilisant (chauffage par le haut). Les résultats montrent l'influence de la convection sur l'inhomogénéité de dopant dans le cristal solidifié. © Elsevier, Paris.

technique de Bridgman–Stockbarger/ instabilités thermiques et solutales / formulation enthalpique / théorie des mélanges / méthode de volumes finis

## Nomenclature

$c$	capacité thermique massique . . . . .	$J \cdot K^{-1} \cdot kg^{-1}$	$\tilde{g}$	constante gravitationnelle ( $\tilde{g} = 9,81m^2 \cdot s^{-1}$ )	
$D$	coefficient de diffusion solutale . . . . .	$m^2 \cdot s^{-1}$	$K$	perméabilité de Karman-Kozeny . . . . .	$m^2$
$k$	conductivité thermique . . . . .	$K^{-1}$	$L$	longueur de l'ampoule . . . . .	$m$
$h$	enthalpie . . . . .	$J$	$Le$	nombre de Lewis	
$f$	fraction massique . . . . .	wt %	$L_f$	chaleur latente de fusion . . . . .	$J \cdot kg^{-1}$
$g$	fraction volumique . . . . .	$m^{-3}$	$l_s$	longueur solutale . . . . .	$m$
			$p$	pression . . . . .	$m^2 \cdot s^{-2}$
			$Pr$	nombre de Prandtl	

\* Correspondance et tirés à part.  
lamazou@irphe.univ-mrs.fr

$Ra$	nombre de Rayleigh	
$Sc$	nombre de Schmidt	
$Ste$	nombre de Stefan	
$t$	temps .....	s
$T$	température .....	K
$v$	vitesse du mélange .....	$m \cdot s^{-1}$
$V_0$	vitesse de tirage .....	$m \cdot s^{-1}$
$x$	coordonnée spatiale .....	m

*Symboles grecs*

$\beta_S$	coefficient d'expansion solutal .....	wt % <sup>-1</sup>
$\beta_T$	coefficient d'expansion thermique .....	K <sup>-1</sup>
$\mu$	viscosité dynamique .....	$m^2 \cdot s$
$\rho$	masse volumique .....	$kg \cdot m^{-3}$
$\psi$	fonction de courant .....	$m^2 \cdot s^{-1}$

*Indices*

$\alpha$	constituant
e	valeur à l'eutectique
f	fusion
l	liquide
s	solide

## 1. INTRODUCTION

Le problème de changement de phase suscite beaucoup d'intérêts, à la fois pour son aspect fondamental et pour ses nombreuses applications pratiques, en particulier dans les systèmes de stockage d'énergie et dans l'industrie métallurgique. Les mouvements convectifs dans la phase liquide sont couplés aux transferts de chaleur, et donc au taux de fusion ou de solidification et régissent la cinétique de l'interface et sa déformation.

On retrouve cet aspect dans les travaux expérimentaux de Bénard et al. [1], ainsi que dans les travaux numériques de Gobin et al. [2] ou de Lacroix et al. [3] concernant la fusion de substances confinées dans des cavités rectangulaires.

La difficulté essentielle rencontrée lors de la modélisation numérique d'un problème de changement de phase réside dans le fait que les relations de transmission à l'interface de solidification s'expriment sur une frontière libre, dont la position est une inconnue du problème [4, 5]. Les techniques naturelles consistent à travailler sur un maillage qui suit le front de solidification ; c'est le cas des techniques de maillage variable ou de celles basées sur les transformations de coordonnées. La transformation la plus connue est celle de Landau, utilisée par Lacroix avec une approximation de type éléments finis [6], par Ouazzani et al. [7] avec une approche spectrale, ou avec une approximation de type volumes finis [8]. Ces techniques sont souvent coûteuses en temps de calcul et lourdes de mises en œuvre.

La formulation utilisée ici pour tenir compte des deux phases solide et liquide avec une interface déformable est

une formulation d'homogénéisation de type enthalpie-porosité. Elle consiste à traiter l'ensemble du problème suivant un domaine de calcul regroupant l'ensemble des constituants et des phases présents dans le système. En traitant ce milieu complexe comme un milieu continu équivalent, les équations de conservation (masse, énergie, quantité de mouvement) sont résolues pour des quantités moyennes [9, 10, 11].

Cette approche entraîne la modélisation des termes d'interaction qui devront être évalués à partir de considérations physiques. En particulier, si les vitesses de solidification restent faibles, les fractions massiques pourront être évaluées à partir du diagramme de phase à l'équilibre (voir *Annexe*). Les termes d'interaction entre les phases liquide et solide seront modélisés en considérant que le comportement du fluide entre les microstructures de solidification est comparable à celui d'un fluide visqueux dans un milieu poreux. Le principal avantage offert par cette méthode est qu'elle ne nécessite pas d'imposer des conditions de transmission à l'interface de solidification, puisque ces conditions sont implicitement prises en compte au niveau de la formulation des variables. Pour la solidification, plusieurs travaux ont déjà été effectués dans le domaine de la croissance cristalline [12, 13].

L'objectif de cette étude est de mettre en évidence l'aptitude de la méthode enthalpique à saisir des dynamiques complexes en présence de changements de phase, aussi bien que les effets d'importants gradients de concentration localisés. L'implémentation d'un schéma numérique Ultra Quick de calcul des termes convectifs a permis d'obtenir des résultats qui se trouvent en accord avec ceux donnés par des codes spectraux.

Le procédé de croissance de Bridgman–Stockbarger étudié ici est une technique de solidification dirigée qui consiste à isoler un matériau initialement fondu dans une ampoule, puis à le solidifier par translation à travers un gradient de température contrôlé au sein d'un four. Nous étudions dans un premier temps les effets de la convection thermique sur la déformation de l'interface lors de la solidification dirigée d'un métal pur. Lors de la solidification d'alliages, les mouvements de convection d'origine thermique ou solutale peuvent modifier de manière sensible la répartition de soluté au moment où le matériau est en phase de solidification [14]. Nous étudions les effets de la convection solutale sur la répartition de dopant lors de solidification d'un alliage plomb–thallium.

Ces études montrent les effets de dynamiques complexes dans le bain fondu sur la solidification de matériaux. Dans la configuration Bridgman inverse, la thermique a alors un effet déstabilisant et est à l'origine de régimes convectifs en interaction avec l'interface de solidification. Dans le cas de l'alliage binaire, on considère la configuration Bridgman normale. Le gradient thermique a un effet stabilisant et les gradients de concentration au voisinage de l'interface de solidification sont à l'origine de régimes convectifs perturbant l'homogénéité du dopant dans le cristal solidifié.

## 2. FORMULATION MATHÉMATIQUE

La méthode enthalpique permet d'obtenir, en se basant sur la théorie des mélanges [9], une formulation homogénéisée des équations de conservation de la masse, de l'énergie et de la quantité de mouvement pour l'ensemble des phases et des constituants présents dans le système. On suppose que :

- chaque phase (liquide ou solide) est continue et son comportement mécanique peut être assimilé à un fluide newtonien (les contraintes seront nulles et la viscosité infinie dans la phase solide) ;
- le milieu continu est saturé (aucun vide ne peut se former au cours du changement de phase) ;
- la vitesse de solidification est suffisamment faible pour que l'équilibre thermodynamique soit atteint ; l'état du mélange pourra être évalué à partir de la température et de la composition moyenne en fonction du diagramme de phase à l'équilibre.

Les équations de conservation moyennées s'écrivent alors de la manière suivante :

- continuité :

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho + \frac{\partial}{\partial x_j} \rho v_j = 0$$

quantité de mouvement :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho v_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} \rho v_j v_i = & -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu_l \frac{\rho}{\rho_l} \frac{\partial v_i}{\partial x_j} \right) \\ & + \rho_l \tilde{g}_i [\beta_T (T - T_e) - \beta_S (f_1^\alpha - f_{1,e}^\alpha)] - \frac{\mu_l}{K} \frac{\rho}{\rho_l} (v_i - v_i^s) \end{aligned}$$

- énergie :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho h) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho v_j h) = & \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{k}{c_s} \frac{\partial h_s}{\partial x_j} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho (h_l - h) (v_j - v_j^s)) \end{aligned}$$

- concentration :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho f^\alpha) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho v_j f^\alpha) = & \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \rho D_l \frac{\partial f^\alpha}{\partial x_j} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho (f_1^\alpha - f^\alpha) (v_j - v_j^s)) \end{aligned}$$

Les masses volumiques, vitesses, enthalpie, concentrations et conductivités moyennes peuvent s'écrire comme suit :

$$\begin{aligned} \rho &= g_s \rho_s + (1 - g_s) \rho_l \\ v_i &= f_s v_i^s + (1 - f_s) v_i^l \\ h &= f_s h_s + (1 - f_s) h_l \\ f^\alpha &= f_s f_s^\alpha + (1 - f_s) f_l^\alpha \\ k &= g_s k_s + (1 - g_s) k_l \\ h_s &= c_s T \\ h_l &= c_l T + L_f \end{aligned}$$

La perméabilité introduite dans le terme modélisant les interactions entre phases dans l'équation de quantité de mouvement est définie, comme pour un milieu poreux, par la relation de Carman-Kozeny [15] :

$$K = K_0 \frac{g_l^3}{(1 - g_l)^2}$$

où  $K_0$  dépend de la dimension des microstructures de solidification pour des structures de type dendritique,  $K_0$  est proportionnel au carré de l'espace moyen séparant les bras secondaires sur le tronc primaire (DAS : *dendrite arm spacing*).

L'équation de conservation de l'énergie est formulée en fonction de l'enthalpie, les effets de chaleur latente sont pris en compte à travers un saut d'enthalpie au niveau du passage à l'état liquide.

La résolution numérique du système d'équations gouvernant le comportement de ce système physique est réalisée par une méthode de volumes finis. Certaines variables (enthalpie, concentration) peuvent présenter des forts gradients. Afin de garantir une bonne précision des résultats numériques, il est indispensable d'utiliser une technique de discrétisation des flux qui soit à la fois stable et non diffusive. C'est pourquoi nous avons utilisé un schéma de type Ultra-Quick qui associe un schéma convectif décentré quadratique avec une stratégie de limitation de flux. Différents tests ont permis de mettre en évidence les performances obtenues avec ce schéma, qui introduit peu de diffusivité numérique supplémentaire, tout en conservant une bonne stabilité numérique pour la résolution d'équations de transport fortement convectives [16].

Afin d'assurer une bonne précision pour décrire l'évolution en temps des différentes variables, nous avons utilisé un schéma d'Euler du deuxième ordre. L'algorithme numérique de résolution est présenté en *Annexe*.

La méthode a été appliquée dans le cas de la solidification d'un bain fondu à partir d'un corps pur et à partir d'un alliage. Dans le second cas, la zone modélisée comme un milieu poreux représente physiquement la zone de changement d'état et elle est décrite à travers le diagramme de phase. Dans le cas du corps pur, le changement se produit ponctuellement à température donnée, le modèle porosité-enthalpie s'applique alors sur une couche fictive autour de la température de solidification.

La technique de Bridgman verticale est la technique de solidification considérée. L'ampoule dont les parois latérales sont chauffées à une température supérieure à celle de fusion contient initialement un bain fondu à température uniforme. La solidification se fait par le déplacement d'une zone froide séparée de la zone chaude par une zone adiabatique. L'orientation du gradient de température par rapport au champs de gravité joue un rôle important dans l'apparition et le développement des instabilités hydrodynamiques.

### 3. APPLICATION À LA SOLIDIFICATION DIRIGÉE D'UN CORPS PUR

Pour l'étude de la convection thermique, le système est écrit sous forme adimensionnelle, en utilisant le temps thermique comme temps de référence ( $t_{ref} = L^2/\kappa$ ), la longueur de l'ampoule  $L$  comme référence pour l'espace, l'écart thermique  $\Delta T = T_c - T_f$  entre les zones chaude et froide de l'ampoule comme référence pour la température, ce qui conduit à la vitesse de référence  $U_{ref} = \kappa/L$  et à la pression de référence  $\rho U_{ref}^2$ . Ces échelles interviennent dans les paramètres adimensionnels introduits avec leurs valeurs caractéristiques dans le *tableau I*.

TABLEAU I / TABLE I Paramètres physiques et valeurs typiques, adimensionnement thermique. Physical parameters and typical values, thermal case.	
Paramètre physique	Valeur
Nombre de Rayleigh $Ra = g\beta \Delta T L^3 / \nu \kappa$	$10^4 - 8 \cdot 10^6$
Nombre de Prandtl $Pr = \nu / \kappa$	0.01
Nombre de Stefan $Ste = c \Delta T / L_f$	$\infty$ ou 1
Rapport des chaleurs spécifiques $c_l / c_s$	1,0
Rapport des conductivités $k_s / k_l$	1,0
Rapport des densités $\rho_s / \rho_l$	1,0

Les enthalpies adimensionnelles de chacune des phases solide et liquide s'écrivent respectivement :

$$h_s = T \quad \text{et} \quad h_l = T + Ste^{-1}$$

Le système adimensionnel s'écrit (pour alléger l'exposé, on a gardé les mêmes symboles que pour les variables dimensionnelles) :

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (v_j) = 0$$

$$\frac{\partial}{\partial t} v_i + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho v_j v_i) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + Pr \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{\partial v_i}{\partial x_j} \right) + Ra Pr \frac{\tilde{g}_i}{g} (T - T_{ref}) - \frac{Pr L^2}{K} (v_i - v_i^s)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (h) + \frac{\partial}{\partial x_j} (v_j h) = \left( \frac{\partial}{\partial x_j} \frac{\partial h_s}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_j} ((h_l - h) (v_j - v_j^s))$$

Afin d'assurer l'hypothèse de continuité de la variable enthalpie, on définit une zone «pâteuse» numérique (*mushy zone*, voir *Annexe*). Cette zone de transition se situe au voisinage du front de solidification entre deux températures  $T_{sol} - \varepsilon$  et  $T_{sol} + \varepsilon$ ,  $\varepsilon$  représentant un pourcentage de l'écart petit et arbitraire de température  $\Delta T$  (5 % dans nos calculs).

On s'intéresse dans la suite à la configuration dite instable (croissance en sens inverse de la gravité). On considère deux modèles : (i) le modèle restreint à la phase liquide, avec interface fixée plane, permet de mettre en évidence les modes symétriques et asymétriques, sans influence des déformations de l'interface. Le nombre de Rayleigh associé est basé sur la longueur  $L/2$  et sur l'écart de température  $\Delta T/2$  ; il est noté  $Ra_2 = Ra(L/2, \Delta T/2)$  (*figure 1*) ; (ii) le modèle complet (solide/liquide), est considéré pour l'étude de l'interaction du régime convectif dans le bain fondu avec l'interface de solidification ; le nombre de Rayleigh utilisé est basé sur la largeur  $L/2$  et sur l'écart de température  $\Delta T$ , noté  $Ra_1 = Ra(L/2, \Delta T)$ , (*figure 2*).

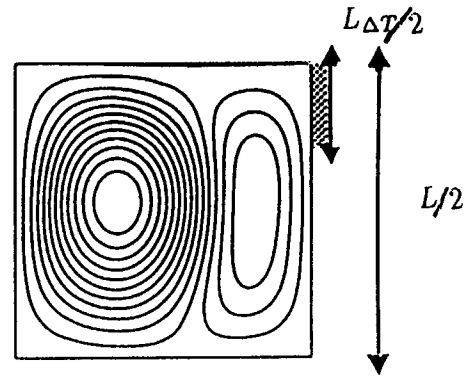


Figure 1. Configuration modèle restreint.

Figure 1. Restricted model configuration.

#### 3.1. Étude du modèle fluide avec interface fixée plane

Le maillage utilisé est de  $64 \times 128$ . Les solutions bidimensionnelles en modèle bain fondu liquide montrent l'existence successive de modes axisymétriques, asymétriques stationnaires puis instationnaires. Cette phénoménologie observée est confirmée par la comparaison avec les résultats d'une méthode spectrale de type collocation Chebyshev [17] (*tableau II*). En particulier, on observe un très bon accord qualitatif et quantitatif entre les calculs effectués pour un régime symétrique (*figure 3*) et (*tableau III*). Sur cette figure  $\psi_{10,10}$  représente la fonction de courant adimensionnalisée donnée au point de coordonnées 10,10 et  $N_t$  le temps adimensionnalisé par rapport au pas de temps  $\delta t$ . La transition du régime symétrique au régime asymétrique est obtenue pour  $5000 < Ra_2 < 7000$ . La transition vers l'instationnaire est obtenue pour une valeur du nombre de Rayleigh voisin de 40000. La *figure 3* fournit une illustration de la solution périodique obtenue par volumes finis pour  $Ra_2 = 60000$ , le régime d'écoulement instationnaire asymétrique faisant apparaître une compétition dynamique entre le développement de deux rouleaux de convection de tailles différentes.

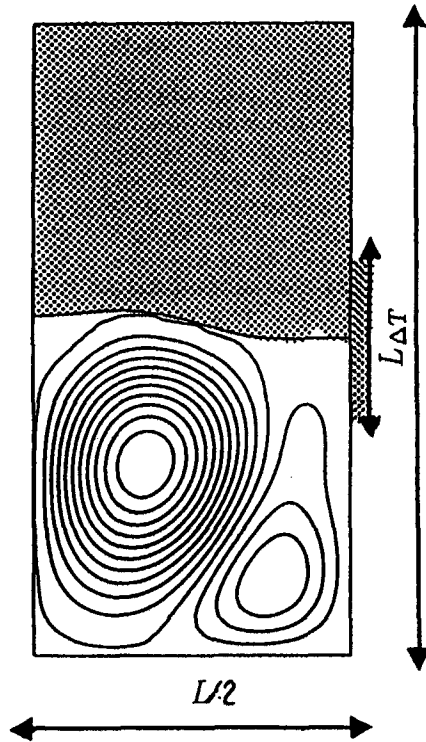


Figure 2. Configuration modèle complet avec interface libre.  
Figure 2. Full model with free interface configuration.

TABLEAU II / TABLE II Différents régimes d'écoulement et nombre de Rayleigh de transition pour les 3 modèles considérés. Various flow rates and transition Rayleigh numbers for the 3 considered models.			
	2D (fluide) Spectral	2D (fluide) V-finis	2D (fluide/solide) VF
Symétrique- asymétrique	2 500-3 000	5 000-7 000	10 000-15 000
Instationnaire	20 000	30 000-40 000	30 000

### 3.2. Étude du modèle solide-liquide avec interface déformable

Pour ce modèle, différents régimes sont observés dans le bain fondu, un régime symétrique est d'abord obtenu, suivi d'un régime asymétrique, puis d'un régime instationnaire périodique pour  $Ra_1 = 60\,000$ , qui reste instationnaire, avec une plus forte intensité pour  $Ra_1 = 80\,000$  (figure 4). Sur cette figure,  $T_{10,10}$  est la température adimensionnelle au point de coordonnées

TABLEAU III / TABLE III Comparaison pour $Ra = 2\,000$ , $Pr = 0,01$ , $Pe = 0,01$ et $Ste^{-1} = 0$ des valeurs de $\psi_{min}$ et $\psi_{max}$ obtenues par des approches spectrales et volumes finis. Comparison for $Ra = 2\,000$ , $Pr = 0,01$ , $Pe = 0,01$ and $Ste^{-1} = 0$ of the values of $\psi_{min}$ and $\psi_{max}$ obtained with spectral and finite volumes approaches.				
	$N_x \times N_z$	$h_{N_x}$ $= x_N - x_{N-1}$	$\psi_{min}$	$\psi_{max}$
Approche spectrale à 1 domaine	$33 \times 33$	0,00481	-0,309	0,304
Approche spectrale à 1 domaine	$65 \times 65$	0,00120	-0,308	0,303
Approche spectrale à 2 domaines	$2 \times (17 \times 17)$	0,0048 ( $h_{N_z}$ )	-0,264	0,270
Volumes finis	$128 \times 130$	0,00781	-0,264	0,264

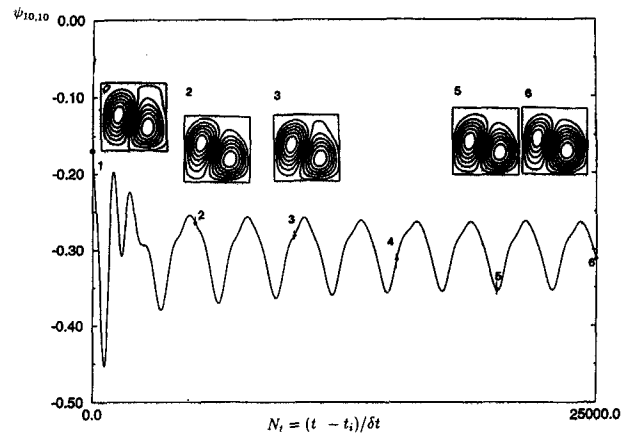


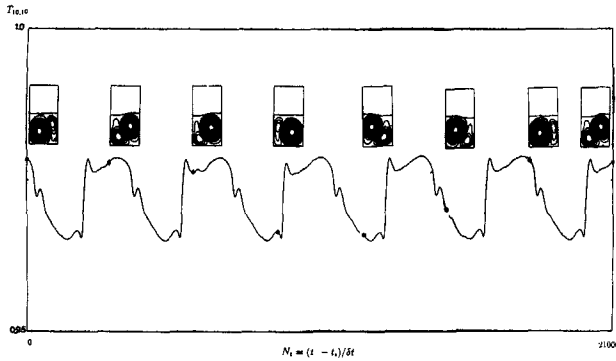
Figure 3. Signal périodique et configurations dynamiques de la fonction de courant pour le modèle restreint.  $Ra_2 = 60\,000$ ,  $Pe = 0,005$ ,  $Pr = 0,01$ ,  $Ste^{-1} = 0,0$ .

Figure 3. Periodic signal and dynamic configurations of the current function for the restricted model.  $Ra_2 = 60\,000$ ,  $Pe = 0.005$ ,  $Pr = 0.01$ ,  $Ste^{-1} = 0.0$ .

10,10. Durant ce régime fortement instationnaire, les deux principaux rouleaux de convection qui composent le bain fondu sont en compétition au cours du temps et interagissent avec le front de solidification, qui subit de fortes incurvations du côté du rouleau de plus grande taille.

### 3.3. Discussion des modèles étudiés

Le tableau II permet de comparer les nombres de Rayleigh correspondant aux transitions symétrique-



**Figure 4.** Signal périodique et configurations dynamiques de la température pour le modèle complet.  $Ra_1 = 80\,000$ ,  $Pe = 0,005$ ,  $Pr = 0,01$ ,  $Ste^{-1} = 0,0$ .

**Figure 4.** Periodic signal and dynamic configurations for the full model.  $Ra_1 = 80\,000$ ,  $Pe = 0.005$ ,  $Pr = 0.01$ ,  $Ste^{-1} = 0.0$ .

asymétrique et stationnaire-instationnaire. D'une part, pour la cavité fluide, les transitions sont obtenues avec l'approche spectrale pour des nombres de Rayleigh inférieurs à ceux obtenus par l'approche volumes finis. La différence peut s'expliquer par la sensibilité des seuils de transitions au pas du maillage près de la paroi, qui est généralement très fin dans les discrétisations suivant des polynômes de Chebychev avec les méthodes spectrales. D'autre part, la présence de l'interface de solidification déformable dans le cas du modèle complet paraît maintenir la stabilité du régime symétrique, dans la mesure où la transition vers le régime asymétrique est obtenue pour un  $Ra$  supérieur à celui correspondant au modèle fluide. Elle favorise par ailleurs la transition au régime instationnaire.

#### 4. APPLICATION À LA SOLIDIFICATION DIRIGÉE D'UN ALLIAGE BINAIRE

Les équations de conservation sont adimensionnées par rapport à la vitesse de tirage  $V_0$  et la longueur solutale  $l_s = D/V_0$ ,  $D$  étant la diffusivité solutale. Les équations s'écrivent ainsi :

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (v_j) = 0$$

$$\frac{1}{Sc} \left[ \frac{\partial}{\partial t} (v_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} (v_j v_i) \right] = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{\partial v_i}{\partial x_j} \right)$$

$$+ Ra_T \frac{\tilde{g}_i}{g} (T - T_{ref}) + Ra_S \frac{\tilde{g}_i}{g} (f_1^\alpha - f_{1,e}^\alpha) - \frac{l_s^2}{K} (v_i - v_i^s)$$

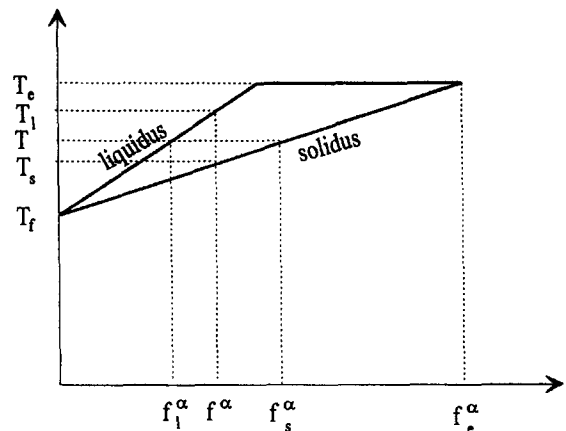
$$\frac{\partial}{\partial t} h + \frac{\partial}{\partial x_j} v_j h = Le \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{\partial h_s}{\partial x_j} \right)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} f^\alpha + \frac{\partial}{\partial x_j} (v_j f^\alpha) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( f_1 \frac{\partial f^\alpha}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_j} ((f_1^\alpha - f^\alpha) (v_j - v_j^s))$$

Les paramètres physiques caractéristiques sont donnés dans le *tableau IV*.

Il faut noter que, dans notre cas, les effets de chaleur latente sont négligés ( $1/Ste = 0$ ). Le problème de fermeture est résolu par les données du diagramme de phase, dont une version schématisée est représentée sur la *figure 5*. La linéarisation de ce diagramme nous donne des relations algébriques entre les fractions massiques liquides et solides de soluté  $f_1^\alpha$  et  $f_s^\alpha$  et la fraction

TABLEAU IV / TABLE IV	
Paramètres physiques, adimensionnement solutal.	
Physical parameters, solutal case.	
Paramètres physique	Valeurs
Nombre de Rayleigh thermique $Ra_T = \frac{\beta_T g \Delta T}{\mu_1 D} l_s^3$	0 – 5 000
Nombre de Rayleigh solutal $Ra_S = \frac{\beta_S g \Delta f^\alpha}{\mu_1 D} l_s^3$	20 – 8 000
Nombre de Prandtl $Pr = \frac{\mu c}{k}$	0,0225
Nombre de Schmidt $Sc = \frac{\mu_1}{\rho D}$	121,5
Nombre de Lewis $Le = \frac{Sc}{Pr}$	5 400
Rapport des chaleur spécifiques $c_1/c_s$	1,0
Rapport des conductivités $k_s/k_l$	1,0
Rapport des densités $\rho_s/\rho_l$	1,0



**Figure 5.** Diagramme de phase de l'alliage plomb-thallium.  
**Figure 5.** Lead-thallium phase diagram.

$Ra_s$	Volumes finis			Spectral		
	solution	f	$\psi_{\max}$	solution	f	$\Psi_{\max}$
20	diffusive	stationnaire	$3 \cdot 10^{-3}$	diffusive	stationnaire	$1 \cdot 10^{-7}$
35	1 rouleau	stationnaire	13,632	1 rouleau	stationnaire	13,619
41	1 rouleau	stationnaire	14,827	2 rouleaux	0,110	
60	2 rouleaux	0,157		2 rouleaux	0,192	

d'alliage solidifié  $f_s$ . Dans notre cas, le diagramme de phase nous donne un coefficient de partage  $k = 1,1$ , rapport, pour une température donnée, entre la fraction massique de soluté solide et celle de soluté liquide. On s'attend donc à observer d'importants gradients de concentration au voisinage de l'interface de solidification sur une fine couche de taille de l'ordre de  $l_s$ . La *mushy-zone*, zone de changement de phase, est donc ici calculée à partir des températures liquidus et solidus pour une valeur donnée de la concentration en soluté (voir *Annexe*). Sa géométrie dépend donc des champs de température et de concentration. Le soluté (thallium) se solidifie plus facilement que le solvant (plomb). Au voisinage de l'interface, le liquide est moins dense, ce qui va engendrer le développement d'une instabilité convective d'origine solutale comparable à celle d'origine thermique en configuration de Rayleigh–Bénard.

#### 4.1. Validation de la méthode numérique

Afin de valider l'adéquation de la méthode à représenter les effets des importants gradients de concentration localisés au voisinage de l'interface, nous avons effectué des comparaisons avec les résultats obtenus avec une autre méthode spectrale [18]. Afin d'étudier la convection d'origine solutale, nous considérons un mélange binaire en phase liquide plomb – 30 % thallium au sein d'une cavité rectangulaire. La ségrégation de soluté est modélisée par une condition de flux mixte au niveau de la base de la cavité :

$$D \frac{\partial C}{\partial n} = (1 - k) V_0 C$$

En ce qui concerne les conditions aux limites en concentration, les parois latérales sont modélisées avec une condition de flux nul, la paroi supérieure avec une condition de Dirichlet donnée par la valeur de la concentration initiale en soluté. Les effets thermiques ne sont pas pris en compte ici. On impose une vitesse égale à la vitesse de croissance aux parois. Pour mener les calculs, nous avons utilisé un maillage  $40 \times 105$  à progression géométrique, raffiné au niveau de la base de l'ampoule où sont localisés

les gradients de concentration. Les simulations avec le code enthalpique mettent en évidence des transitions entre les régimes diffusifs, puis convectifs stationnaires, et enfin oscillatoires, en accord avec les résultats donnés par le code spectral. Le *tableau V* dresse le bilan de ces comparaisons, donnant le type de solution obtenue, la fréquence pour les régimes périodiques et la valeur maximale de la fonction de courant. D'autres simulations, utilisant un maillage raffiné avec un pas constant au voisinage de l'interface, ont donné des résultats en accord avec les premières simulations. Cette validation permettra d'utiliser ce dernier type de maillage pour le problème diphasique suivant, car il est délicat d'utiliser un maillage fixe à pas géométrique pour des problèmes où l'interface est mobile.

#### 4.2. Étude de la solidification du plomb-thallium

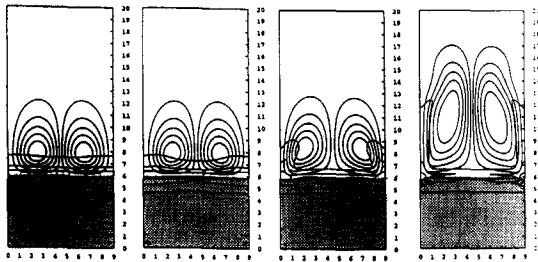
Nous étudions ici les effets de la convection solutale lors de la solidification dirigée d'un alliage plomb–30 % thallium, selon la technique de Bridgman. Le rapport de forme de la cavité rectangulaire est de 9 en largeur, pour 20 en hauteur. On part d'un bain fondu à température homogène, que l'on solidifie peu à peu par déplacement du gradient de température. Cette simulation prend donc en compte les phénomènes transitoires dus à l'initiation de la solidification à partir des coins inférieurs de l'ampoule. Dans la configuration étudiée, le gradient thermique vertical a un effet stabilisant (de sens inverse à la gravité) ; seul le gradient radial de température peut être à l'origine d'une instabilité thermoconvective [19].

Cependant, la contribution du champ de température aux mouvements de convection dans la zone fondue est beaucoup plus petite que celle due aux effets solutaux : elle pourra donc être négligée. Un essai réalisé en convection mixte thermo-solutale a permis de valider cette hypothèse. Les écarts en terme d'extrema de fonction de courant sont de l'ordre de 0,3 %. Les effets thermiques n'interviennent en définitive qu'indirectement, en initiant un profil d'interface symétrique, dont la géométrie influence par la suite la structure de la convection dans le milieu fluide.

Pour obtenir une bonne représentation des gradients de concentration au niveau de la zone de solidification, la grille de calcul utilisée est raffinée dans la zone où évolue le front de solidification (premier tiers de l'ampoule), et composée de  $40 \times 105$  volumes de contrôle dans les directions  $x$  et  $y$  respectivement. Les résultats présentés sur la *figure 6* montrent les lignes de courant et les lignes d'isoconcentration relevées au même instant pour différentes valeurs du nombre de Rayleigh solutal, comprises entre 1 000 et 8 000. Des simulations effectuées pour un maillage de  $40 \times 175$  ont donné des résultats convergents. On obtient ainsi un champ de concentration quasi identique (variation des extrema de concentration inférieur de 1 %). De même, le profil de l'interface n'est pas modifié par un raffinement de maillage. On distingue l'interface de solidification dans la zone de fort gradient. L'incurvation concave révélée pour le  $Ra_s = 8\,000$  s'explique par l'augmentation de la concentration en dopant sur les bords de l'ampoule, qui entraîne, d'après le diagramme de phase (*figure 5*), une baisse de la température de fusion (température du liquidus).

Dans tous les cas étudiés, on obtient des solutions symétriques, où l'écoulement est composé de deux cellules convectives. Le mouvement est ascendant le long des parois et descendant au centre de l'ampoule. La structure symétrique des conditions aux limites en température favorise ce type de solution. D'autres études ont par ailleurs montré qu'une solution asymétrique monocellulaire pouvait se développer en accroissant le nombre de Rayleigh pour des conditions similaires, sans changement de phase [18].

L'augmentation des mouvements de convection dans la partie liquide se traduit par une extension longitudinale des cellules de recirculation, qui occupent un peu plus du tiers de la cavité pour  $Ra_s = 1\,000$  et 2 000 et pratiquement les deux tiers de la cavité pour  $Ra_s = 8\,000$ . L'augmentation des effets de la convection sur le transport de soluté est particulièrement marquée le long des parois de l'ampoule (*figure 6*). Elle va se traduire par un appauvrissement en soluté dans la partie périphérique du cristal en contact avec la parois de l'ampoule et par un enrichissement dans la région centrale



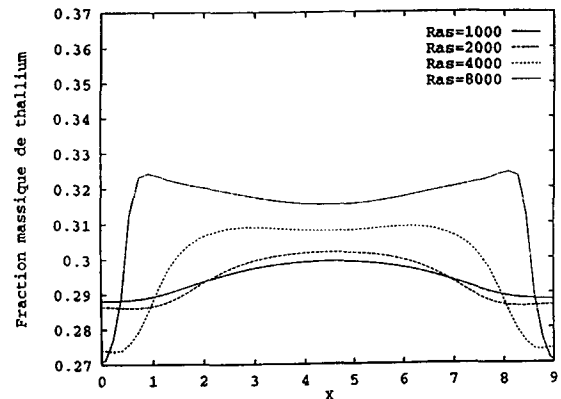
**Figure 6.** Lignes de courant et d'isoconcentration relevées pour quatre valeurs du nombre de Rayleigh solutal  $Ra_s = 1\,000, 2\,000, 4\,000$  et  $8\,000$  (de gauche à droite).

**Figure 6.** Streamlines and concentration field calculated for four values of solutal Rayleigh number  $Ra_s = 1\,000, 2\,000, 4\,000$  et  $8\,000$  (from left to right).

(*figure 7*). L'augmentation de la vitesse de tirage accentue les écarts de concentration radiaux (ségrégation radiale) dans le cristal.

Ce comportement a déjà pu être observé en régime de convection thermique pure [20]. L'orientation des lignes de courant au voisinage de la zone de solidification (*figure 6*) montre que l'intensification du transport convectif accroît la courbure de l'interface.

L'inhomogénéité de dopant à l'interface a tendance à s'accroître avec l'augmentation du nombre de Rayleigh. On constate un écart de concentration radial dans le matériau solidifié de 3,5 % pour le cas  $Ra_s = 1\,000$ , et cet écart s'élève jusqu'à 15 % pour le cas  $Ra_s = 8\,000$  (*figure 7*).



**Figure 7.** Répartitions de soluté dans le cristal relevées au même instant pour différentes valeurs du nombre de Rayleigh solutal  $Ra_s = 1\,000-8\,000$ .

**Figure 7.** Solute distributions in the crystal calculated at the same time for various values of solutal Rayleigh number  $Ra_s = 1\,000-8\,000$ .

## 5. CONCLUSION

La méthode enthalpique a été considérée pour simuler des problèmes de solidification à partir de conditions dans le bain fondu qui peuvent être instationnaires. La méthode introduit, dans le cas d'un matériau pur, une zone pâteuse qui tient lieu de moyen de régularisation de la solution numérique. Dans le cas de l'extension de la méthode à la description du mélange (binaire), la zone pâteuse permet de représenter l'évolution de la constitution du milieu au moyen d'un diagramme de phase. La réponse de la technique de calcul à la description des interfaces de solidification en présence d'oscillations dans le bain fondu est bien représentée et validée par rapport à des solutions de référence (méthodes spectrales). Dans le cas du mélange, des solutions spectrales ont permis également de valider la solution et le résultat le plus important est de



permettre de représenter la constitution du cristal en concentration. Les applications concernant la technique de Bridgman sont très vastes et l'apport de ce travail réside dans la disposition d'une méthode efficace et robuste, permettant de prédire la constitution (forme des interfaces successives) et la composition du cristal solidifié.

## RÉFÉRENCES

- [1] Bénard C., Gobin D., Martinez F., Melting in rectangular enclosures: experiments and numerical simulation simulations, *J. Heat. Trans.-T. ASME* 107 (1985) 794-803.
- [2] Gobin D., Gadgil A., Analysis of two-dimensional melting in rectangular enclosures in the presence of convection, *J. Heat Trans.-T. ASME* 106 (1984) 20-26.
- [3] Lacroix M., Étude numérique de la fusion d'un métal pur dans une enceinte avec une paroi chauffée glissante, *J. Heat. Trans.-T. ASME* 7 (1991) 1663-1677.
- [4] Crank J., *Free and moving boundary problems*, Clarendon Press Oxford, 1988.
- [5] Meyer G.H., Multidimensional Stefan Problem, *J. Numer. Anal.* 10 (1973) 522-533.
- [6] Ettouy Brown, Finite element methods for steady solidification processes, *J. Comput. Phys.* 49 (1983) 118-150.
- [7] Zhang Y., Alexander J.I.D., Ouazzani J., A Chebyshev collocation method for moving boundaries heat transfer and convection during directional solidification, *Int. J. Numer. Meth. Heat Fluid Flow* 4 (1994) 115-129.
- [8] Mesjaz C., Étude numérique de la convection naturelle dans un milieu de solidification, thèse, université de Nantes, 1997.
- [9] Bennon W.D., Incropera F.P., A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems. 1. Model formulation, *Int. J. Heat Mass Tran.* 10 (1987) 2161-2170.
- [10] Bennon W.D., Incropera F.P., A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems. 2. Application to solidification in a rectangular cavity, *Int. J. Heat Mass Tran.* 10 (1987) 2171-2187.
- [11] Voller V.R., Prakash C., A fixed grid numerical modelling methodology for convection diffusion mushy region phase change problems, *Int. J. Heat Mass Tran.* 8 (1987) 1709-1719.
- [12] El Ganaoui M., Modélisation numérique de la convection thermique instationnaire en présence d'un front de solidification déformable : application à la croissance cristalline, thèse, université Aix-Marseille-2, 1997.
- [13] Morvan D., El Ganaoui M., Bontoux P., Numerical Simulation of a 2D crystal growth problem in a vertical Bridgman-Stockbarger furnace: latent heat effects and crystal melt interface morphology, *Int. J. Heat Mass Tran.* 42 (1999) 573-579.
- [14] Brown R.A., Theory of transport processes in single crystal growth from the melt, *AIChE J.* 6 (1988), 881-911.
- [15] Beckermann C., Viskanta R., Double-diffusive convection during dendritic solidification of a binary mixture, *Physico-Chemical Hydrodynamics* 2 (1988) 195-213.
- [16] Leonard B.P., The ultimate conservative difference scheme applied to unsteady one dimensional advection, *Comput. Meth. Appl. Mech. Eng.* 88 (1991) 17-74.
- [17] Larroude P., Ouazzani J., Alexander J.I.D., Bontoux P., Symmetry breaking flow transitions and oscillatory flows in a 2D directional solidification model, *Eur. J. Mech. B* 3 (1994) 353-381.
- [18] Le Marec C., Guerin R., Haldenwang P., Pattern study in the 2-D solutal convection above a Bridgman-type solidification front, *Phys. Fluids* 11 (1997) 3149-3161.
- [19] Brown R.A., Do Hyum K., Modelling of directional solidification: from Scheil to detailed numerical simulation, *J. Crystal Growth* 109 (1991) 50-65.
- [20] Chang J., Brown R.A., Radial segregation induced by natural convection and melt-solid interface shape in vertical bridgman growth, *J. Crystal Growth* 63 (1983) 343-364.

## Annexe

### Algorithme numérique de résolution

1. Données du champ de température initial. Conditions aux limites en vitesse, pression, température.
  2. Résolution des équations de conservation de la quantité de mouvement. Algorithme de projection Simple muni d'une première étape prédictrice en vitesse et pression.
  3. Résolution de la conservation de l'énergie, formulée avec la variable enthalpie  $h$ .
  4. Résolution de la conservation de la concentration du constituant  $\alpha$  dans le cas d'un alliage.
  5. Calcul du champ de température et des fractions massiques de chaque phase (lire ci-après).
  6. Calcul des nouvelles propriétés physiques (conductivité, capacité calorifique) pour chaque maille, calculées selon la moyenne barycentrique des fractions massiques de chaque phase.
  7. Retour à l'étape 2 pour le calcul à l'instant suivant.
- Remarques : Les termes sources des équations de conservation sont calculés à partir des données de l'instant précédent ; les termes convectifs sont calculés par un schéma Ultra-Quick : interpolation quadratique des flux.

### Calcul du champ de température et des fractions massiques de chaque phase

#### 1. Corps pur

Donnée de la plage de solidification thermique  $[T_{f1} ; T_{f2}]$  autour de la température de fusion  $T_f$  telle que  $T_{f1} < T_f < T_{f2}$ .

Calcul de la plage enthalpique de changement de phase  $[h_{f1} ; h_{f2}]$  :  $h_{f1} = c_s T_{f1}$ ,  $h_{f2} = c_l T_{f2} + L_f$ .

Calcul du champ de température  $T$  à partir de l'enthalpie  $h$  donnée par l'équation de l'énergie :

- $h \leq h_{f1}$ ,  $T = \frac{h}{c_s}$   $f_s = 1$
- $h_{f1} < h < h_{f2}$ ,  $T = T_{f1} + (h - h_{f1}) \frac{T_{f2} - T_{f1}}{h_{f2} - h_{f1}}$

$$f_s = \frac{h_{f_2} - h}{h_{f_2} - h_{f_1}}$$

$$\bullet h \geq h_{f_2}, T = \frac{h - L_f}{c_l} \quad f_s = 0$$

## 2. Alliage binaire

Données de la linéarisation du diagramme de phase : pente du liquidus  $m$  et coefficient de partage  $k$ .

Calcul de la plage thermique de changement de phase, températures solidus et liquidus  $[T_s, T_l]$  :  $T_s = T_f + \frac{m}{k} f^\alpha$ ,  $T_l = T_f + m f^\alpha$ .

Calcul de  $h_{f_1}$  et  $h_{f_2}$  à partir de  $T_s$  et  $T_l$  comme pour le corps pur.

Calcul du champ de température et des fractions massiques de chaque phase à partir des champs

d'enthalpie et de concentration donnés par les équations de conservation :

$$\bullet h \leq h_{f_1}, T = \frac{h}{c_s} \quad f_s = 1$$

$$\bullet h_{f_1} < h < h_{f_2}, T \text{ solution de}$$

$$\begin{aligned} & \frac{1}{1-k} (c_s - c_l) T^2 \\ & + \left[ \frac{1}{1-k} [(c_s - c_l) T_l - k L_f] - h - c_l T_l \right] T \\ & + \left[ \frac{1}{1-k} L_f T_l + (h - L_f) T_l \right] = 0 \end{aligned}$$

$$f_s = \frac{1}{1-k} \frac{T - T_l}{T - T_f}$$

$$\bullet h \geq h_{f_2}, T = \frac{h - L_f}{c_l} \quad f_s = 0$$

## Abridged English Version

### *Numerical simulation of thermo-solutal convection during Bridgman crystal growth*

The growth of single crystals from the melt plays an important role in the microelectronics industry. The quality of the semiconductor obtained after this processing is strongly influenced by the heat and mass transfers and the melt flow in the growth system. The hydrodynamic is governed by both solutal and thermal convective instabilities.

The vertical Bridgman–Stockbarger technique is a directional solidification technique. The material is loaded into an ampoule, and solidified by varying the temperature field with a translation of the ampoule through a furnace.

The phase change problems are defined by the mass, momentum and energy equations. For binary alloys, concentration equations should be added. In our case, the resolution of the problem uses an homogenised formulation of the conservation equations, the enthalpy method, issued from classical mixture theories. This approach has initially been used to study viscous flows in domains including fluid and porous layers. The solid formation behaves as a crystalline-like matrix which coexists with the liquid phase. In this multiphase region, an analogy can be made with the flow of a viscous fluid through a porous medium. The interaction between phases can then be modelled by a Darcy's law in the region where the solid fraction predominates. The energy equation is formulated with the enthalpy variable, which allows to take implicitly into account the latent heat jump at the solidification temperature. To solve the closure problem, we use the equilibrium phase diagram, assuming a local

thermodynamic equilibrium. This assumption is valid considering the low growth velocity. Neglecting the solidus and liquidus curvatures, we then obtain linear relations between solid and liquid mass fractions and the temperature field. Given the enthalpy and concentration fields, these quantities can be then calculated. Solving the conservation equations in the whole domain allows us not to track the interface front, as its shape is not needed in the resolution. This continuum formulation also allows us to relate continuous phenomena, such as the exchanges of latent energy over a temperature range. This permits us to take into account the whole phases and constituents present in the system, and their resolution on a fixed grid. The spatial discretisation of the equations uses a finite-volume method. The convective terms are calculated with a QUICK scheme associated with a flux limiting strategy. The pressure velocity coupling is solved with a projection algorithm. The time discretisation uses a second order Euler scheme.

We study here two configurations of Bridgman solidification. First we consider the solidification of a pure material for an inverted growth configuration. The results show the interaction between the interface and the hydrodynamic, due to thermal convective instabilities developing in the unsteady melt. The second case is a solidification of a binary alloy, where the temperature gradient has a stabilising effect. The results show the influence of the growth velocity on the distribution of dopant in the solidified crystal.