



Modélisation 3D de structures de grains par une approche automate cellulaire. Application à la compétition de croissance dendritique et à la cristallisation du silicium polycristallin

Adrian Pineau

► To cite this version:

Adrian Pineau. Modélisation 3D de structures de grains par une approche automate cellulaire. Application à la compétition de croissance dendritique et à la cristallisation du silicium polycristallin. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université Paris sciences et lettres, 2019. Français. NNT : 2019PSLEM042 . tel-03102308

HAL Id: tel-03102308

<https://pastel.hal.science/tel-03102308>

Submitted on 7 Jan 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à MINES ParisTech

**Modélisation 3D de structures de grains par une approche
automate cellulaire. Application à la compétition de
croissance dendritique et à la cristallisation du silicium
polycristallin**

Soutenue par

Adrian PINEAU

Le 21 novembre 2019

École doctorale n°364

**Sciences Fondamentales
et Appliquées**

Spécialité

**Mécanique Numérique et
Matériaux**

Composition du jury :

Nathalie MANGELINCK-NOËL

Directrice de recherche
Aix-Marseille Université

*Rapporteur
Président*

Mathis PLAPP

Directeur de recherche
École Polytechnique

Rapporteur

Charles-André GANDIN

Directeur de recherche
MINES ParisTech PSL

*Examineur
Directeur de thèse*

Gildas GUILLEMOT

Maître assistant
MINES ParisTech PSL

*Examineur
Maître de thèse*

Remerciements

Je commence tout naturellement par remercier mes encadrants Charles-André Gandin, directeur de cette thèse, et Gildas Guillemot, maître de thèse. Leurs grandes compétences, patience et disponibilité ont largement contribué à l'aboutissement de ce travail. J'ai pu, grâce à eux, effectuer ce projet dans un environnement sain, tout en disposant d'une certaine liberté dans mes activités.

Je remercie aussi Nathalie Mangelinck-Noël et Mathis Plapp pour avoir accepté de lire ce manuscrit, qui a été envoyé à une période très chargée de l'année. Des remerciements supplémentaires à Nathalie Mangelinck-Noël sont évidemment nécessaires : pour une très bonne coordination du projet ANR CrySaLID, ainsi que pour toutes les discussions liées aux expérimentations de l'IM2NP et, dans un cadre plus général, pour ses connaissances sur la croissance cristalline du silicium. Toujours en relation avec l'IM2NP, merci à Guillaume Reinhart et Gabrielle Regula pour les discussions axées silicium.

Concernant le Cemef, merci à Marie-Françoise Guenegan, assistante de direction, pour son amabilité et sa grande efficacité concernant les démarches administratives. Merci aussi à Geneviève Anseeuw, chargée de voyages, qui a toujours rendu plus facile mes déplacements. Un grand merci à Carole Torrin et Sélim Kraria pour leur disponibilité et leur aide concernant les ressources informatiques et l'utilisation du cluster.

Je souhaite aussi remercier les doctorants du Cemef, en premier lieu Romain avec qui j'ai partagé un bureau pendant 3 ans et qui a toujours été disponible pour me conseiller en C++ ou en L^AT_EX. Merci aussi à Shaojie pour son aide et pour des matches de ping assez éprouvants. Merci à Vincent pour la fameuse pièce de 2€ et sa bonne humeur constante. Merci aussi à Hanadi, Lucas, Alexis, Chengdan et Oriane, chargée de recherche dans le groupe 2MS.

Il est assez normal de maintenant remercier des personnes externes au Cemef, mais qui ont eu leur importance dans ce travail. Donc sans ordre particulier, merci à Chriszer, Alex, Jeffrey, Antoine, Door, Julien, Arnaud, Vivien, Auréjac et Thomas. Sur un plan un peu plus personnel, merci à Autechre, Coil et Stars of the Lid.

Finalement, mais non des moindres, d'immenses remerciements vont naturellement à mes deux parents. Ce travail leur est dédié.

Table des matières

Liste des symboles et acronymes	i
Introduction générale	1
Croissance dendritique	1
Croissance du silicium polycristallin	2
Organisation du manuscrit	4
I Observations expérimentales	7
1 Introduction	9
2 Croissance de grains dendritiques	10
2.1 Morphologie granulaire dendritique	10
2.2 Compétition de croissance dendritique	11
3 Structures de grains du silicium polycristallin	13
3.1 Généralités	13
3.2 Les morphologies facettées et rugueuses	14
3.3 Les sillons de joints de grains	15
3.4 Observations <i>in situ</i> de l'interface solide/liquide	17
3.4.1 Dispositif d'observation	17
3.4.2 Sillon facetté/facetté	18
3.4.3 Sillon rugueux/facetté	18
3.5 Le phénomène de maclage dans le silicium	19
3.5.1 Généralité sur les macles	19
3.5.2 Les différents types de macles dans le silicium	20
3.5.3 Maclages successifs et croissance	20
3.6 Structure de grains et rendement photoélectrique	22
4 Conclusions	24
II Modèles numériques	25
1 Introduction	27
2 La dynamique moléculaire	28
2.1 Considérations générales	28
2.2 Exemple	28
3 Le champ de phase	29
3.1 Considérations générales	29
3.2 Principe de résolution	29
3.3 Exemples	30
4 Le modèle automate cellulaire	33
4.1 Considérations générales	33
4.2 Grille CA et indices d'état	34

4.3	Principe de résolution	36
4.3.1	Germination	36
4.3.2	Croissance	36
4.3.3	Capture	37
4.3.4	Fraction d'enveloppe	39
4.4	Exemples	39
5	Le modèle de Nadri <i>et al.</i>	42
5.1	Considérations générales	42
5.2	Principe de résolution	42
5.3	Exemple	43
6	Le modèle de Qi <i>et al.</i>	44
6.1	Considérations générales	44
6.2	Exemple	45
7	Conclusions	45
III	Compétition de croissance dendritique	47
1	Introduction	49
2	Critères de sélection de croissance	51
2.1	Le critère FOG	51
2.2	La limite géométrique	51
2.3	Champ de phase formalisé (rev-FOG)	56
2.4	Comparaison des critères	57
3	Mise en donnée des calculs CA	58
3.1	Propriétés de l'alliage, cinétique et paramètres numériques	59
3.2	Cinétique de croissance	61
3.3	Détermination de l'angle de joint de grains	63
4	Résultats et discussions	64
4.1	Cartes de simulation	64
4.2	Taille de marche $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$	66
4.3	Voisinage et localisation de l'estimation de la température	68
4.4	Comparaisons des modèles CA et champ de phase	71
5	Expérience d'Esaka	74
5.1	Objectifs et mise en donnée des calculs CA	74
5.2	Résultats	75
5.2.1	Épaisseur du domaine de simulation	77
5.2.2	Cinétique de croissance	78
5.2.3	Désorientation simultanée des branches secondaires	79
5.2.4	Désorientation isolée des branches secondaires	80
5.2.5	Conclusion sur l'étude paramétrique	81
5.3	Cartes de sélection CA adaptatives	82
6	Conclusions	85
IV	Modélisation de la croissance du silicium polycristallin	89
1	Interfaces facettées	91
1.1	Approche cinétique	91
1.1.1	Facette de bord	91
1.1.2	Sillon facetté/facetté	95
1.1.3	La limite de l'approche cinétique	96
1.2	Approche géométrique	98

1.2.1	Activation des facettes	99
1.2.2	Identification des facettes	99
1.2.3	Croissance des facettes	101
1.2.4	Croissance d'un grain équiaxe	102
1.2.5	Facettes de bord	105
2	Germination d'un grain en relation de macle	108
2.1	Germination par capture	108
2.2	Orientations cristallographiques du grain maculé	110
3	Croissance de deux grains en relation de macle	113
3.1	Approche cinétique	113
3.1.1	Configuration divergente, $\phi_1 > \phi_2$	114
3.1.2	Configuration convergente, $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$	116
3.1.3	Configuration convergente, $(\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$	116
3.1.4	Résumé de l'approche cinétique	116
3.1.5	Application	119
3.2	Approche géométrique	122
3.2.1	Application	123
4	Conclusions	125
V	Applications et comparaisons expérimentales	127
1	Dispositif expérimental	129
2	Interface solide/liquide	129
2.1	Sillon rugueux/facetté	130
2.2	Sillon facetté/facetté	131
3	Monogermes et structure complète	133
3.1	Monogermes S1	133
3.1.1	Structure de grains expérimentale	133
3.1.2	Mise en donnée du calcul	135
3.1.3	Comparaisons qualitatives	137
3.1.4	Comparaisons quantitatives	143
3.2	Influence des paramètres numériques	146
3.2.1	Surfusion moyenne d'activation des facettes	146
3.2.2	Écart type	149
3.2.3	Vitesse des plans virtuels $\{111\}$	152
3.2.4	Conclusion sur l'étude paramétrique	153
3.3	Monogermes S2	155
3.3.1	Structure de grains expérimentale	155
3.3.2	Mise en donnée du calcul	157
3.3.3	Comparaisons qualitatives	157
3.3.4	Comparaisons quantitatives	159
4	Calculs à l'échelle macroscopique	161
4.1	Mise en données des calculs	161
4.2	Calcul sans facettes $\{111\}$ ni germinations	162
4.3	Calcul avec facettes $\{111\}$ sans germinations	164
4.4	Calcul avec facettes $\{111\}$ et germinations	166
5	Conclusions	170

A	La seconde limite géométrique	177
1	Contexte	177
2	Formalisation	178
3	Carte de sélection CA	180
	Références	189

Liste des symboles et acronymes

Alphabet romain

I_v	Fonction d'Ivantsov	
A	Coefficient cinétique	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-1}$
a	Paramètre de maille cristallographique	m
A_α	Coefficient cinétique adapté selon α	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-1}$
A_ν	Aire d'une cellule ν	m^2
c	Compacité d'une maille	-
C_ν	Centre de la cellule ν	
D^l	Coefficient de diffusion dans le liquide	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
E_1	Fonction exponentielle intégrale	
G	Gradient de température	K m^{-1}
G_ν	Centre de l'enveloppe de croissance associée à la cellule ν	
g_ν	Fraction cellulaire	-
G_{App}	Gradient de température appliqué expérimentalement	K m^{-1}
g_i	Grain d'indice i	
I_ν^g	Indice d'appartenance à un grain g d'une cellule ν	
I_ν	Indice d'état d'une cellule ν	
k	Coefficient de partage	-
k_v^{crit}	Coefficient critique de rapport de cinétique	-
k_B	Constante de Boltzmanm	J K^{-1}
k_v	Coefficient de rapport de cinétique	-
L	Chaleur latente massique	J Kg^{-1}
l_{CA}	Taille de cellule	m
M	Valeur médiane	-
m_L	Pente du liquidus	$\text{K \%pds}^{-1}$
n	Exposant de cinétique	-
n_s^g	Densité surfacique de grains	m^{-2}
Pe	Nombre de Peclet	-
Q_1	Premier quartile	-
Q_3	Troisième quartile	-
r	Rayon d'une pointe de dendrite	m
r_c	Rayon critique de stabilité	m
S_ν	Pointe d'une enveloppe de croissance d'une cellule ν	
t	Temps macroscopique de simulation	s

T_f	Température de fusion	K
t_f	Temps macroscopique final de simulation	s
T_L	Température de liquidus	K
u	Réel aléatoire compris entre 0 et 1	-
V	Volume	m ³
v	Cinétique de pointe des enveloppes de croissance	m s ⁻¹
v^*	Vitesse de l'interface solide/liquide	m s ⁻¹
$v_{\{111\}}^c$	Vitesse des plans cristallographiques $\{111\}$ virtuels	m s ⁻¹
v_L	Vitesse du liquidus	m s ⁻¹
w	Composition massique	%pds
W_{PF}	Épaisseur de l'interface solide/liquide diffuse	m
Z	Nombre de plus proche voisins	-

Alphabet grec

α	Désorientation d'un grain par rapport à un axe donné	°
δl	Taille de marche	m
ΔT	Surfusion locale	K
Δt	Pas de temps macroscopique	s
$\Delta T_{\{111\}}^\mu$	Surfusion moyenne d'activation des facettes $\{111\}$	K
ΔT_N^μ	Surfusion moyenne de germination	K
$\Delta T_{\{111\}}^\sigma$	Écart type de surfusion d'activation des facettes $\{111\}$	K
ΔT_N^σ	Écart type de la surfusion de germination	K
ΔT_κ	Surfusion due à la courbure de l'interface solide/liquide	K
ΔT_ξ	Surfusion d'origine solutale	K
ΔT_c	Surfusion critique	K
ΔT_{div}	Surfusion divergente	K
$\Delta T_{N,T}$	Surfusion de germination d'un grain en relation de macle	K
ΔT_N	Surfusion de germination d'un grain d'orientation aléatoire	K
ΔT_s	Surfusion stationnaire	K
δx	Parcours infinitésimal d'une branche dendritique	m
η_1	Nombre de plus proches voisins sur l'interface	-
λ	Critère de Jackson	-
Ω	Supersaturation chimique	%pds
ϕ_i	Orientation cristallographique d'un grain d'indice i (2D)	°
Σ	Indice de coïncidence du modèle CSL	
σ^*	Constante de stabilité marginale	-
θ	Angle de joint de grains	°
φ	Fonction champ de phase	
$(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$	Angles d'Euler (3D)	°

Exposants

$x^{(\phi_1, \phi_2)}$	Valeur pour un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2)	
------------------------	--	--

x^ϕ	Valeur pour l'orientation cristallographique ϕ (2D)
$x^{(\varphi_1, \phi, \varphi_2)}$	Valeur pour les angles d'Euler (ϕ_1, ϕ, ϕ_2) (3D)
x^B	Valeur dans un sillon de joint de grains
x^E	Valeur au bord du domaine de simulation
x^{g_i}	Valeur du grain d'indice i
x^l	Valeur dans le liquide
x^s	Valeur dans le solide

Indices

x_0	Valeur initiale
$x_{\langle 100 \rangle}$	Relatif aux directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$
$x_{\langle 10 \rangle}$	Relatif aux directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$
$x_{\langle 111 \rangle}$	Relatif aux directions cristallographiques $\langle 111 \rangle$
$x_{\langle 11 \rangle}$	Relatif aux directions cristallographiques $\langle 11 \rangle$
$x_{\{111\}}$	Relatif aux plans cristallographiques $\{111\}$
$x_{\{11\}}$	Relatif aux plans cristallographiques $\{11\}$
x_μ	Relatif à une cellule liquide μ
x_ν	Relatif à une cellule solide ν
x_{capt}	Valeur au moment de la capture
x_{max}	Valeur maximale
x_{min}	Valeur minimale

Opérateurs

$\dot{x}$	Dérivée temporelle
$\bar{x}$	Valeur moyenne
$\tilde{x}$	Valeur exprimée selon un changement de repère

Acronymes

ANR	<u>A</u> gence <u>N</u> ationale de la <u>R</u> echerche
CA	<u>C</u> ellular <u>A</u> utomaton
CrySaLID	<u>C</u> rystallisation of seeded <u>S</u> ilicon, impact of <u>L</u> ight <u>I</u> mpurities and <u>D</u> efects
CSL	<u>C</u> oincidence <u>L</u> attice <u>S</u> ite
DNN	<u>D</u> endritic <u>N</u> eedle <u>N</u> etwork
EBSD	<u>E</u> lectron <u>B</u> ack <u>S</u> catter <u>D</u> iffraction
ESRF	<u>E</u> uropean <u>S</u> ynchrotron <u>R</u> esearch <u>F</u> acility
FE	<u>F</u> inite <u>E</u> lements
FOG	<u>F</u> avorably <u>O</u> riented <u>G</u> rain
GaTSBI	<u>G</u> rowth at high <u>T</u> emperature by <u>S</u> ynchrotron <u>B</u> eam <u>I</u> maging
IPF	<u>I</u> nverse <u>P</u> ole <u>F</u> igure
LG	<u>L</u> imite <u>G</u> éométrique
PF	<u>P</u> hase <u>F</u> ield
PTN	<u>P</u> arabolic <u>T</u> hick <u>N</u> eedle
rev-FOG	<u>r</u> evised- <u>F</u> avorably <u>O</u> riented <u>G</u> rain

Introduction générale

La solidification est la transformation d'une phase liquide en une ou plusieurs phases solides lors de son refroidissement. Les caractéristiques des structures de grains résultantes de cette transformation de phases, à savoir la distribution des orientations cristallographiques et la morphologie des cristaux, sont d'intérêt pour l'élaboration de pièces industrielles. En effet, cette structure influence fortement la redistribution des espèces chimiques, les propriétés mécaniques ou électriques des matériaux élaborés. C'est en effet lors de la solidification que se forment les divers défauts structuraux tels que les dislocations, les inclusions et précipités, les joints de grains et les fautes d'empilement atomique. L'étude des procédés de solidification, et plus particulièrement les liens entre les propriétés d'un matériau et sa microstructure, ont fait l'objet de nombreuses recherches par le passé.

En parallèle, l'essor de l'informatique a permis la naissance de méthodes numériques dédiées à la modélisation des procédés de solidification. La solidification fait intervenir une grande variété d'échelles spatiales et temporelles. Ce sont ces mêmes échelles qui caractérisent une méthode numérique. Certains modèles permettent de tenir compte de phénomènes physiques s'effectuant sur des domaines d'échelles de temps et de taille très fins. Inversement, d'autres modèles peuvent opérer à des échelles plus importantes, mais nécessitent des approximations aux échelles plus fines. C'est le cas du modèle CA-FE qui couple un automate cellulaire (CA - *Cellular Automaton*) et une résolution par éléments finis (FE - *Finite Element*). Initialement proposée par Gandin et Rappaz [Rap93 ; Gan94], et plus récemment améliorée par Carozzani [Car12], cette approche vise à modéliser la structure externe des grains lors des procédés de solidification. Dans ce travail, deux parties distinctes utilisant cette approche sont proposées, à savoir la compétition de croissance de grains dendritiques et le développement des structures spécifiques au silicium polycristallin. Ces deux axes d'étude sont maintenant présentés séparément.

Croissance dendritique

La morphologie dendritique des grains est très fréquemment observée lors de la solidification d'alliages métalliques. Celle-ci se caractérise par un réseau de ramifications tel que l'illustre la figure 1. Les frontières, ou joints, de grains sont aussi aisément observables et correspondent aux interfaces entre deux cristaux de même structure cristalline ayant des orientations différentes. Elles se forment lorsque plusieurs grains entrent en contact lors de la solidification, et on parle généralement de compétition de croissance. Plusieurs études théoriques, fondamentales et numériques se sont principalement focalisées sur la microstructure interne des grains et non sur les joints de grains. Pourtant, ces frontières influencent les propriétés mécaniques des matériaux. Par exemple, leur présence entrave le déplacement des dislocations et intervient donc dans les procédés d'écrouissage. De plus, les joints de grains peuvent être le lieu de ségrégation d'éléments d'alliage qui viennent

diminuer leur énergie de cohésion et donc les fragiliser.

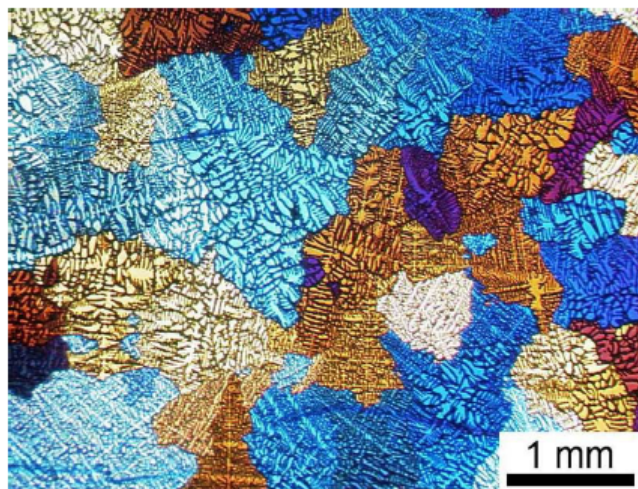


Figure 1 – Structure de grains dans un aluminium métallurgique, observée en lumière polarisée [Que03].

Croissance du silicium polycristallin

À l'heure où les dérèglements climatiques liés au réchauffement planétaire s'intensifient, l'exploitation des énergies renouvelables devient une solution inévitable. En France, entre 2006 et 2016, la part des énergies renouvelables pour la production d'énergie est passée de 9,3 % à 16 % [Min16]. La loi relative à la transition énergétique, adoptée par le Parlement en 2015, indique que cette part de production doit atteindre 32 % d'ici 2030 [Ene16]. Cependant, le photovoltaïque couvre actuellement moins de 2 % dans la production d'électricité utilisant des énergies renouvelables [Lib16].

L'énergie solaire correspond au rayonnement électromagnétique émis par le Soleil et parvenant à la surface de la Terre. Ce rayonnement est à l'origine de nombreuses énergies sur Terre, à l'exception de la géothermie et de l'énergie nucléaire. Son utilisation est loin d'être récente : dans l'Antiquité, les Grecs l'utilisaient pour allumer la flamme olympique. Ceci correspond à une utilisation thermique de l'énergie solaire, et celle-ci peut aussi être utilisée afin de produire de l'énergie électrique par effet photoélectrique. Ce principe physique a été découvert par Antoine Becquerel en 1839 et expliqué par Albert Einstein en 1905, le prix Nobel lui ayant été attribué en 1921 pour ces travaux. L'effet photoélectrique correspond à l'émission d'électrons, et donc à la génération d'un courant électrique, par un matériau soumis à un flux de photons. Néanmoins, tous les matériaux ne peuvent produire de l'électricité par excitation lumineuse.

En physique quantique des solides, la théorie des bandes donne une modélisation discrète des niveaux d'énergie pour les électrons à l'intérieur d'un corps solide. Lorsque la température du solide s'approche du zéro absolu, on distingue deux types particuliers de bande d'énergie : la bande de valence entièrement remplie en électrons et la bande de conduction, vide ou partiellement remplie. L'écart en énergie séparant ces deux bandes est couramment noté bande interdite ou « gap ». Ces définitions permettent de classer électriquement les matériaux solides en trois types : isolant, semi-conducteur et conducteur. Les métaux sont des matériaux conducteurs. Pour ceux-ci, la bande de valence et la bande

de conduction se chevauchent et aucun apport énergétique est nécessaire pour permettre un déplacement d'électrons. En revanche, le gap est important pour les isolants et les électrons ne peuvent passer de la bande de valence à la bande de conduction. Enfin, le gap des semi-conducteurs, tel que le silicium, est faible et permet à certains électrons de transiter vers la bande de conduction par apport d'énergie.

Le silicium est le matériau semi-conducteur le plus utilisé, à la fois pour la fabrication des transistors et des panneaux solaires. Il est généralement solidifié sous forme de lingots qui sont découpés en plaquettes, ou « wafer », composant alors les cellules photovoltaïques. Industriellement, plusieurs procédés sont employés pour l'élaboration des lingots. Le procédé de Czochralski permet de former des lingots de silicium monocristallins et consiste en une solidification dirigée à partir d'un petit monocristal de silicium introduit dans un bain liquide de silicium. Le petit germe est ensuite tiré verticalement et le silicium fondu se solidifie à son contact, tout en conservant son orientation cristalline par épitaxie. Un autre procédé correspond à une solidification dirigée de type Bridgman et permet la production de lingots polycristallins. C'est cette méthode qui est étudiée dans ce travail. Dans celle-ci, du silicium partiellement fondu est placé dans un four qui dispose de deux éléments chauffants à des températures différentes. Cette différence de température crée un gradient de température unidirectionnel. Par la suite, les éléments chauffants sont refroidis afin d'initier la solidification et le déplacement de l'interface solide/liquide. Les applications photovoltaïques actuelles se basent essentiellement sur l'utilisation du silicium polycristallin.

Bien que le silicium monocristallin ait un rendement photoélectrique supérieur, son coût de production est plus important, faisant alors du silicium polycristallin un matériau plus avantageux en terme de ratio énergie/coût. La figure 2 montre un lingot de silicium polycristallin. On voit des grains de tailles et d'orientations cristallines très différentes. De plus, plusieurs bandes parallèles sont observables et correspondent à la présence de grains en relation de macle. Lors de sa croissance, le silicium forme régulièrement des interfaces solide/liquide facettées, et ce sont sur ces interfaces que des grains en relation de macle peuvent germer [Duf10]. La structure granulaire est en grande partie responsable du rendement photoélectrique de la cellule solaire. Lors de la solidification, plusieurs défauts apparaissent tels que des dislocations, les joints de grains, des macles ou la ségrégation d'impuretés. Actuellement, le lien entre les paramètres du procédé industriel et ces défauts sont encore flous, cela limitant le contrôle et la reproductibilité des procédés industriels. C'est dans ce cadre que s'inscrit le projet ANR CrySaLID (*Crystallisation of seeded Silicon, impact of Light Impurities and Defects*) [ANR15] qui vise à approfondir la compréhension des mécanismes de cristallisation du silicium. Quatre axes d'études sont abordés, à savoir : (i) la compétition de croissance entre grains, (ii) le phénomène de maclage, (iii) la germination de grains parasites et (iv) l'effet des impuretés et du dopage. Pour ce faire, le projet CrySaLID s'appuie sur une collaboration entre différents acteurs académiques qui sont :

- IM2NP Institut Matériaux Microélectronique et Nanosciences de Provence (France)
- ARMINES-CEMEF Centre de Mise en Forme des Matériaux MINES Paris-Tech (France)
- SIMAP Laboratoire Sciences et Ingénierie des Matériaux et Procédés (France)
- KAU Karlstad University (Suède)
- NTNU Norwegian University of Science and Technology (Norvège)
- SINTEF Stifelsen SINTEF (Norvège)

Notre travail se focalise sur le point (ii), à savoir la germination de grains en relation de

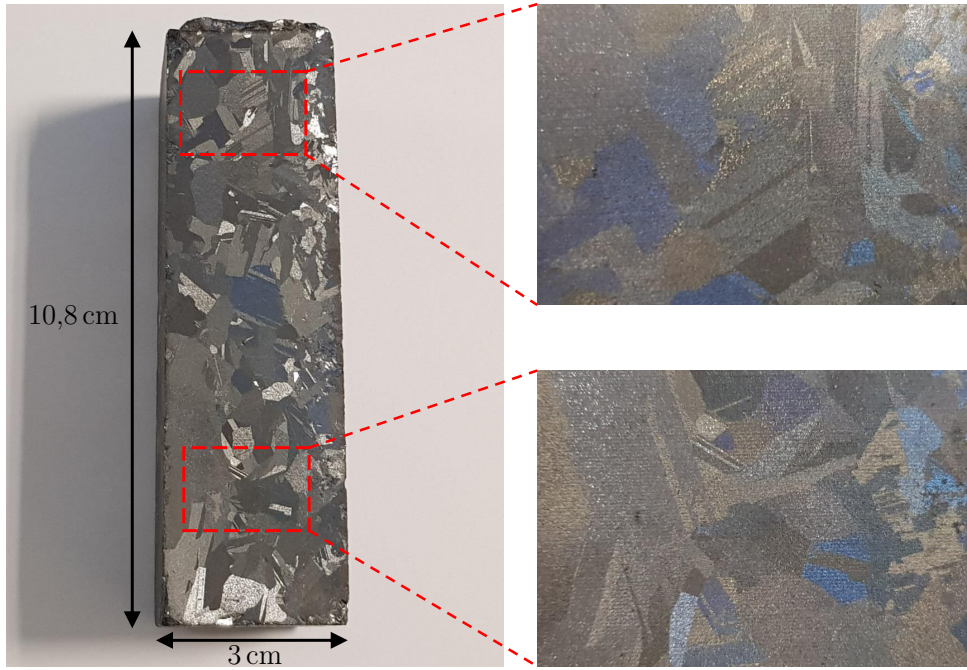


Figure 2 – Lingot de silicium polycristallin. Les agrandissements permettent de mieux distinguer les bandes parallèles correspondant à des grains en relation de macle.

macle. L’approche automate cellulaire mentionnée précédemment sera utilisée et enrichie afin de modéliser les spécificités de la croissance du silicium polycristallin : la formation d’interfaces facettées et la germination de grains maclés. Pour construire notre modèle nous nous basons essentiellement sur des observations expérimentales *in situ* effectuées par l’IM2NP à l’ESRF (*European Synchrotron Radiation Facility*, Grenoble, France) et des caractérisations *ex situ*. Ces données permettent à la fois d’étudier l’évolution temporelle de la morphologie de l’interface solide/liquide, mais aussi de caractériser la structure de grains finale par analyse EBSD (*Electron BackScatter Diffraction*) et CSL (*Coincidence Lattice Site*).

Organisation du manuscrit

Dans un premier temps, chapitre I, nous présentons des observations expérimentales liées à la croissance dendritique et au silicium polycristallin. Pour la croissance dendritique, nous nous focalisons sur la morphologie granulaire et sur la compétition de croissance entre grains. Concernant le silicium polycristallin, nous présentons des observations montrant l’interface solide/liquide, des interfaces facettées et des phénomènes de germination de grains en relation de macle.

Dans le chapitre II, nous donnons un état de l’art des modèles numériques utilisés pour simuler les phénomènes sus-cités. Une liste exhaustive des méthodes numériques employées pour la modélisation des processus de solidification n’est donc pas donnée.

L’étude de la compétition de croissance dendritique est abordée dans le chapitre III. Elle propose principalement une comparaison entre l’approche CA et le modèle champ de phase [Tou17]. Nous étudions aussi les observations expérimentales de compétition de croissance dendritique effectuées par Esaka [Esa86].

L’enrichissement de l’approche CA pour la modélisation de la croissance du silicium est

développé dans le chapitre IV. Les stratégies mises en place pour modéliser la formation et la croissance d'interfaces facettées, ainsi que la germination de grains en relation de macle sur celles-ci, sont successivement présentées. Pour ces phénomènes, deux approches dites *cinétique* et *géométrique* ont été développées. Nous expliquons pourquoi l'approche *géométrique* est préférée à l'approche *cinétique*.

Finalement, le chapitre V vise dans un premier temps à appliquer le modèle numérique à des configurations expérimentales. Premièrement, la morphologie de l'interface solide/liquide est modélisée. Puis, deux structures de grains partant d'un germe unique sont simulées. Pour ces cas, des comparaisons qualitatives et quantitatives sont effectuées. Enfin, le modèle est appliqué à un cube aux dimensions centimétriques, bien qu'aucune comparaison expérimentale ne soit possible par manque de données. Le but est de mettre en évidence l'influence de la formation d'interfaces facettées et de la germination de grains macclés sur la structure de grains finale, en comparaison avec une structure de grains dendritique.

Chapitre I

Observations expérimentales

Ce premier chapitre est dédié aux observations expérimentales de la croissance dendritique et du silicium polycristallin. Pour la croissance dendritique, la morphologie des grains est présentée, puis la compétition de croissance est abordée. Nous discutons aussi les spécificités de la croissance du silicium polycristallin, à savoir, en particulier, la formation d'interfaces facettées et la germination de grains en relation de macle.

Sommaire

1	Introduction	9
2	Croissance de grains dendritiques	10
2.1	Morphologie granulaire dendritique	10
2.2	Compétition de croissance dendritique	11
3	Structures de grains du silicium polycristallin	13
3.1	Généralités	13
3.2	Les morphologies facettées et rugueuses	14
3.3	Les sillons de joints de grains	15
3.4	Observations <i>in situ</i> de l'interface solide/liquide	17
3.5	Le phénomène de maclage dans le silicium	19
3.6	Structure de grains et rendement photoélectrique	22
4	Conclusions	24

1 Introduction

Dans le liquide, les atomes sont en mouvement perpétuel et il est possible que plusieurs atomes se regroupent temporairement sous la forme d'agrégats atomiques ayant une structure solide. Si localement la température au niveau de l'agrégat est supérieure à la température de fusion, T_f , l'agrégat est instable thermodynamiquement et se défait, sa présence ayant conduit à une augmentation locale de l'énergie libre du système. Pour une température inférieure à T_f , les agrégats d'atomes peuvent potentiellement devenir stables et former des germes solides. La condition de stabilité de l'agrégat peut s'écrire en considérant sa morphologie comme sphérique, son énergie de surface de l'interface solide/liquide, σ , et la variation de l'enthalpie libre par unité de volume, ΔG_v . On définit donc une barrière d'énergie, ΔG_N , sous la forme :

$$\Delta G_N = \sigma 4\pi r_c^2 - \frac{4\pi r_c^3}{3} \Delta G_v \quad (\text{I.1})$$

où r_c est le rayon critique au-delà duquel l'agrégat solide devient stable. Cette germination est dite *homogène* et peut se produire, dans les métaux, pour des surfusions importantes de plusieurs centaines de Kelvin [Baï09]. La surfusion correspond à la différence entre la température d'équilibre T_{eq} , et la température locale, T :

$$\Delta T = T_{eq} - T \quad (\text{I.2})$$

La température d'équilibre est assimilée à la température de fusion, T_f , dans le cas d'une substance pure, ou à la température de liquidus, T_L , dans le cas d'un alliage. En pratique, la solidification ne débute que pour des surfusions rarement supérieures à quelques degrés et la germination homogène ne se produit pas. La germination est favorisée sur un substrat ou des impuretés et on parle alors de germination *hétérogène*. Dans ce cas, la morphologie de l'agrégat est assimilée à une calotte sphérique. La probabilité de formation d'un germe ayant cette morphologie est beaucoup plus importante que celle de la formation d'un germe sphérique, car dans le second cas, le nombre d'atomes nécessaire est beaucoup plus grand et la barrière d'énergie ΔG_N plus élevée [Baï09].

Après la germination, la morphologie de l'interface solide/liquide n'est pas nécessairement stable et cela est en lien avec l'anisotropie de l'énergie interfaciale, la cinétique de diffusion de l'énergie et du soluté, ou la cinétique d'attachement des atomes à l'interface. On distingue généralement trois morphologies d'interface solide/liquide [Kur98] :

- La morphologie plane, où le front de solidification est donc plan et les perturbations disparaissent. Cette morphologie est couramment observée dans la croissance du silicium. De plus amples détails sont donnés dans la section 3.
- La morphologie cellulaire caractérisée par la croissance de cellules alignées par rapport à la direction du gradient de température.
- La morphologie dendritique, très fréquemment observée dans les alliages métalliques, où les perturbations s'intensifient avec le temps.

En plus de cette description, l'interface solide/liquide peut morphologiquement être rugueuse ou facettée. La plupart des métaux cristallisent avec une interface rugueuse. En revanche, les semi-conducteurs tels que le silicium peuvent faire apparaître des interfaces facettées, comme nous allons le voir plus précisément dans la section 3.

2 Croissance de grains dendritiques

2.1 Morphologie granulaire dendritique

À l'échelle microscopique, la morphologie granulaire dendritique peut se décrire comme un réseau ramifié provenant d'un germe initial. Après une rapide croissance à morphologie sphérique, le germe se développe sous la forme de dendrites dont les pointes peuvent être assimilées à des paraboles. La croissance du germe s'effectue ensuite selon des directions cristallographiques préférentielles liées à la cinétique d'attachement des atomes et à l'anisotropie d'énergie interfaciale. Les branches dendritiques dites primaires croissent selon ces directions préférentielles, puis des ramifications apparaissent et correspondent aux branches dendritiques secondaires. Un exemple de microstructure dendritique est montré en figure I.1.

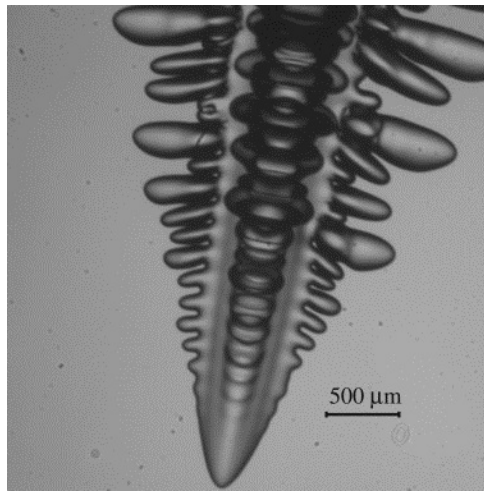


Figure I.1 – Observation expérimentale d'une dendrite d'un alliage transparent de succinonitrile-acétone [Mel12].

À l'échelle macroscopique, les grains peuvent croître selon deux morphologies : colonnaire et équiaxe. Si l'on considère la solidification d'un métal en fusion dans un moule, celui-ci est habituellement refroidi par l'intermédiaire des parois de la lingotière. La température y est localement inférieure à la température de fusion, la surfusion est donc importante, et de nombreux germes de petite taille cristallisent sur les parois avec des orientations aléatoires. Les grains correspondants sont alors dits équiaxes. Les zones du lingot où ces événements se produisent sont généralement appelées zones de peau. Une fois ces zones formées, le gradient de température dans le liquide diminue. La croissance se poursuit et les grains dont les directions de croissance sont les mieux alignées par rapport au gradient thermique sont privilégiés. Il a fréquemment été observé expérimentalement que ces grains bien orientés peuvent croître au détriment des autres [Gan94], résultant en une compétition de croissance qui est plus précisément introduite dans la sous-section suivante. Une nouvelle zone se forme, couramment appelée zone basaltique, et les grains en croissance ont tendance à s'aligner selon la direction du gradient de température. Ces grains sont dits colonnaires. Finalement, des germinations hétérogènes de grains équiaxes se produisent dans le liquide surfondu en avant du front de solidification colonnaire. Ces germinations peuvent apparaître si, naturellement, la surfusion dans le liquide est suffisamment grande, mais aussi si des substrats sont localement présents. Ces substrats sont par

exemple des bras dendritiques fragmentés, des impuretés ou des inoculants volontairement ajoutés dans le bain liquide pour favoriser ces germinations équiaxes. Si la zone de liquide surfondu est assez développée, les grains équiaxes vont croître et bloquer le front colonnaire par interactions mécaniques et solutales [Mar03]. Si la transition colonnaire-équiaxe n'est pas modélisée dans ce travail, la figure I.2 permet de bien observer les grains à morphologie colonnaire, qui eux, sont particulièrement étudiés tout au long de ce document.

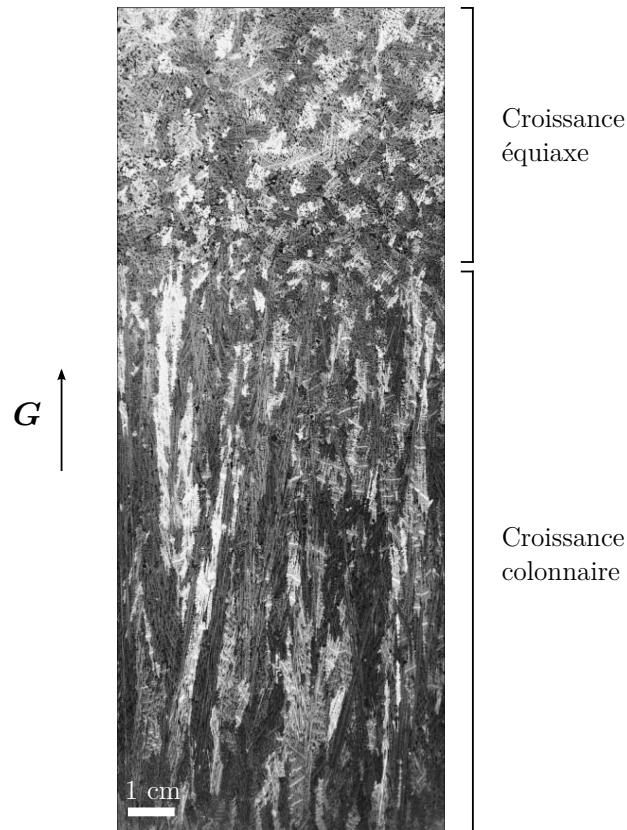


Figure I.2 – Observation expérimentale selon une coupe centrale d'un lingot cylindrique d'Al-7%pds Si. Les morphologies colonnaires et équiaxes sont clairement visibles [Gan00].

2.2 Compétition de croissance dendritique

Tel que décrit précédemment, dans la zone de peau, seuls les grains bien orientés par rapport au gradient local de température pourront continuer de croître et former la zone basaltique de grains colonnaires. La compétition de croissance se produit entre ces grains colonnaires. Cette sélection résulte en une diminution continue du nombre de grains et en l'apparition d'une texture où les grains sont tous globalement orientés selon une même direction, entraînant une anisotropie des propriétés mécaniques de la pièce finale. Notons que la sélection de croissance est utilisée dans l'industrie pour la production de certaines aubes de turbine. Un sélecteur de grain permet, selon une morphologie particulière, de favoriser la croissance d'un grain unique et de produire une pièce monocristalline [Ree06].

Les premières études expérimentales *ex situ* de la compétition de croissance ont été réalisées par Walton et Chalmers [Wal59]. Les auteurs ont effectivement observé que seuls les grains bien orientés peuvent survivre à la compétition de croissance. Par la suite, Esaka [Esa86] a observé ces mêmes phénomènes *in situ* par microscopie optique en

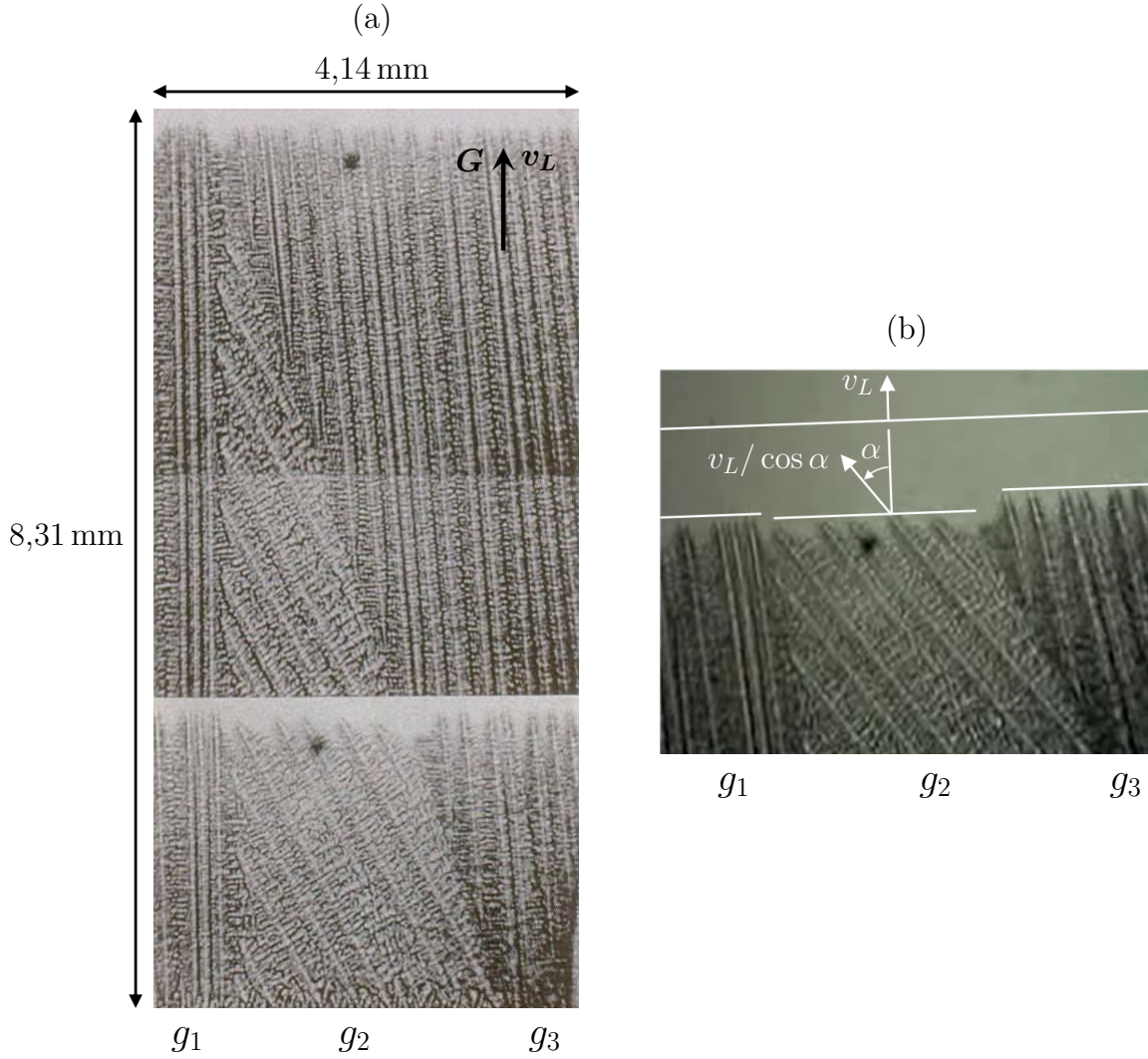


Figure I.3 – Observation expérimentale par microscopie optique en transmission d'un alliage succinonitrile-0,4%pds acétone montrant un exemple de compétition de croissance dendritique. La configuration étudiée consiste en trois grains notés g_1 , g_2 et g_3 . Le grain du milieu, g_2 , est le plus désorienté et n'a pas survécu à la compétition de croissance. Structure (a) entièrement solidifiée et (b) partiellement solidifiée. Figure adaptée de [Esa86].

transmission sur un alliage transparent de succinonitrile-0,4%pds acétone, comme montré en figure I.3. Cette expérience consiste en une solidification dirigée, à gradient et vitesse de refroidissement constants, de trois grains notés g_1 , g_2 et g_3 . La figure I.3 (a) montre que le grain central g_2 , le plus désorienté, n'a pas survécu à la compétition de croissance. Pour l'expliquer, il faut considérer que la vitesse d'une dendrite est reliée, dans cette expérience, à sa désorientation par rapport au gradient de température. Cette désorientation est notée α et pour une dendrite donnée, afin de maintenir une croissance stationnaire, sa vitesse de croissance est égale à $v_L / \cos(\alpha)$ où v_L est la vitesse du liquidus. Ainsi, plus la dendrite est désorientée (α grand), plus sa vitesse est grande. La vitesse des dendrites est localement fonction de la surfusion. La surfusion de croissance, ΔT , des dendrites désorientées est plus grande que celle des dendrites mieux orientées. Ces dernières croissent donc en avant des dendrites désorientées, c'est-à-dire plus proche du liquidus. Ceci est effectivement visible figure I.3 (b), où le front associé au grain g_2 , le plus désorienté, est en retrait. La relation entre désorientation et surfusion sera plus précisément détaillée dans le chapitre

III. De plus, nous verrons que la sélection de croissance est intimement liée aux orientations cristallographiques des grains en compétition.

Les principales conclusions de Walton et Chalmers, et Esaka, sont que les dendrites les mieux alignées par rapport au gradient de température sont systématiquement favorisées. Ces conclusions sont à nuancer avec les travaux plus récents de Zhou *et al.* [Zho08]. Les auteurs ont étudié la compétition de croissance en solidification dirigée pour un bicristal de superalliage base nickel et ont observé que des dendrites désorientées peuvent éliminer des dendrites mieux orientées.

Notons finalement que l'étude expérimentale de la compétition de croissance n'est pas aisée. Premièrement, il est compliqué d'imposer des orientations cristallographiques choisies aux germes initiaux. De plus, les paramètres de solidification doivent être finement contrôlés afin d'éviter toute germination de grains équiaxes, ces germinations viendraient alors contraindre la sélection de croissance. Il faut enfin effectuer des expériences en maintenant les paramètres G et v_L constants pendant une durée assez grande afin d'atteindre des conditions stationnaires. La modélisation numérique de cette sélection a fait l'objet de plusieurs récents travaux, comme nous allons le voir dans le prochain chapitre.

3 Structures de grains du silicium polycristallin

3.1 Généralités

Le silicium est un matériau qui cristallise selon une structure cristallographique de type diamant, c'est-à-dire un réseau cubique à faces centrées où quatre des huit sites tétraédriques sont occupés. Le paramètre de maille a vaut 0,357 nm et la compacité c du cristal est environ égale à 0,34. Un atome de silicium a quatre plus proches voisins avec lesquels il forme des liaisons covalentes.

À l'échelle macroscopique, la structure de grains obtenue après solidification est en grande partie responsable des propriétés photoélectriques du panneau solaire. La taille des grains, les types des joints de grains ou la germination de grains en relation de macle impactent fortement le rendement final de la cellule photovoltaïque. Généralement, un wafer de silicium polycristallin a des grains qui sont hétérogènes selon leur morphologie, leur taille et leurs orientations cristallographiques.

Comme le montre la figure I.4 (a), la structure granulaire du silicium polycristallin se compose essentiellement de grains colonnaires de taille centimétrique, de macles et de petits grains, s'apparentant à des grains équiaxes et couramment nommé « grits », dont la taille est inférieure à 1 mm. Ces petits grains abaissent l'efficacité de la cellule solaire et rendent la découpe du wafer plus difficile. Les wafers présentant ces défauts sont généralement rejetés et causent une augmentation des coûts de production [Duf10].

Les macles sont fréquemment observées et peuvent être considérées comme des frontières entre grains colonnaires présentant des relations cristallographiques particulières. Elles sont mises en évidence par les bandes parallèles figure I.4 (b) et constituent aussi des défauts. Leurs effets sur le rendement photovoltaïque sont présentés ci-après. La structure de grains idéale d'un wafer de silicium polycristallin consiste donc en de multiples larges grains colonnaires. De ce fait, une connaissance approfondie des effets des paramètres du procédé de solidification sur la structure de grain est requise. Bien que ces effets restent actuellement mal maîtrisés, Lan *et al.* [Lan12] ont étudié expérimentalement l'influence de l'isolation thermique d'un four sur la structure finale de grains lors d'un procédé de solidification dirigée. Des expériences réalisées avec une isolation thermique de la partie

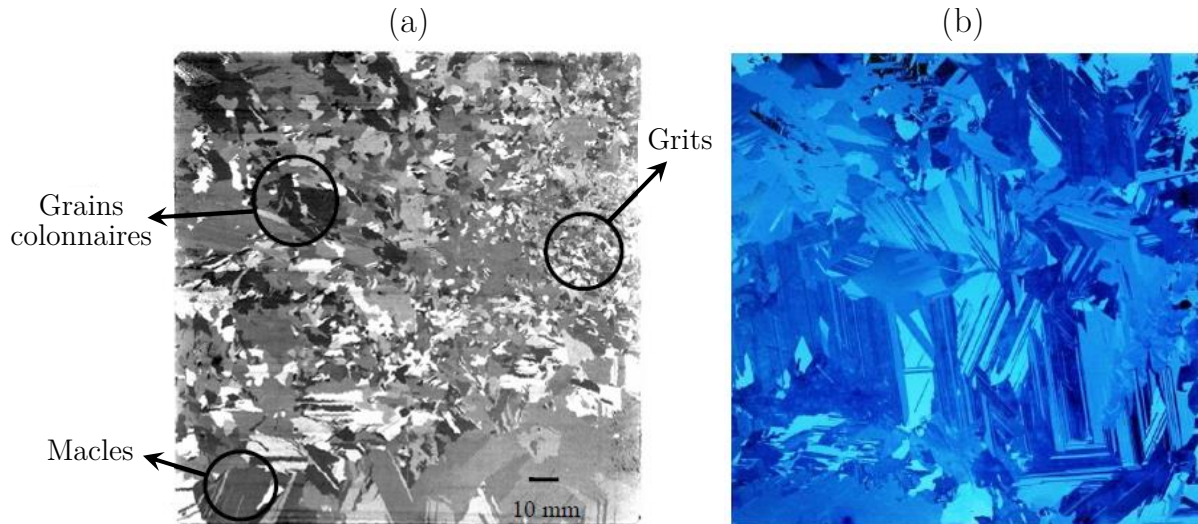


Figure I.4 – (a) Microstructure d'un wafer défectueux. Les petits grains, « grits », sont particulièrement néfastes pour le rendement photovoltaïque [Duf10]. (b) Microstructure montrant de nombreuses macles. [Tan13a].

supérieure du four montrent que les grains sont globalement alignés selon la direction verticale du gradient de température. De plus, peu de germinations sur les parois latérales du creuset sont observées. Sans l'isolation de la partie supérieure du four, la croissance des grains ne s'effectue plus selon la direction du gradient thermique et cet effet est particulièrement marqué en s'éloignant de la partie centrale du lingot.

Mangelinck-Noël et Duffar [Man08] ont proposé un modèle théorique permettant de préciser l'apparition des petits grains (grits) en avant du front de solidification. Ces germinations sont à corréliser avec la présence de carbures ségrégeant dans le liquide et la germination de grits est favorisée par la précipitation de particules de SiC. Utiliser du silicium moins contaminé en carbone permet donc de réduire ces phénomènes. De plus, un gradient de température important permet de diminuer la zone de liquide surfondu et de limiter la germination de grains équiaxes.

3.2 Les morphologies facettées et rugueuses

Durant la solidification, la croissance d'un germe est fonction de plusieurs facteurs fondamentaux, à savoir la cinétique d'attachement des atomes à l'interface solide/liquide, la capillarité et la diffusion de la chaleur et des espèces chimiques [Tan13a]. Afin de préciser la morphologie de croissance de l'interface solide/liquide, il convient d'étudier la cinétique d'attachement des atomes. Lors de la cristallisation, la forme des grains est fonction de la structure à l'échelle atomique de l'interface. Pour la majorité des alliages métalliques, les atomes provenant du liquide peuvent aisément rejoindre l'interface et la morphologie du cristal est principalement fonction de la capillarité et de la diffusion [Kur98]. Pour le silicium, l'attachement des atomes est moins aisé, ce qui induit une croissance retardée comparativement aux alliages métalliques [Duf10 ; Kur98]. La figure I.5 montre les différences à l'échelle microscopique et macroscopique des interfaces rugueuses et facettées.

Lors de la présence d'une facette, l'interface a tendance à maximiser les liaisons entre les atomes du cristal et ceux présents à l'interface. De ce fait, peu de liaisons sont disponibles pour les atomes arrivant du liquide par diffusion. Ce processus est caractérisé par une

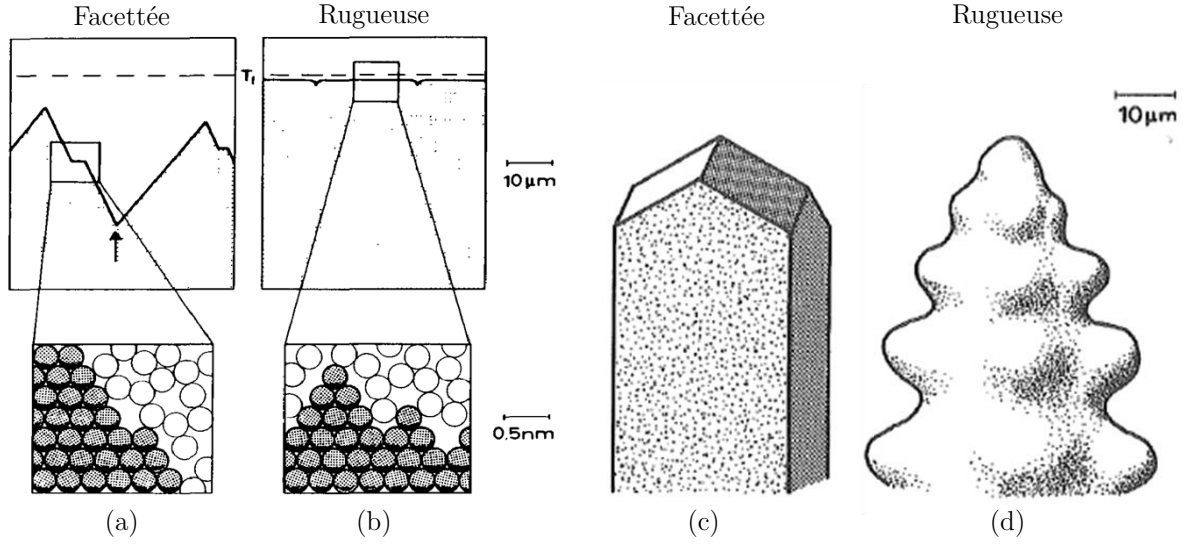


Figure I.5 – Morphologies microscopiques d’une interface (a) facettée et (b) rugueuse. Morphologies macroscopiques d’une interface (c) facettée et (d) rugueuse. Figure adaptée de [Kur98].

surfusion cinétique importante. Inversement, une interface rugueuse présente plus de sites favorables pour l’attachement d’atomes provenant de la phase liquide et la surfusion cinétique associée est plus limitée.

Jackson [Jac84] a proposé un critère permettant de prédire la morphologie facettée ou rugueuse d’une interface solide/liquide. Ce critère est donné par :

$$\lambda = \frac{\eta_1 L}{k_B T_f Z} \quad (\text{I.3})$$

où L est l’enthalpie de fusion, η_1 le nombre de plus proches voisins sur l’interface, k_B la constante de Boltzmann, T_f la température de fusion et Z le nombre de plus proches voisins total. Ce critère énonce que, selon la valeur de λ , l’interface est facettée ou rugueuse. L’interface est rugueuse si $\lambda < 2$ et facettée si $\lambda > 2$. Pour le silicium, $\lambda = 2,7$ pour les plans $\{111\}$ et $\lambda < 2$ pour les autres plans. Ainsi, les facettes pouvant apparaître à l’interface solide/liquide sont uniquement formées sur des plans cristallographiques $\{111\}$. Ces différences morphologiques selon les directions cristallographiques ont été mises en évidence par Abe [Abe74] par topographie en rayons X. Il a été observé que les cristaux croissant selon une direction $\langle 111 \rangle$ présentaient une morphologie similaire à celle des isothermes et une morphologie facettée (plane) parallèle aux plans $\{111\}$. Dans les directions $\langle 100 \rangle$, l’interface adopte en tout point la morphologie des isothermes. À titre de comparaison, le tableau I.1 donne les valeurs de λ selon différents plans cristallographiques pour le silicium, l’aluminium et l’étain.

3.3 Les sillons de joints de grains

Lors de la solidification dirigée du silicium polycristallin, la compétition de croissance donne lieu à la formation de sillons aux joints de grains. Un sillon évolue selon les orientations cristallographiques des deux grains en compétition ainsi que selon leur vitesse de croissance. Il existe trois configurations possibles pour le sillon, celui-ci pouvant avoir une morphologie rugueuse/rugueuse, facettée/rugueuse ou facettée/facettée. La figure I.6 donne une schématisation 2D de ces différentes configurations.

Tableau I.1 – Valeurs du critère de Jackson λ [Jac84] selon les plans cristallographiques $\{100\}$, $\{110\}$ et $\{111\}$ pour le silicium, l'aluminium et l'étain. Ces trois matériaux solidifient respectivement en un réseau diamant, cubique à faces centrées (CFC) et tétragonal centré (TC) [Nag05].

	Si	Al	Sn
Structure	Diamant	CFC	TC
Croissance préférentielle	$\langle 100 \rangle$	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$
L (eV)	0,525	0,111	0,075
T_L (K)	1687	933,5	505,1
$\{100\}$, η_1/Z	1/4	4/12	2/2
λ	0,91	1,46	1,7
$\{110\}$, η_1/Z	2/4	2/12	2/2
λ	1,8	0,23	1,7
$\{111\}$, η_1/Z	3/4	6/12	0/2
λ	2,7	0,69	0,0

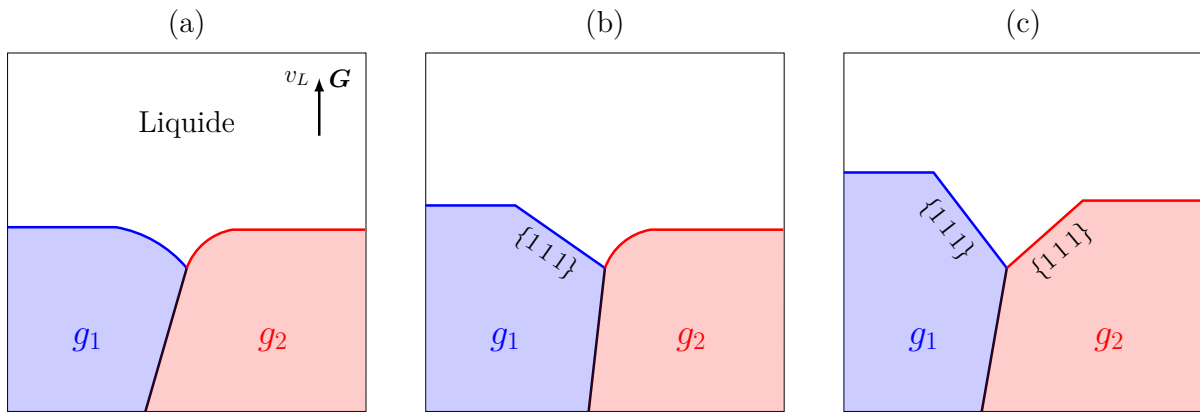


Figure I.6 – Représentation schématique en deux dimensions d'un sillon (a) rugueux/rugueux, (b) facetté/rugueux et (c) facetté/facetté. Les facettes sont des plans cristallographiques $\{111\}$.

On caractérise usuellement un sillon par son angle d'ouverture, sa profondeur et les orientations cristallographiques des deux grains en regard dans le sillon [Tan13a]. Il est aussi important de préciser qu'une facette peut se former sur l'une des parois du creuset, celle-ci pouvant alors être légitimement considérée comme un grain non désorienté vis-à-vis d'un gradient de température vertical, par exemple. Un grain peut potentiellement croître 8 facettes $\{111\}$, néanmoins, selon les conditions locales de refroidissement, certaines facettes $\{111\}$ ne peuvent se développer pour des raisons purement géométriques. Par exemple, en 2D, si l'on considère des isothermes planes, et si l'angle entre la normale à une facette donnée et la normale aux isothermes est supérieur à 45° , ou inférieur à -45° , (respectivement supérieur à $54,7^\circ$ ou inférieur à $-54,7^\circ$ en 3D) alors la facette ne pourra se développer. Nous verrons dans le chapitre 4 comment, selon le modèle numérique développé dans ce travail, sélectionner la facette $\{111\}$ la mieux orientée.

Nadri [Nad12] a proposé un modèle théorique, basé sur les travaux des Voronkov [Vor72], afin de prédire l'évolution temporelle d'un sillon de joint de grains. Pour un sillon rugueux/rugueux, la surfusion en son fond a été évaluée à 0,017 K, pour un gradient de température de 1000 K m^{-1} . En supposant le gradient de température constant, cela donne une profondeur de sillon très faible et égale à $17 \mu\text{m}$. Dans ce cas, le grain ayant la cinétique de croissance la plus importante détermine la direction de croissance du joint de grains. Un sillon facetté/facetté est caractérisé par deux facettes $\{111\}$ en regard ayant la même surfusion au fond du sillon. La vitesse de croissance des deux facettes est identique et le sillon suit la direction de la bissectrice formée par les angles entre les normales des facettes et le gradient de température. Finalement, dans le cas d'un sillon rugueux/facetté, l'orientation rugueuse présente une surfusion très faible et le joint de grains suit alors la facette [Bör02].

3.4 Observations *in situ* de l'interface solide/liquide

3.4.1 Dispositif d'observation

Le dispositif expérimental permettant les observations présentées ci-après est nommé GaTSBI (*Growth at high Temperature by Synchrotron Beam Imaging*). Ce dispositif est dédié au silicium et permet l'étude en temps réel de la croissance granulaire lors de la solidification. Il est composé conjointement d'un four haute température et d'une technique d'imagerie par rayons X (imagerie par diffraction de Bragg et radiographie). Le dispositif est employé à l'ESRF. GaTSBI fournit des informations sur la dynamique de l'interface solide/liquide. Il donne aussi accès à des informations propres aux grains comme leurs orientations cristallographiques, les niveaux locaux de distorsions ainsi que la nature des défauts structuraux. Le four constitue une configuration Bridgman et possède deux éléments chauffants séparés par une certaine distance. Une différence de température est appliquée entre les deux éléments chauffants et crée un gradient thermique. Le refroidissement constant des éléments chauffants permet d'initier la solidification. L'échantillon de silicium, de dimensions $38 \times 5,8 \times 0,3 \text{ mm}^3$, est placé dans un creuset en nitrure de bore. De plus amples détails sur le four seront donnés en section 1 du chapitre V. Aussi, le lecteur pourra trouver une description détaillée et schématisée du dispositif GaTSBI dans [Tan12 ; Rib15 ; Tso16].

3.4.2 Sillon facetté/facetté

Les clichés radiographie X de la figure I.7 montre l'évolution temporelle d'un sillon facetté/facetté. La bissectrice de ce sillon est schématisée au temps $t = 515$ s et est reportée sur les autres clichés de radiographie X. Comme proposé théoriquement [Nad12], le sillon évolue bien selon cette bissectrice. Cette observations est systématiquement retrouvée pour d'autres expériences et disponibles dans [Tan12 ; Tan13a ; Rib17].

1 mm

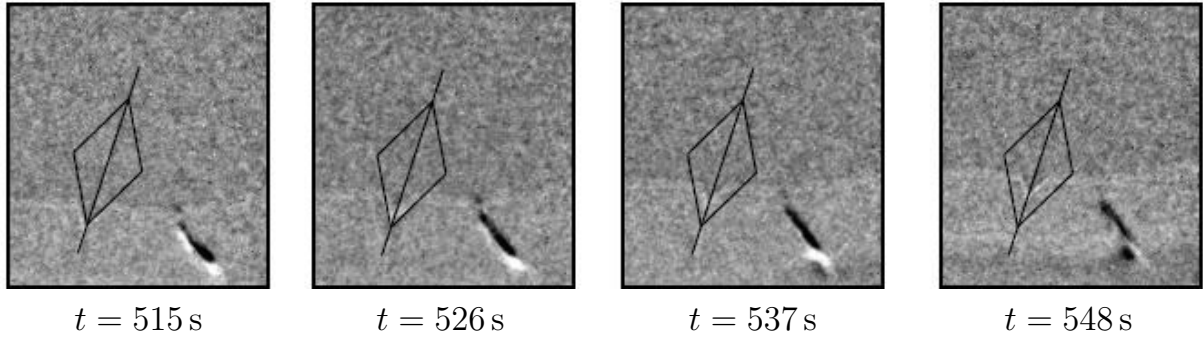


Figure I.7 – Clichés de radiographie X montrant l'évolution temporelle d'un sillon facetté/facetté. Le gradient de température vaut 900 K m^{-1} et la vitesse de refroidissement $0,5 \text{ K min}^{-1}$. Figure adaptée de [Tan13a].

3.4.3 Sillon rugueux/facetté

La figure I.8 montre, par des clichés radiographie X, l'évolution d'un sillon rugueux/facetté. La facette $\{111\}$ constituant le sillon est à droite. Comme proposé théoriquement [Nad12] le joint de grains suit la facette $\{111\}$ et non la bissectrice de l'angle du sillon.

1 mm

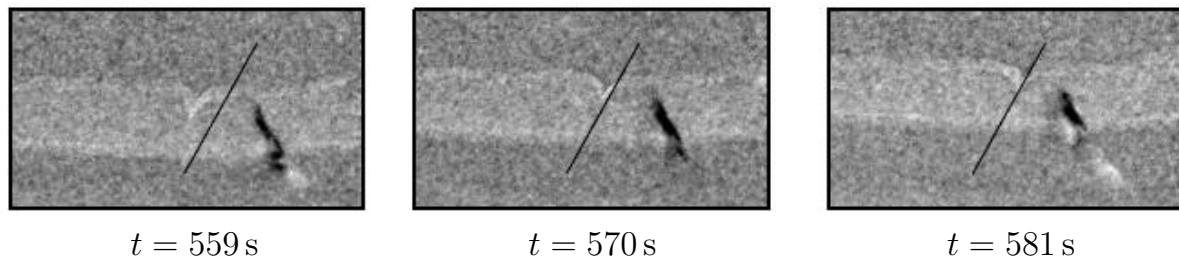


Figure I.8 – Clichés de radiographie X montrant l'évolution temporelle d'un sillon rugueux/facetté. Le gradient de température vaut 900 K m^{-1} , et la vitesse de refroidissement $0,5 \text{ K min}^{-1}$. Les traits noirs dessinés représentent l'orientation de la facette $\{111\}$ constituant le sillon. Figure adaptée de [Tan13a].

Comme écrit précédemment, la surfusion en fond d'un sillon rugueux/rugueux est très faible. Ce type de sillon est donc très peu profond et n'a pas pu être observé expérimentalement.

3.5 Le phénomène de maclage dans le silicium

3.5.1 Généralité sur les macles

Les macles sont généralement décrites comme un défaut d'empilement des couches atomiques. Par exemple, dans un réseau cristallin cubique à faces centrées, l'empilement théorique est [...ABCABCABC...] pour les plans compacts où A, B, et C sont des couches distinctes d'atomes. Cependant, au cours de la solidification, ou recristallisation d'un solide, cet ordre peut s'inverser. Ainsi, au dessus d'une couche A peut se trouver une couche C à la place d'une couche B. On parle alors d'une faute d'empilement cristallographique locale et symétrique : [CBACBA...]. La séquence de couches atomiques devient donc [...CABCACBAC...], comme le montre l'exemple figure I.9. La couche **A** constitue le plan de maclage et la partie du cristal en relation de macle [CBAC] est la symétrie de la partie non maclée par rapport au plan de macle (on parle aussi de plan miroir). Ainsi, ce plan contient les nœuds de réseaux cristallographiques partagés par les deux cristaux en relation de macle. Dans la littérature, cette surface est fréquemment appelée surface de composition [Tan13a].

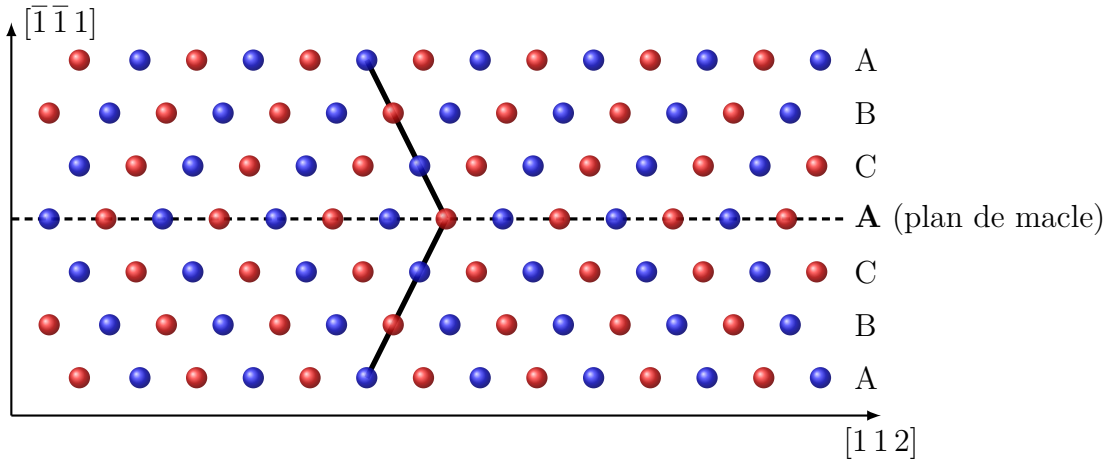


Figure I.9 – Représentation schématique d'un plan de macle, noté **A**, définissant une séquence symétrique de type [...CABCACBAC...].

Suivant la nature de la surface de composition, différents types de macles sont à distinguer [Cur57] :

- Macle par contact : les deux cristaux en relation de macle ont une surface de composition plane et l'opérateur de symétrie est donc un plan cristallographique. On parle de macles successives si les plans de macle sont parallèles entre eux. Si ces plans ne sont pas parallèles entre eux, on parle alors de macle cylindrique.
- Macle par pénétration : la surface de composition qui sépare les deux cristaux en relation de macle n'est pas régulière. L'opérateur de symétrie est alors un axe ou un centre de macle.

De plus, l'origine d'apparition des grains en relation de macle diffère [Bey14] :

- Macle de croissance : cette macle provient de la germination d'un nouveau cristal se formant à la surface d'un cristal préexistant. La relation de maclage provient de nœuds communs aux deux réseaux cristallographiques. Les orientations cristallographiques des deux grains sont différentes. Ce sont principalement des macles de contact et la surface de composition est alors un plan cristallographique commun aux deux réseaux. Ce processus fait donc apparaître un système bicristallin local.

- Macle de transformation : pour un cristal donné, ce type de macle résulte d’une transformation due à des changements de température et/ou de pression dans la phase solide.
- Macle de déformation : pendant une déformation, par exemple mécanique, les atomes du réseau cristallin d’un grain sont déplacés, hors de tout processus diffusif, résultant en un réarrangement symétrique qui forme la macle.

3.5.2 Les différents types de macles dans le silicium

Les macles sont présentes dans d’importantes proportions dans le silicium polycristallin. Il a été observé expérimentalement par Gallien *et al.* [Gal11] que dans un lingot de silicium polycristallin, plus de la moitié des joints de grains présentent une relation de maclage. Ces macles sont de type $\Sigma 3^n$ où Σ est l’indice de coïncidence donné par la théorie CSL qui décrit les sites atomiques communs entre deux grains adjacents où n est un entier supérieur ou égal à 0. Cet indice caractérise donc la désorientation entre deux réseaux cristallins distincts. Plus la valeur de Σ est grande, et plus le nombre de nœuds en commun est faible. Il peut également se traduire comme égal au rapport entre le volume de la maille de coïncidence et le volume de la maille du réseau [Sai12].

Dans le silicium, la majorité des joints de grains maclés sont de type $\Sigma 3$ et correspondent, selon le modèle CSL, à des défauts d’empilement dûs à une rotation de 60° par rapport à la normale d’un plan cristallographique $\{111\}$ [Duf10]. Un nouveau cristal germe donc sur un plan $\{111\}$ et présente une désorientation angulaire par rapport au grain initial. Ces macles correspondent à une formation par croissance et la surface de composition est donc un plan cristallographique $\{111\}$ (macle par contact). Comme observé expérimentalement, le silicium peut développer des facettes $\{111\}$ aux bords du moule ou à un sillon de joint de grains. C’est donc à ces endroits que des germinations de nouveaux grains en relation de macle sont souvent observées.

Des joints de grains maclés d’ordres supérieurs sont aussi souvent mis en évidence expérimentalement. Ceux-ci correspondent à des macles de type $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$. Les joints de macle $\Sigma 9$ résultent de la rencontre de deux grains formés par des macles $\Sigma 3$ à partir d’un même grain initial. Les joints de macle $\Sigma 27$ se forment, eux, suite à la rencontre de grains maclés $\Sigma 3$ et $\Sigma 9$. Les observations expérimentales données figure I.10 montrent les différents types de joints de grains maclés. On voit notamment, figure I.10 (c), l’intersection de deux joints de grains maclés, de type $\Sigma 3$ (en rouge) et $\Sigma 9$ (en bleu), formant un joint de grain maclé de type $\Sigma 27$ (en jaune). Aussi, la formation d’un joint de grains $\Sigma 9$ est observée. De plus, la figure I.10 montre que les macles $\Sigma 3$ sont largement majoritaires par rapport aux macles $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$. L’énergie de surface d’une macle $\Sigma 3$ est très basse ($0,06 \text{ J m}^{-2}$ [Bri99], $0,03 \text{ J m}^{-2}$ [Art90]) et peut donc apparaître facilement durant la croissance du silicium. À titre de comparaison, l’énergie de surface d’un joint de grains maclé $\Sigma 9$ vaut $0,64 \text{ J m}^{-2}$ [Rai71].

3.5.3 Maclages successifs et croissance

Nous venons de voir l’importance et la prépondérance des macles dans le silicium polycristallin. Nous allons maintenant étudier leur évolution et décrire un phénomène en particulier : celui du maclage successif ou multi-maclage. Les grains germant avec une relation de macle vont croître (macles de croissance) et entrer en compétition avec les grains initiaux. Ce processus a été étudié expérimentalement par Ribéri-Béridot *et al.*

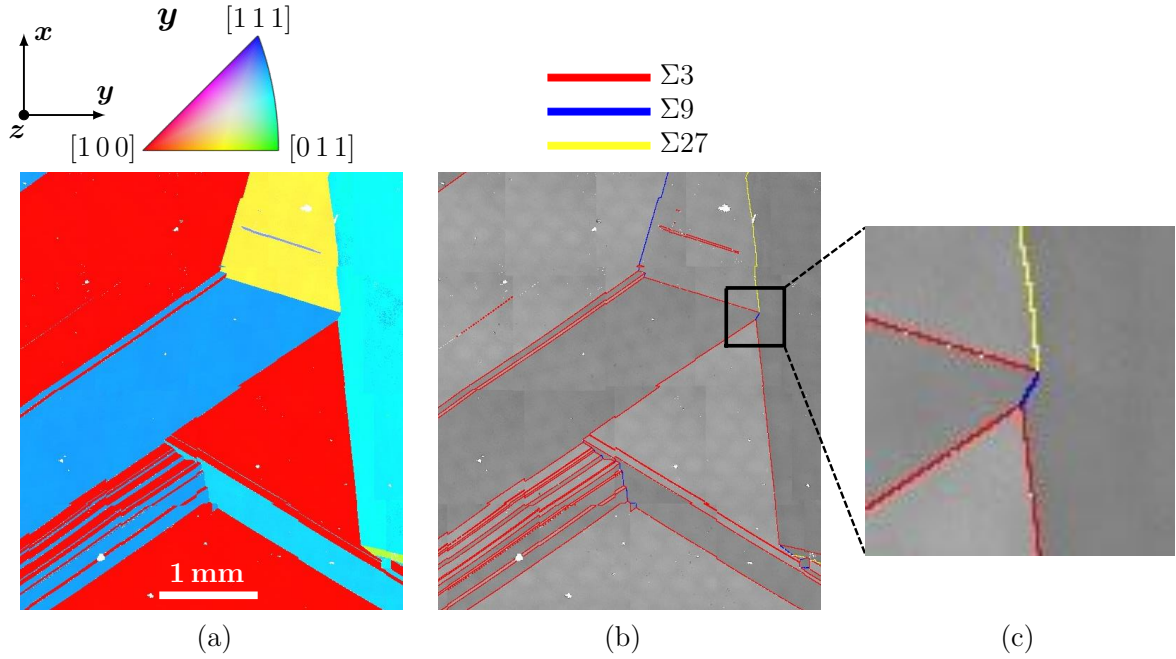


Figure I.10 – Observations expérimentales sur un échantillon de silicium montrant différents joints de grains maclés, avec (a) la carte EBSD selon la direction y transverse à la surface de l'échantillon, (b) la carte CSL et (c) un zoom sur celle-ci mettant en évidence la formation de deux joints de grains maclés de type $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$. Figure adaptée de [Rib17].

[Rib15]. La figure I.11 montre des observations expérimentales pour un échantillon de silicium pur solidifié.

Le phénomène de maclage successif est aisément observable¹ sur la carte EBSD, figure I.11 (c), avec par exemple pour le grain 7, l'alternance des couleurs rouge et bleu. De la même manière, un maclage successif est observé pour le grain n°8 avec l'alternance des couleurs bleu et violet. Aussi, on observe un mécanisme de compétition entre le grain 3 et les grains 7 et 8 et la croissance du grain 3 est ainsi stoppée. Cette structure de grains finale est donc largement non désirée dans le cadre d'un procédé de solidification dirigée à partir d'un germe initial unique, l'apparition de joints de grains étant défavorable pour la cellule solaire. La germination de grains en relation de macle et leur croissance modifient donc drastiquement la configuration des grains initiaux et la structure granulaire globale.

La figure I.12 (a–d) schématise en deux dimensions un processus de maclage successif au bord du moule. Premièrement (figure I.12 (a)), un grain initial g_1 croît en formant une facette $\{111\}$ de bord. Un grain g_2 germe en relation de macle sur cette facette $\{111\}$ (figure I.12 (b)) puis croît en formant aussi une facette $\{111\}$ de bord (figure I.12 (c)). Les orientations cristallographiques du grain g_2 correspondent à une rotation de 60° par rapport à la normale de la facette $\{111\}$ du grain g_1 . Finalement, un grain g_1 germe en relation de macle sur la facette $\{111\}$ du grain g_2 . Une rotation totale de 120° est appliquée par rapport à la normale de la facette $\{111\}$ du grain g_1 initial. De ce fait, les deux grains g_1 n'ont pas nécessairement les mêmes angles d'Euler, mais ont des directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ strictement équivalentes. Cela justifie l'alternance de couleurs observées sur les cartes EBSD (figures I.10 (a) et I.11 (c)) lors d'un processus de maclage successif. Ce phénomène été observé expérimentalement *in situ* en radiographie X comme le montre la figure I.12 (e–h).

1. Notons que ce phénomène est aussi observable figure I.10.

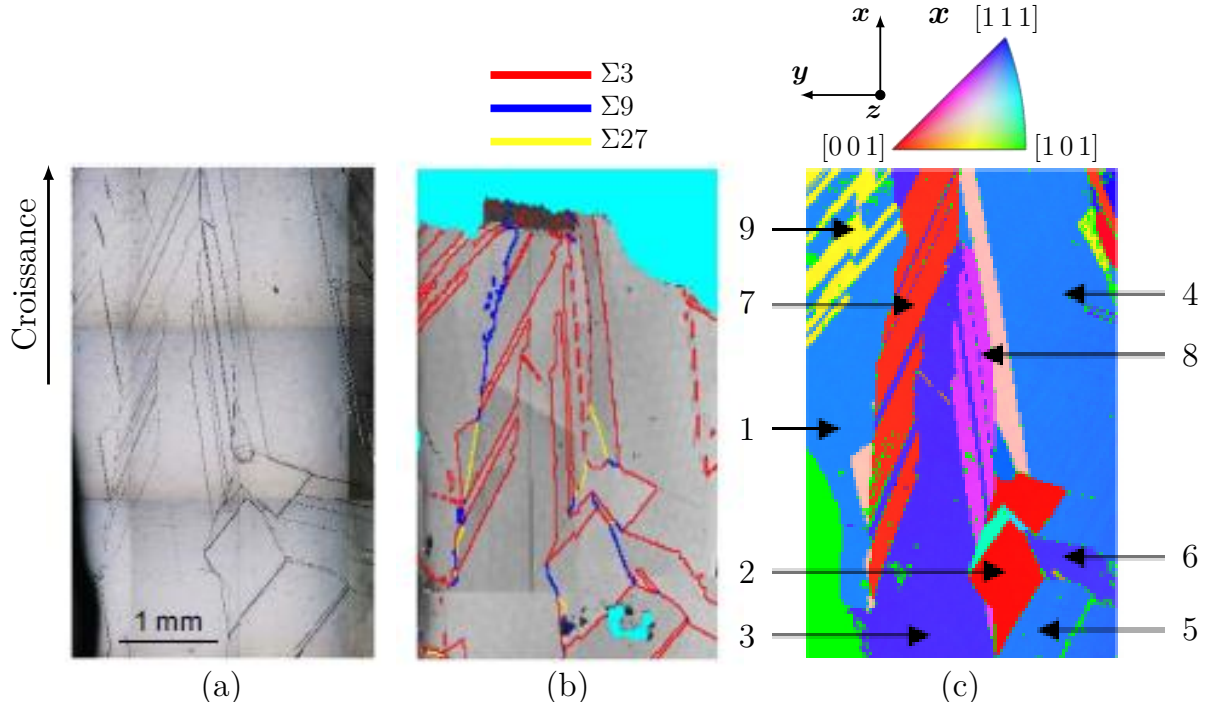


Figure I.11 – Échantillon de silicium pur polycristallin solidifié. (a) Observation au microscope optique, (b) carte CSL et (c) carte EBSD selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance. Les numéros distinguent les grains selon leurs orientations cristallographiques et mettent en évidence le phénomène de maillage successif. Figure adaptée de [Rib15].

3.6 Structure de grains et rendement photoélectrique

Outre les petits grains, « grits », la structure de grains d'un wafer industriel est composée en majorité de larges grains centimétriques [Duf10]. À cette échelle, la structure électronique, ou structure de bandes, du silicium polycristallin peut être assimilée à celle du silicium monocristallin. Néanmoins, les joints de grains constituent des défauts structuraux qui introduisent des niveaux d'énergie supplémentaires dans la bande interdite, à savoir le gap énergétique qui sépare la bande de valence de la bande de conduction. Ces niveaux d'énergie parasites modifient le transport et la diffusion des porteurs de charge en entraînant des recombinaisons de paires électron-trou. Les joints de grains influencent donc localement le champ électrique.

Les effets des joints de grains maclés ont été étudiés et leur impact n'est pas aussi important que celui des joints de grains aléatoires [Waw97]. Un joint de grains maclé $\Sigma 3$ est désorienté tel que ses liaisons atomiques soient saturées et n'introduisent pas de niveaux énergétiques supplémentaires dans la bande interdite. Ces joints de grains particuliers sont donc électriquement inactifs. Inversement, les joints de grains maclés $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$ présentent des liaisons pendantes, introduisent des niveaux d'énergie parasites dans la bande interdite, et sont donc électriquement actifs. En réalité, pour du silicium de très haute pureté, l'effet des joints de grains sur le rendement photoélectrique est considéré négligeable par rapport à l'effet des grains de petite taille. Selon Cizek *et al.* [Cis97], une décroissance notable de l'efficacité des wafers est observée pour des grains dont l'aire est inférieure à $0,02 \text{ mm}^2$.

Néanmoins, les joints de grains incohérents, qui présentent des liaisons pendantes, permettent de piéger les impuretés [Bar87]. Helmreich [Hel80] a montré que ces impuretés précipitent bien plus aux joints de grains incohérents qu'aux joints de grains cohérents,

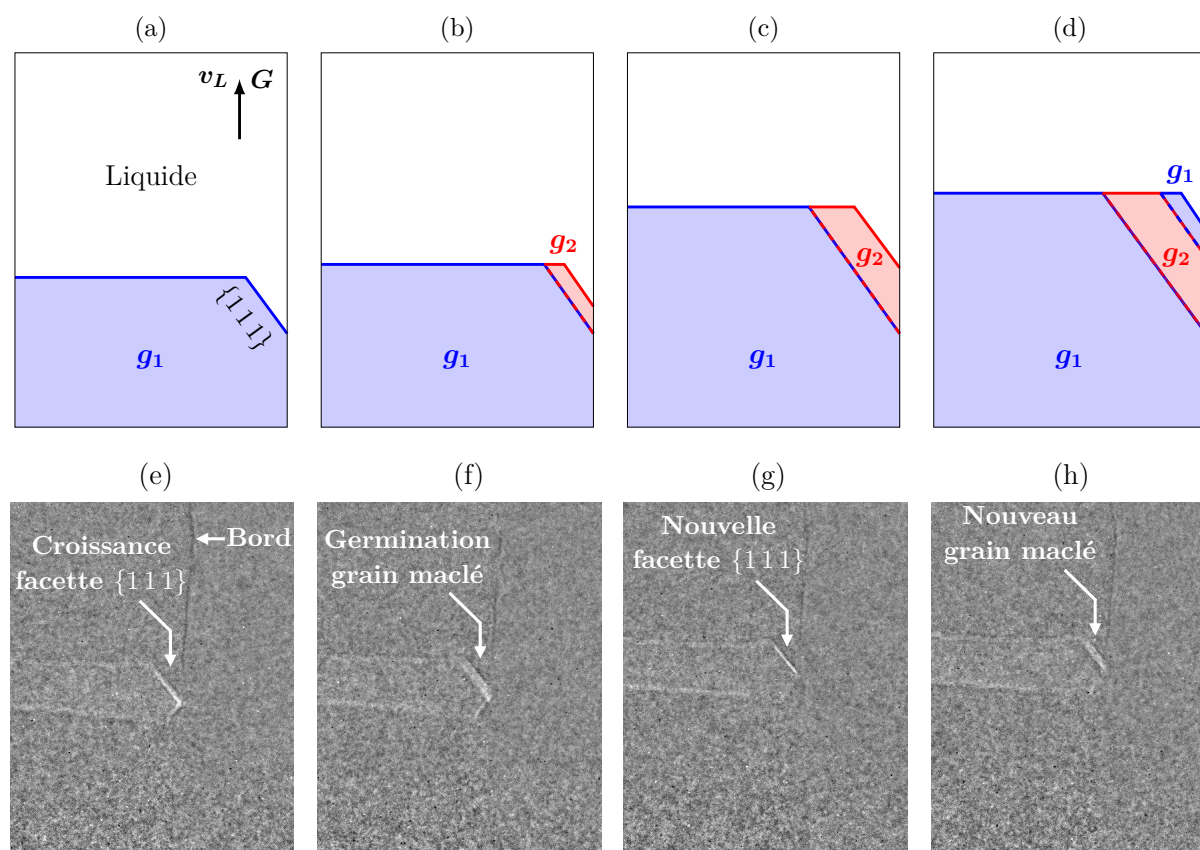


Figure I.12 – (a–d) Représentation schématique en deux dimensions d’un processus de maclage successif. Les grains sont en relation de macle $\Sigma 3$. Ces joints de grains sont représentés en pointillés. (a) Croissance d’un monograin initial g_1 et formation d’une facette $\{111\}$ de bord. (b) Germination d’un grain g_2 en relation de macle sur la facette $\{111\}$ du grain g_1 . (c) Croissance du grain g_2 et développement d’une nouvelle facette $\{111\}$. (d) Germination d’un nouveau grain g_1 en relation de macle avec g_2 . Les deux grains g_1 ont des directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ strictement équivalentes. (e–h) Clichés de radiographie X montrant une séquence de maclages successifs.

de type $\Sigma 3$, par exemple. La présence de ces impuretés peut permettre la germination hétérogène de petits grains équiaxes largement défavorables pour l'efficacité de la cellule solaire, comme écrit précédemment. De plus, ces impuretés peuvent combler localement les liaisons pendantes des joints de grains incohérents et donc empêcher l'introduction de niveaux d'énergie supplémentaires dans la bande interdite. Une généralisation est cependant complexe à énoncer puisque le carbone et l'oxygène, très souvent présents dans le liquide libre lors de la solidification du silicium, sont inactifs électriquement. Néanmoins, ces éléments peuvent devenir électriquement actifs lorsqu'ils interagissent aux joints de grains incohérents [Duf10].

Au final, deux effets antagonistes sont liés à l'activité électrique de la structure de grains dans le silicium polycristallin. D'un côté, les joints de grains incohérents parasitent la bande interdite et permettent la recombinaison de paires électron-trou. Ces phénomènes sont cependant moins préjudiciables, pour le rendement photoélectrique, que la présence de petits grains équiaxes (grits). D'un autre côté, les joints de grains incohérents piègent les impuretés et « nettoient » le liquide libre du matériau. De ce fait, du silicium relativement contaminé peut être utilisé pour la production de cellules solaires à structure polycristalline.

4 Conclusions

Les observations expérimentales montrent donc d'importantes différences morphologiques entre la croissance d'alliages métalliques et du silicium polycristallin. Pour les métaux, des structures dendritiques rugueuses sont généralement observées et la solidification d'un lingot conduit à la formation de structures colonnaire et équiaxe. La compétition, ou sélection, de croissance semble être fortement liée à la désorientation d'un grain par rapport au gradient de température. Néanmoins, des études expérimentales quantitatives sont nécessaires pour mieux mettre en évidence les phénomènes de sélection impliqués.

La croissance du silicium polycristallin se distingue principalement par la formation d'interfaces facettées et de grains en relation de macle. Les facettes sont toujours des plans cristallographiques $\{111\}$ et la germination de grains macclés s'effectue systématiquement sur ces plans. Le phénomène de maclage successif fait que les macles sont observées dans d'importantes proportions sur un wafer. Un lien étroit existe entre la structure de grains finale, les propriétés photovoltaïques, et l'influence des paramètres procédés sur la structure granulaire reste toujours à clarifier, bien que des études expérimentales aient été effectuées à ce sujet.

Le prochain chapitre donne une revue de la littérature des modèles numériques utilisés pour la modélisation des phénomènes décrits précédemment.

Chapitre II

Modèles numériques

Ce chapitre présente un état de l'art des modèles numériques utilisés pour la simulation de la croissance granulaire en solidification dirigée. Une liste exhaustive de ces modèles n'est néanmoins pas proposée car nous nous intéressons uniquement à la modélisation des observations expérimentales présentées dans le chapitre précédent, à savoir les structures de grains colonnaires dendritiques et la croissance du silicium polycristallin. Pour chaque modèle, des exemples de simulations sont proposés. Le modèle automate cellulaire est explicitement et précisément détaillé car cette approche est utilisée dans ce travail de doctorat.

Sommaire

1	Introduction	27
2	La dynamique moléculaire	28
2.1	Considérations générales	28
2.2	Exemple	28
3	Le champ de phase	29
3.1	Considérations générales	29
3.2	Principe de résolution	29
3.3	Exemples	30
4	Le modèle automate cellulaire	33
4.1	Considérations générales	33
4.2	Grille CA et indices d'état	34
4.3	Principe de résolution	36
4.4	Exemples	39
5	Le modèle de Nadri <i>et al.</i>	42
5.1	Considérations générales	42
5.2	Principe de résolution	42
5.3	Exemple	43
6	Le modèle de Qi <i>et al.</i>	44
6.1	Considérations générales	44
6.2	Exemple	45
7	Conclusions	45

1 Introduction

De nombreux modèles numériques ont été développés afin de modéliser les processus de solidification. La solidification est caractérisée par la grande diversité des échelles des phénomènes physiques intervenant. Il n'existe pas de modèle intégrant l'ensemble de ces phénomènes et leurs interactions mutuelles. En effet, un modèle numérique est habituellement associé à une échelle spatiale et temporelle spécifique. L'augmentation de la puissance de calcul et le développement du calcul massivement parallèle permet constamment d'augmenter ces échelles. La figure II.1 donne une représentation simplifiée des échelles intervenant lors de la solidification.

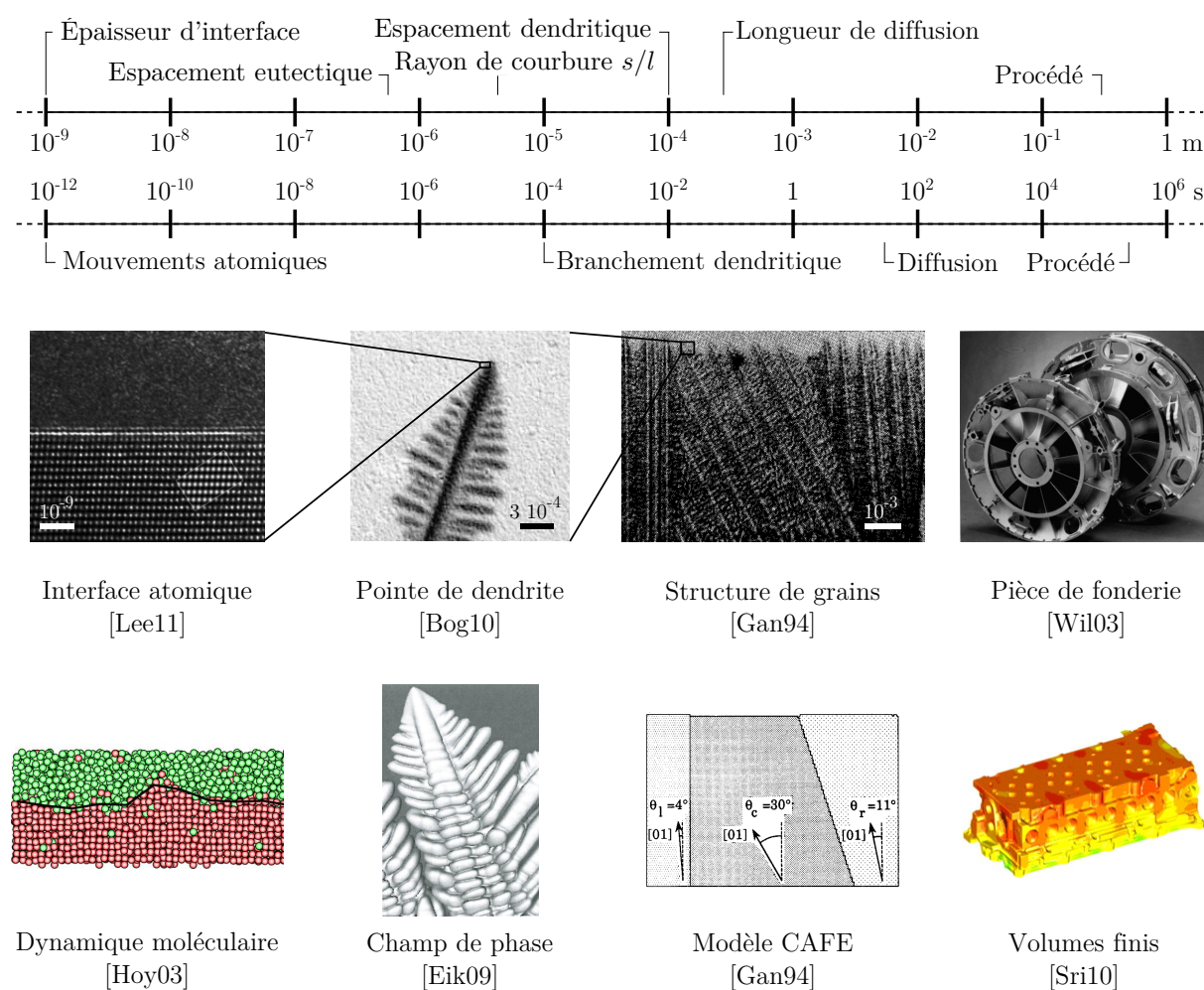


Figure II.1 – Différentes échelles spatiales et temporelles de solidification selon des observations expérimentales (haut) et leur modélisation numérique (bas). Figure adaptée de [Car12].

Dans ce chapitre, nous proposons un état de l'art des méthodes numériques utilisées pour la modélisation de la croissance du silicium polycristallin et de la compétition de croissance dendritique. Une liste exhaustive des modèles numériques développés pour la modélisation de la solidification dans sa globalité n'est donc pas proposée. De plus, certains modèles décrits ici concernent uniquement la modélisation de la croissance du silicium (par exemple, section 5).

2 La dynamique moléculaire

2.1 Considérations générales

Le modèle de dynamique moléculaire vise à étudier le mouvement physique des atomes et, à une échelle spatiale supérieure, celui des molécules. Le mouvement des atomes et les interactions avec leur voisinage sont résolus numériquement selon la deuxième loi de Newton sur le bilan des efforts :

$$\sum \mathbf{f}_i(t) = m\mathbf{a}(t) \quad (\text{II.1})$$

où $\mathbf{f}_i$ correspond aux différentes forces appliquées à la particule, $\mathbf{a}$ est sa vitesse dans un référentiel galiléen et m est sa masse. Dans le cadre de la modélisation des processus de solidification, l'épaisseur de l'interface solide/liquide est de l'ordre de 10^{-9} m. À cette échelle, simuler la morphologie de l'interface ne nécessite que peu de paramètres en entrée. Cependant, modéliser un volume représentatif d'une structure dendritique de plusieurs centaines de microns devient naturellement très compliqué. Ainsi, les phénomènes de diffusion solutale ou thermique se situent à une échelle spatiale de l'ordre de 2×10^{-4} m, ce qui est bien supérieur à l'échelle de l'atome. L'échelle temporelle est aussi problématique car suivre le mouvement des atomes requiert typiquement un pas de temps numérique de l'ordre de 10^{-12} s, alors qu'il faut travailler sur plusieurs centièmes de secondes pour un développement de structure dendritique. Bien que l'augmentation constante des puissances de calcul permette de progresser dans la résolution de ces problèmes [Mir04], la modélisation de phénomènes à une échelle même microscopique reste difficilement envisageable.

2.2 Exemple

Pohl *et al.* ont utilisé et adapté le code libre LAMMPS (*Large-scale Atomic Molecular Massively Parallel Simulator*) [Pli95] à la croissance du silicium afin de modéliser, en 2D, la formation d'interfaces facettées et de joints de grains maclés. Les simulations correspondantes consistent en une solidification dirigée dans une boîte contenant approximativement 5×10^6 atomes de silicium. La phase solide représente un bicristal où les deux grains sont désorientés de 45° l'un par rapport à l'autre. Le temps physique de simulation est de 5 ns et le pas de temps vaut 2 fs. Une simulation nécessite environ 4 jours de calcul sur 100 cœurs.

Les résultats correspondants sont montrés figure II.2. En (a), le bicristal croît avec une interface solide/liquide lisse, mais rugueuse. Un sillon de joint de grains se développe, en (b), présentant une facette $\{111\}$. Ultérieurement, en (c), des joints de grains maclés apparaissent au joint de grains et à la frontière droite du domaine. Il n'est pas précisé sous quelles conditions ces macles se forment. Finalement, d'autres joints de grains maclés se développent correspondant au phénomène de maclage successif régulièrement observé expérimentalement et introduit dans le chapitre précédent.

Le modèle de dynamique moléculaire permet donc de rendre compte, très localement, des fautes d'empilement atomique décrivant un joint de grains maclé. Bien entendu, les limites spatiale et temporelle de cette approche rendent les comparaisons avec des observations expérimentales encore difficiles actuellement.

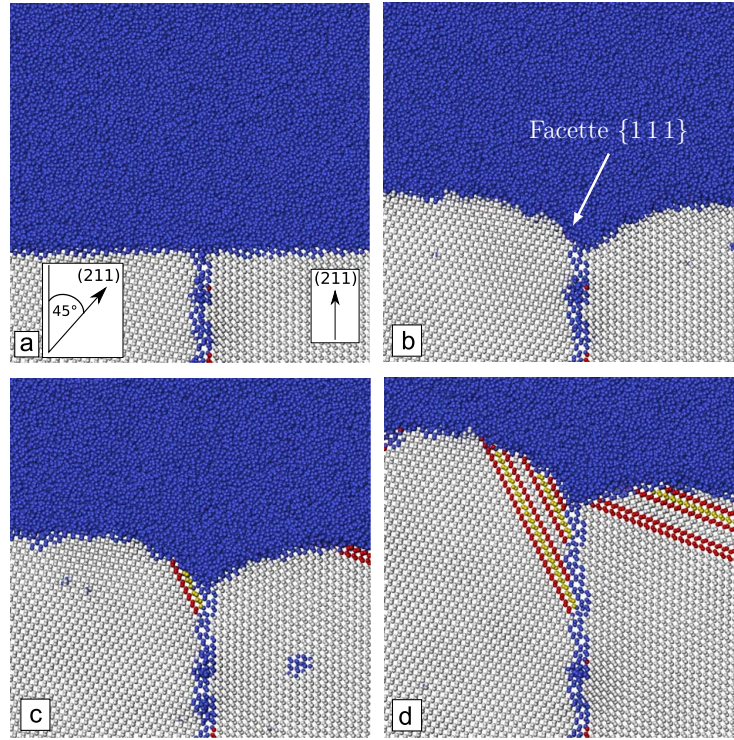


Figure II.2 – Modélisation de la croissance d'un bicristal de silicium par une approche de dynamique moléculaire. Les deux grains sont désorientés de 45° , relativement. (a) Croissance d'une interface solide/liquide plane, (b) formation d'un sillon de joint de grains présentant une interface facettée $\{111\}$, (c) formation de fautes d'empilement atomique caractéristiques de la germination de grains en relation de macle, et (d) croissance des grains maclés provenant de germinations successives. Figure adaptée de [Poh10].

3 Le champ de phase

3.1 Considérations générales

Le modèle champ de phase consiste en une modélisation mathématique des phénomènes interfaciaux. Cette approche est très répandue dans la simulation des transformations de phases, notamment en solidification, et correspond à une modélisation par milieux continus. Les phases ont des propriétés qui varient continûment et ne sont plus considérées comme un ensemble particulière. L'espace est discrétisé en trois domaines, à savoir la phase solide, la phase liquide et une zone d'interface solide/liquide. Cette méthode s'apparente donc à une approche où l'interface solide/liquide est diffuse et caractérisée par une épaisseur. Le champ de phase s'est imposé comme la méthode numérique de référence pour la modélisation de l'évolution morphologique de grains à microstructure dendritique. Parmi ses avantages, notons l'accès explicite à la normale à l'interface, ainsi qu'à sa courbure. De plus, les interactions solutales entre les dendrites sont prises en compte. Nous reviendrons sur ces spécificités dans le chapitre suivant.

3.2 Principe de résolution

Comme schématisé en figure II.3, les phases sont distinguées via une fonction champ de phase notée φ où $\varphi \in [-1, 1]$. Ce champ vaut 1 dans le solide, -1 dans le liquide et

varie continuellement entre les deux valeurs ($\varphi \in]-1, 1[$) dans l'interface solide/liquide. La région interfaciale est caractérisée par une épaisseur notée W_{PF} .

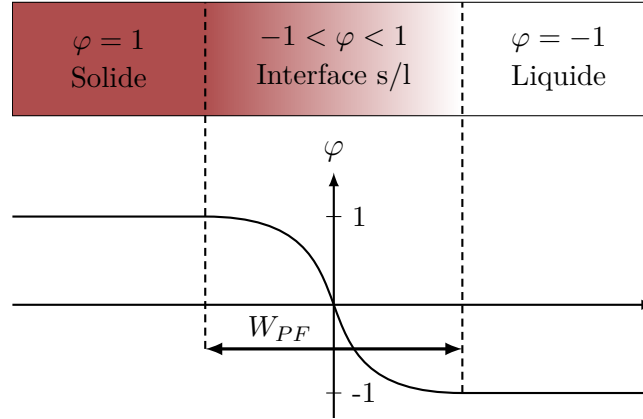


Figure II.3 – Représentation schématique de la fonction champ de phase, φ , qui vaut 1 dans le solide, -1 dans le liquide et comprise entre 1 et -1 exclus dans l'interface solide/liquide. W_{PF} représente l'épaisseur de la région interfaciale.

Le champ de phase se base sur la minimisation de l'énergie libre, F_H , du système simulé et donnée par une intégration de type Ginzburg-Landau sur le domaine Ω_{PF} :

$$F_H = \int_{\Omega_{PF}} \left(f_H(\varphi) + \frac{\epsilon_\varphi^2}{2} |\nabla \varphi|^2 \right) d\Omega_{PF} \quad (\text{II.2})$$

où f_H est l'énergie libre de Helmholtz et ϵ_φ un coefficient positif. Le gradient $\nabla \varphi$ permet de tenir compte de la courbure de l'interface solide/liquide. L'évolution temporelle de la fonction champ de phase φ s'écrit :

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -M^\varphi \frac{\partial F_H(\varphi)}{\partial t} \quad (\text{II.3})$$

avec M^φ la mobilité de la phase. Les avantages de la méthode champ de phase donnés précédemment, en sous section 3.1, sont néanmoins à comparer avec ses faiblesses. Les résultats simulés peuvent être dégradés pour une épaisseur W_{PF} d'interface solide/liquide trop large, W_{PF} devant être inférieure à la longueur capillaire. Le modèle champ de phase montre donc sa limite dans la modélisation de processus à des échelles spatiales importantes. Le lecteur pourra trouver une introduction plus complète à la modélisation champ de phase dans [Moe08].

3.3 Exemples

Croissance dendritique L'étude de la compétition de croissance dendritique par le modèle champ de phase a premièrement été effectuée en 2D [Li12 ; Tou15 ; Guo17 ; Tou17] puis en 3D [Tak13 ; Tak16b ; Tou17]. Un exemple de la modélisation de la solidification dirigée d'un alliage de succinonitrile-0,4%pds acétone est donné figure II.4 (a) [Tou17]. Le domaine simulé est de dimensions $2,046 \times 2,556 \text{ mm}^2$ et le temps physique de simulation est de 960 s. Le champ de température est imposé, ainsi que les conditions d'avancée des isothermes. L'intégralité du domaine n'est pas représentée figure II.4. Un calcul est effectué en 16 heures sur un GPU Tesla K40c constitué de 2880 cœurs. Plusieurs cas sont présentés

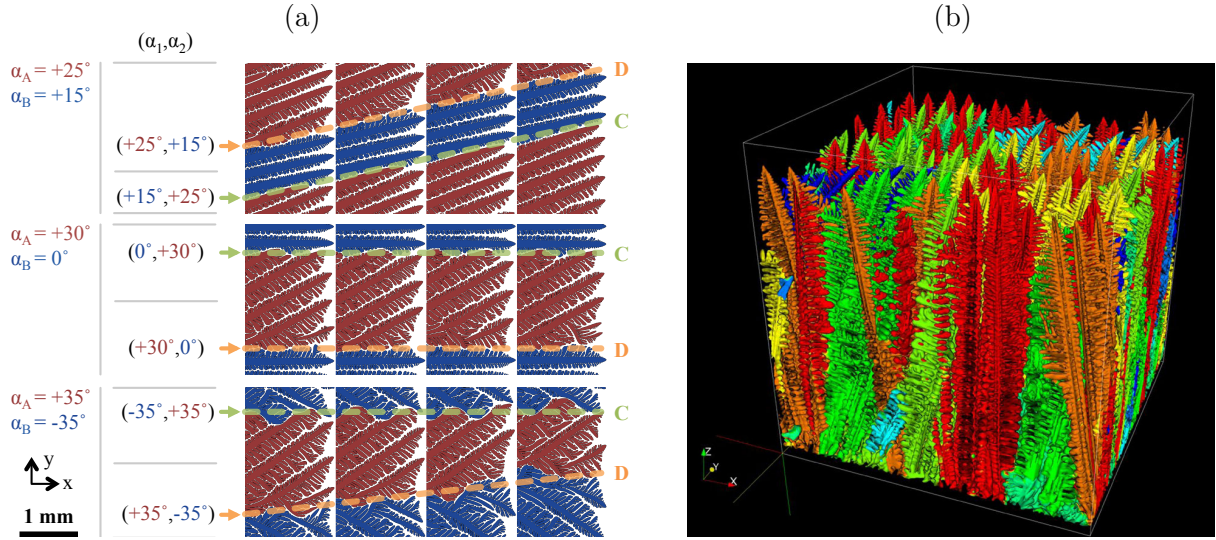


Figure II.4 – Calculs champ de phase pour la modélisation de la compétition de croissance de grains à microstructure dendritique (a) en 2D où les lignes C et D définissent les joints de grains qui dépendent des orientations cristallographiques (α_A , α_B) des grains en compétition [Tou17] et (b) en 3D où les couleurs chaudes correspondent à des faibles désorientations des grains par rapport à la direction verticale du gradient de température [Tak13].

et diffèrent par les orientations cristallographiques des grains bleu et rouge. Le gradient de température et la vitesse du liquidus sont orientés selon la direction x (figure II.4 (a)). Les lignes C et D tracées définissent les orientations des joints de grains. On voit que l'orientation d'un joint de grains dépend fortement des orientations cristallographiques des deux grains en compétition. Le chapitre suivant étudie particulièrement cette dépendance.

La figure II.4 (b) montre les résultats d'un calcul champ de phase 3D [Tak13] de compétition de croissance dendritique en solidification dirigée, pour un alliage d'Al-Si, dans un domaine cubique de volume $3,072 \times 3,078 \times 3,072 \text{ mm}^3$. Le gradient de température et la vitesse des isothermes sont orientés selon la direction z (figure II.4 (b)). Ce calcul est rendu possible par un modèle champ de phase parallélisé et a nécessité 12 jours de calcul sur 768 GPUs, eux mêmes constitués de 768 CPUs (supercalculateur TSUBAME2.0). Ces importantes ressources de calcul permettent d'atteindre des échelles pertinentes et nécessaires à la compréhension des phénomènes impliqués dans la compétition de croissance dendritique. Les couleurs chaudes, figure II.4 (b), correspondent à une faible désorientation des dendrites primaires par rapport à la direction du gradient de température. Ces couleurs prédominent dans la structure de grain finale, et laissent donc globalement penser que les dendrites primaires les mieux orientées survivent à la compétition de croissance. Néanmoins, certaines dendrites très désorientées, représentées par les couleurs bleu et cyan, sont toujours présentes en fin de solidification. Pour une dendrite primaire très désorientée par rapport à la direction de croissance, ses interactions avec les dendrites de grains voisins jouent un rôle dans la sélection de croissance.

Croissance du silicium polycristallin Si les simulations de la croissance de grains dendritiques par le modèle champ de phase sont légions dans la littérature, le champ de phase est cependant bien moins exploité pour modéliser la croissance du silicium polycristallin. Notons le travail de Chen *et al* [Che07] qui ont simulé la compétition de croissance par solidification dirigée de deux grains de silicium pur et la formation

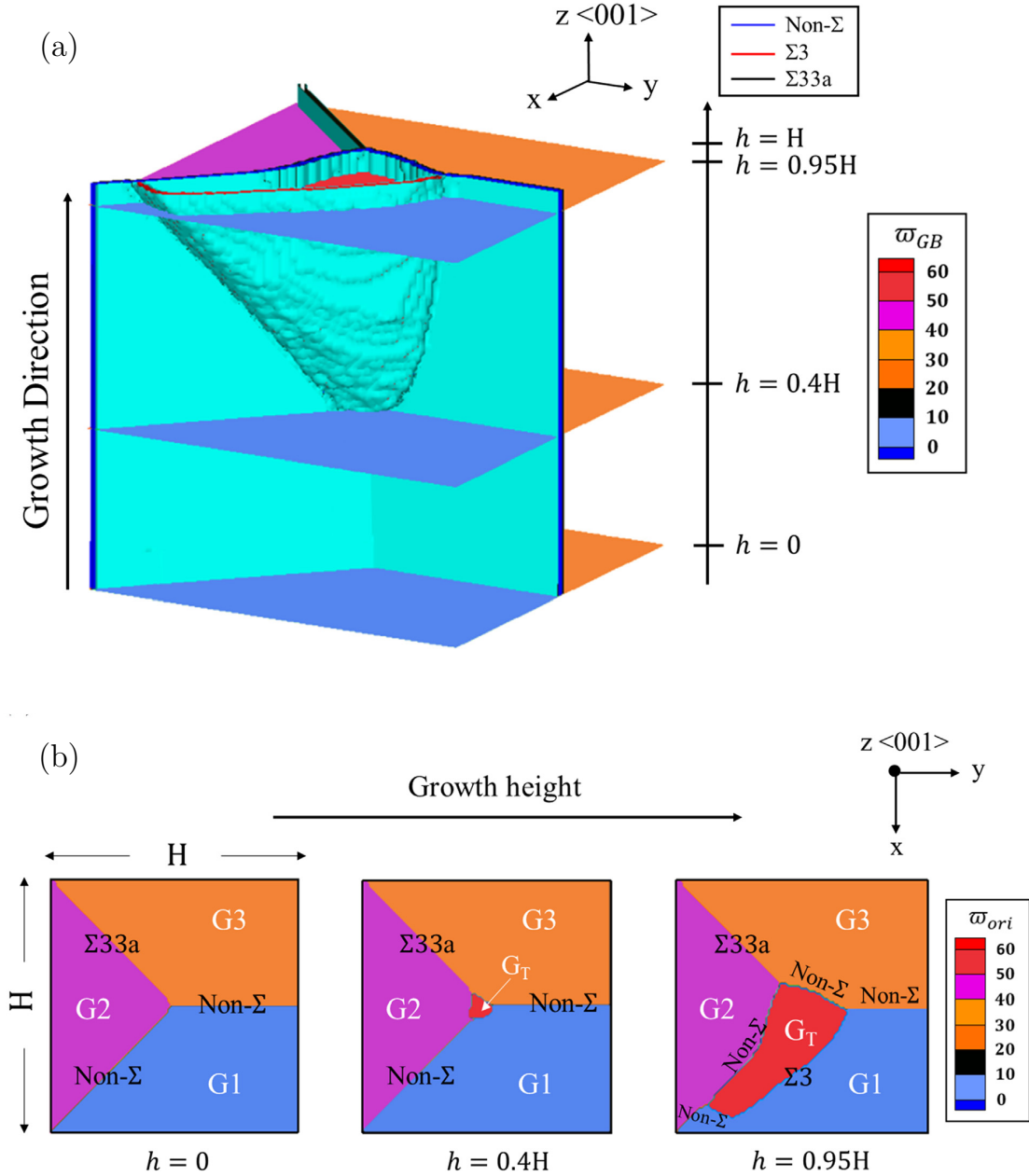


Figure II.5 – Calcul champ de phase modélisant la germination d'un grain en relation de macle au niveau d'une jonction triple caractéristique des grains notés G1, G2, et G3. (a) Structures de solidification données à plusieurs hauteurs, à savoir $h = 0$, $h = 0,4H$, et $h = 0,95H$, où H est la hauteur totale du domaine. La variable ϖ_{GB} , caractérisant les différents joints de grains, est arbitraire et vaut, à titre d'exemple, $\varpi_{GB} = 70$ pour un joint de grain maculé de type $\Sigma 3$. (b) Vues du dessus pour différentes hauteurs h . La variable ϖ_{ori} , aussi choisie arbitrairement, est spécifique à chaque grain et vaut, par exemple, $\varpi_{ori} = 60$ pour le grain G_T ayant germé en relation de macle [Jha19].

subséquent d'un sillon de joint de grains facetté/facetté. Par la suite, Lan et Lin [Lan14] ont simulé par un modèle champ de phase 3D la formation d'interfaces facettées pendant la croissance d'un monograin de silicium pur en solidification dirigée.

Plus récemment, Jhang et Lan [Jha19] ont enrichi le modèle champ de phase 3D développé dans [Lan14] pour permettre la germination de grains en relation de macle

sur des interfaces facettées. Dans ce travail, les auteurs se basent sur des observations expérimentales EBSD effectuées par Wong *et al.* [Won14] et s'intéressent à une zone particulière de l'échantillon où un événement de maclage s'est produit. Cet événement est la germination d'un grain en relation de macle sur un plan cristallographique $\{111\}$ d'un grain mère, lui même en contact avec deux grains adjacents. Le domaine est un cube de volume $0,24 \times 0,24 \times 0,24 \text{ mm}^3$. Le temps de calcul et les ressources informatiques utilisées ne sont pas précisées. À partir du fichier EBSD, les angles d'Euler des trois grains en contact sont utilisés et ces trois grains sont les seuls, initialement, présents dans le domaine de simulation. Au cours de la solidification, un nouveau grain germe en relation de macle. Cette germination est probabiliste et non basée sur des considérations thermiques locales. Pour chaque grain au contact du nouveau grain germé, une paire axe de désorientation/angle est calculée pour évaluer l'indice CSL d'un joint de grains. Cet indice CSL est déterminé selon le critère de Brandon [Bra66]. Les résultats de cette simulation sont présentés figure II.5. Il est décrit, dans [Jha19], que les résultats obtenus avec le modèle champ de phase sont en bon accord avec les observations expérimentales EBSD, notamment au niveau des joints de grains. Sur la figure II.5 (b), le joint de grains $\Sigma 3$ devrait être une ligne droite, étant donné que ce joint de grains est défini par un plan cristallographique $\{111\}$ commun aux grains G_T et G_1 en relation de macle. Ceci n'est pas vraiment le cas et pourrait provenir de la faible résolution du maillage utilisé [Jha19].

Concernant la modélisation de la croissance du silicium polycristallin en champ de phase, ces récents efforts sont donc notables. Ils souffrent néanmoins de la même limite que pour les simulations de compétitions de croissance dendritique, à savoir une échelle spatiale trop réduite ne permettant pas d'avoir une vision globale des phénomènes caractéristiques de la structure de grains finale. Des simulations réalisées à une échelle spatiale et un temps de solidification plus importants sont donc nécessaires.

4 Le modèle automate cellulaire

4.1 Considérations générales

Initialement, l'approche automate cellulaire (CA) constitue un modèle calculatoire proposé par le mathématicien von Neumann au début des années 50 visant à modéliser des phénomènes complexes à une échelle donnée par le biais de lois simples appliquées à une échelle plus fine. Un automate cellulaire peut être décrit comme un ensemble d'entités identiques, les cellules, qui sont réparties sur une grille constituant un espace discret bi ou tridimensionnel [Pou06]. L'état d'une cellule est défini par un nombre fini de variables et par son voisinage, c'est-à-dire l'état des cellules environnantes. Par exemple, si l'on considère une cellule à un temps discret t , son état au temps $t + \Delta t$ est fonction des états de la cellule considérée et de ses cellules plus proches voisines au même temps t . À chaque incrément de temps Δt une nouvelle famille d'états de cellules est produite étant fonction uniquement de la famille au temps t précédent. L'évolution temporelle de l'automate cellulaire est donnée par des règles de transition, généralement simples, qui sont appliquées de manière identique à l'intégralité des cellules [Gui08].

Dans le cadre de la modélisation des processus de solidification à l'échelle granulaire, l'approche CA a été couplée à la méthode de résolution par éléments finis (FE) par Gandin et Rappaz [Rap93; Gan94] constituant alors le modèle CA-FE (*Cellular Automaton - Finite Element*). Cette méthodologie est ensuite enrichie par Guillemot [Gui04] permettant le transport des grains dans la phase liquide. Plus récemment, en 2012, le modèle CA-FE

est rendu plus performant par Carozzani [Car12] par des stratégies d'allocation dynamique et de partitionnement facilitant le calcul parallèle. Le modèle CA-FE est actuellement disponible dans la librairie de calcul Cimlib, développée au CEMEF, et aussi intégré dans le logiciel commercial Thercast® développé par Transvalor.

Ce modèle vise à décrire l'enveloppe externe des grains et non leur microstructure interne, comme le fait par exemple le modèle champ de phase. Il permet principalement la modélisation de la croissance de grains lors des procédés de solidification d'alliages à microstructures dendritiques. L'approche CA s'appuie sur deux considérations fondamentales :

- La morphologie de l'enveloppe externe d'un grain est localement déterminée par une forme géométrique simple désignée comme l'enveloppe de croissance. Cette enveloppe correspond à un quadrilatère orthodiagonal en 2D et à un octaèdre en 3D. Par souci de simplicité, le terme enveloppe de croissance sera utilisé indépendamment de la dimension spatiale.
- Le développement des enveloppes de croissance s'effectue selon des directions cristallographiques préférentielles et selon une cinétique de pointe caractéristique de la microstructure étudiée.

Les cristaux étudiés dans ce travail de thèse se développent dans les directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$, caractéristiques des microstructures dendritiques de structure cubiques à faces centrées ou cubiques centrées. Cela correspond à la plupart des métaux et au silicium, adoptant une structure cristallographique diamant. Comme décrit dans le chapitre précédent, le silicium ne présente, généralement, pas une morphologie dendritique. Bien que l'approche CA-FE ait été développée spécifiquement pour cette morphologie, nous allons voir que le développement des enveloppes de croissance s'effectue dans les directions $\langle 100 \rangle$, ce qui est également le cas des cristaux de silicium.

Grâce à l'adaptation au calcul parallèle, l'approche CA permet d'atteindre de grandes échelles spatiales et temporelles. Néanmoins cela nécessite plusieurs approximations. Par exemple, l'anisotropie de l'énergie de l'interface solide/liquide n'est pas considérée. De plus, les interactions solutales entre les grains ne sont pas introduites. Ces approximations et leurs effets seront plus précisément étudiés dans le chapitre suivant.

Compte tenu des conditions de calculs utilisées dans ce travail, le couplage FE n'a pas été nécessaire, en particulier pour la résolution thermique, et ne sera donc pas explicitement détaillé ici. Le lecteur pourra trouver une description complète de ce couplage dans [Car12]. Dans la suite de ce document, l'approche est uniquement dénotée CA.

4.2 Grille CA et indices d'état

Par souci de simplicité, les notations utilisées correspondent à un modèle CA 2D. Pour la modélisation d'un procédé de solidification, le domaine de simulation est superposé à une grille régulière de cellules carrées, en 2D, ou cubiques, en 3D, et de taille constante l_{CA} . Un exemple d'une grille automate cellulaire est représentée, en 2D, figure II.6 (c). Pour une cellule donnée, son voisinage définit son environnement et la cellule a 8 voisins en 2D (1^{ers} et 2^{èmes} plus proches voisins), et 26 voisins en 3D (1^{ers}, 2^{èmes} et 3^{èmes} plus proches voisins). Cette définition correspond à un voisinage de Moore et diffère d'un voisinage de von Neumann où seuls les premiers voisins sont considérés. L'influence du type de voisinage est étudiée dans le chapitre suivant. À chaque cellule ν est associé un indice d'état I_ν défini tel que :

- $I_\nu = 0$ si la cellule ne contient pas d'enveloppe de croissance, la cellule étant donc liquide,

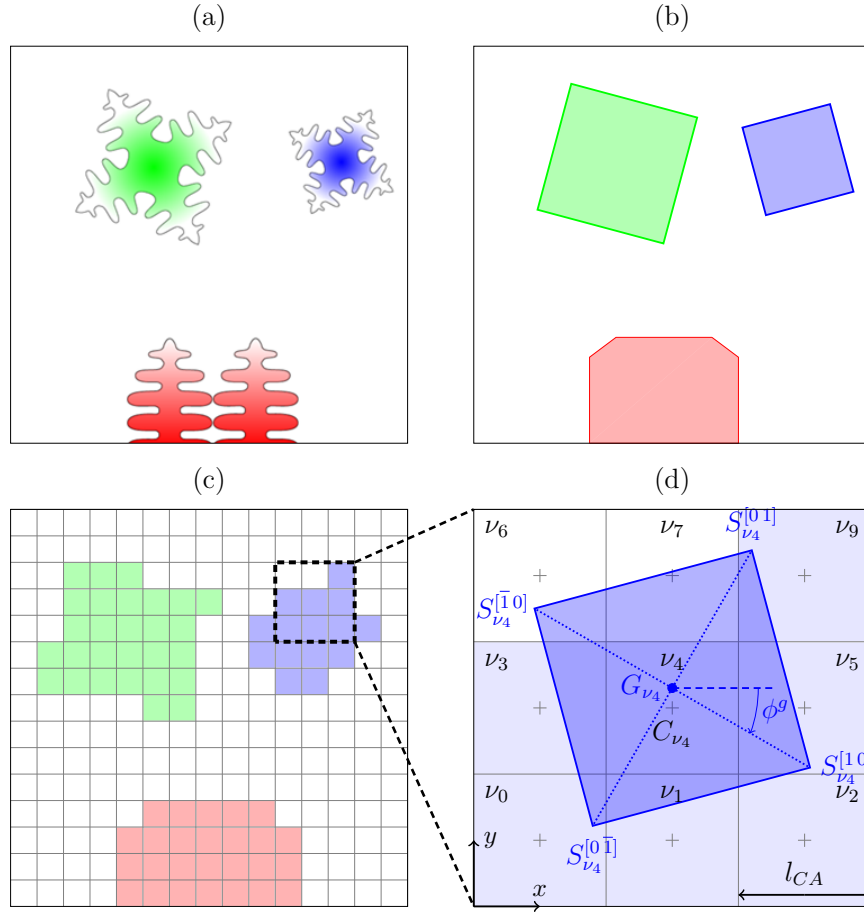


Figure II.6 – Représentations schématiques (a) de grains à microstructure dendritique, (b) de l’enveloppe externe des grains, (c) de leur représentation sur la grille automate cellulaire et (d) d’une enveloppe de croissance associée à la cellule solide ν_4 . Toutes les cellules colorées sont solides ($0 < I_{\nu_i} \leq 2$) et les cellules blanches sont liquides ($I_{\nu_i} = 0$).

- $I_\nu = 1$ si la cellule contient une enveloppe de croissance en situation de développement,
- $I_\nu = 2$ si la cellule contient une enveloppe de croissance ne pouvant plus croître. La condition nécessaire pour atteindre cet état est donnée ci-après.

Un autre indice, I_ν^g , caractérise le grain g d’appartenance d’une cellule ν . Cet indice est basé sur le numéro des grains. Si un grain g donné a pour numéro i , où $i \geq 0$, alors toutes les cellules constituant le grain et définissant son enveloppe externe auront une valeur de I_ν^g identique, à savoir $I_\nu^g = i$. Finalement, on définit le centre C_ν d’une cellule ν , de coordonnées cartésiennes (x_ν, y_ν) exprimées dans le repère du laboratoire. Les deux indices I_ν et I_ν^g , et le centre C_ν définissent entièrement une cellule ν .

Une enveloppe de croissance associée à la cellule ν_4 est schématisée figure II.6 (d). Son centre est noté G_{ν_4} et n’est pas nécessairement confondu avec le centre C_{ν_4} de la cellule ν . Ses quatre sommets, notés $S_{\nu_4}^{[ij]}$ où $ij \in \{10, 01, \bar{1}0, 0\bar{1}\}$ représentent les quatre pointes de dendrites dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$. Plus généralement, les pointes des enveloppes de croissance seront notées $S_{\langle 10 \rangle}$ en 2D. L’angle ϕ^g entre la demi-diagonale $G_{\nu_4} S_{\nu_4}^{[10]}$ et la direction horizontale x représente l’orientation cristallographique du grain. Pour une enveloppe de croissance donnée, l’angle ϕ^g est conservé durant la croissance de l’enveloppe. Finalement, et à titre d’exemple, le voisinage de von Neumann de la cellule

ν_4 (figure II.6 (d)) correspond aux cellules ν_1, ν_3, ν_5 et ν_7 . Ces explications sont illustrées pour une configuration 2D et la modélisation 3D est détaillée dans [Car12].

4.3 Principe de résolution

Les enveloppes de croissance qui rendent compte du développement des grains viennent d'être décrites. Leurs initialisation et évolution, qui correspondent respectivement aux processus de germination et croissance puis capture, sont maintenant présentées. Ces étapes suffisent généralement à décrire l'algorithme de résolution du modèle CA.

4.3.1 Germination

L'initialisation d'une enveloppe de croissance est possible lorsqu'une cellule ν donnée est considérée comme « germante ». Ceci s'effectue par trois tests successifs. Premièrement, la cellule doit être libre, c'est-à-dire qu'elle doit être liquide ($I_\nu = 0$) et ne doit pas être occupée par un autre grain. Deuxièmement, la température au niveau de la cellule doit être inférieure à la température de liquidus. Finalement, la cellule doit pouvoir donner lieu à un événement de germination : la surfusion locale, ΔT , de la cellule doit être supérieure ou égale à la surfusion de germination, ΔT_N , associée au site présent dans la cellule ν . Plusieurs modes de germination sont implémentés dans le modèle CA. Par exemple, il est possible de définir une position spatiale, dans le repère du laboratoire, à laquelle on associe une surfusion de germination. Cette surfusion peut être fixée par l'utilisateur ou tirée aléatoirement selon la méthode de Box-Muller [Box58] :

$$\Delta T_N = \sqrt{-2 \ln u_1} \cos(2\pi u_2) \Delta T_N^\sigma + \Delta T_N^\mu \quad (\text{II.4})$$

où ΔT_N^σ et ΔT_N^μ sont l'écart type et la valeur moyenne, respectivement, et u_1 et u_2 sont deux réels aléatoires uniformément distribués entre 0 et 1. Les lois de germination peuvent être de type surfacique ou volumique. Ces surfusions sont par la suite distribuées sur la grille automate cellulaire en étant associées à des cellules spécifiques.

Lorsque les trois conditions données ci-dessus sont successivement remplies, une enveloppe de croissance est associée à la cellule ν ($I_\nu = 1$). L'orientation cristallographique de l'enveloppe est tirée aléatoirement et de manière à obtenir une texture uniforme [Gan95] selon :

$$\begin{cases} \phi_1 = 360 (0,5 - u_1) \\ \phi = \cos^{-1}(1 - 2u_2) \\ \phi_2 = 360 (0,5 - u_3) \end{cases} \quad (\text{II.5})$$

où u_1, u_2 et u_3 sont trois réels aléatoires compris entre 0 et 1. Le centre G_ν de l'enveloppe de croissance est alors confondu avec le centre C_ν de la cellule. Les rayons de l'enveloppe de croissance sont notés R_ν^k , où $k \in [1, 4]$, et définissent les longueurs dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$ depuis le centre C_ν . Les valeurs de R_ν^k sont fixées à une fraction de la taille de cellule ($10^{-3} \times l_{CA}$).

4.3.2 Croissance

La croissance d'un grain est rendue possible par l'agrandissement des enveloppes de croissance dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, c'est-à-dire par une évolution

temporelle et spatiale des rayons R_ν^k . Une cinétique spécifique de la microstructure étudiée est appliquée aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ et les rayons de l'enveloppe de croissance sont mis à jour. La température intervenant dans la croissance des enveloppes, cette grandeur peut être calculée au centre C_ν d'une cellule ν donnée. Dans ce cas, l'enveloppe est quadratique et le reste durant sa croissance. La température peut aussi être calculée aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ et, pour un champ de température non-uniforme, la morphologie de l'enveloppe de croissance n'est plus quadratique. L'influence de ces deux résolutions est étudiée dans le chapitre suivant. Un exemple de croissance est donné figure II.7.

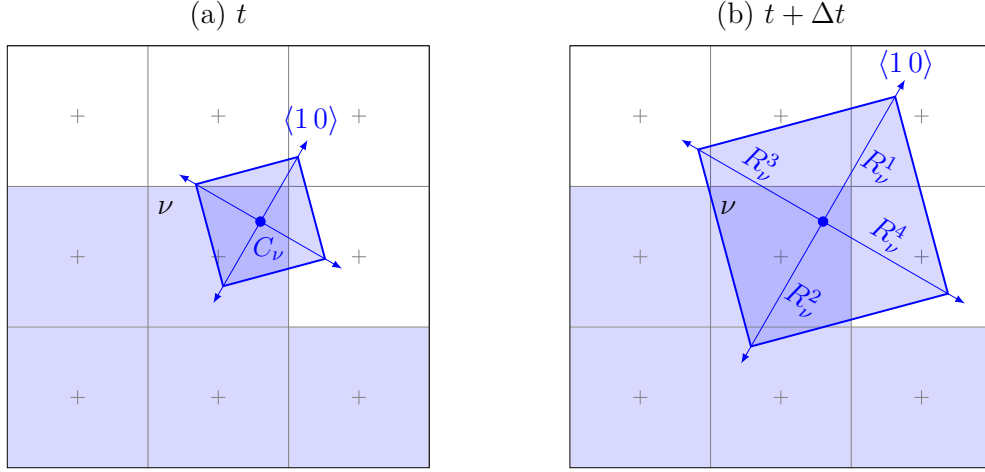


Figure II.7 – Représentation schématique 2D de la croissance d'une enveloppe associée à une cellule ν à un temps (a) t et (b) $t + \Delta t$ où les rayons $R_\nu^1, R_\nu^2, R_\nu^3$ et R_ν^4 sont mis à jour. Les cellules blanches sont liquide. Les cellules colorées ont soit une enveloppe de croissance en développement, soit une enveloppe ayant atteint son maximum de croissance.

4.3.3 Capture

La croissance d'un grain s'effectue par des évènements de capture locaux et successifs. Un exemple du processus de capture est donné en figure II.8. Une enveloppe de croissance est associée à une cellule solide ν . Lors de l'accroissement des rayons de l'enveloppe de croissance, celle-ci va englober le centre d'une cellule liquide μ présente dans son voisinage. Une nouvelle enveloppe de croissance est alors associée à la cellule μ qui passe d'un état liquide à un état solide, c'est-à-dire $I_\mu = 0 \rightarrow I_\mu = 1$. La nouvelle enveloppe de croissance conserve l'orientation cristallographique de l'enveloppe capturante. Sa dimension est plus petite, c'est-à-dire que ses rayons sont initialisés à des valeurs plus faibles que celles de l'enveloppe capturante.

L'algorithme de capture, proposé par Gandin *et al.* [Gan97] est rappelé ici en 2D. Le centre de la cellule liquide μ est englobé par l'enveloppe de croissance de la cellule solide ν . À ce stade, la face capturante, à savoir la face (1 1) figure II.8, est identifiée. Ceci est effectué en calculant les signes des coordonnées $(\tilde{x}_{\mu_1}, \tilde{y}_{\mu_1})$ de C_μ dans un repère associé à l'enveloppe de croissance capturante, et donc centré en G_ν . En figure II.8 (b), cela donne $\tilde{x}_{\mu_1} > 0$ et $\tilde{y}_{\mu_1} > 0$ résultant donc en une face capturante dont la normale correspond à la direction cristallographique $[1\ 1]$. Cette procédure est importante et sera utilisée pour la modélisation de la croissance du silicium polycristallin (chapitre 4). Le centre C_μ de la cellule μ est ensuite projeté sur la face capturante, en A (figure II.8 (b)). Le sommet de capture de l'enveloppe associée à la cellule ν est déterminé en comparant les longueurs

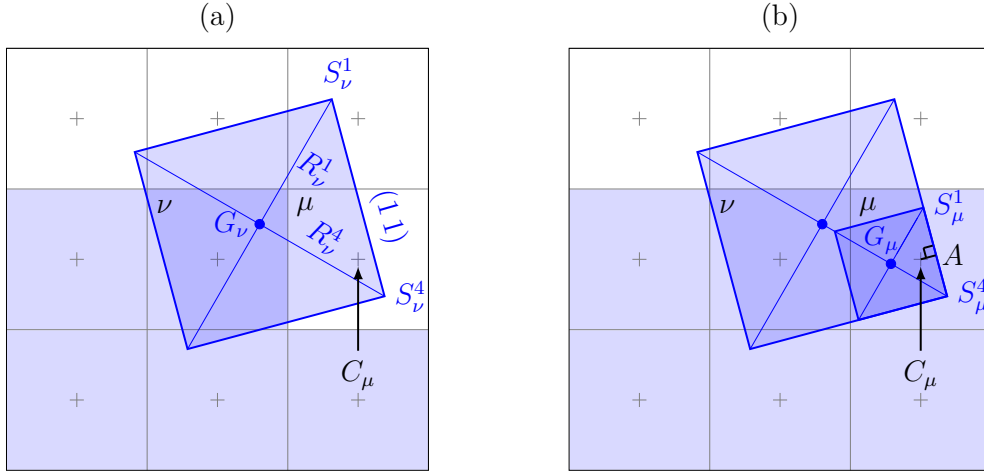


Figure II.8 – Représentation schématique en 2D du processus de capture. (a) Une enveloppe de croissance est associée à la cellule solide ν et a géométriquement englobé le centre de la cellule liquide μ ($I_\mu = 0$). (b) Une nouvelle enveloppe de croissance est associée à la cellule μ , maintenant solide ($I_\mu = 1$).

AS_ν^1 et AS_ν^4 . Dans l'exemple donné figure II.8, S_ν^4 est le sommet capturant. Le sommet S_μ^4 de la nouvelle enveloppe de croissance est alors confondu avec S_ν^4 . L'initialisation des rayons de l'enveloppe de croissance créée est basée sur la troncature de la longueur de la face (11) de la nouvelle enveloppe :

$$S_\mu^1 S_\mu^4 = \min \left(AS_\nu^1, \sqrt{2} l_{CA} \right) + \min \left(AS_\nu^4, \sqrt{2} l_{CA} \right) \quad (\text{II.6})$$

Cette étape a pour but de limiter les dimensions de la nouvelle enveloppe de croissance et donc d'éviter un accroissement continu des rayons à chaque évènement de capture. On définit a le rapport entre les rayons de l'enveloppe capturée et les rayons de l'enveloppe capturante :

$$a = \frac{S_\mu^1 S_\mu^4}{S_\nu^1 S_\nu^4} \quad (\text{II.7})$$

Les rayons de la nouvelle enveloppe de croissance sont initialisés tels que :

$$R_\mu^k = a R_\nu^k \quad (\text{II.8})$$

Notons finalement, figure II.8 (b), que le centre G_μ de la nouvelle enveloppe de croissance n'est pas confondu avec le centre C_μ de la cellule μ .

Pendant un pas de temps macroscopique Δt , il n'est pas interdit que le centre C_μ d'une cellule liquide μ donnée soit simultanément englobé par plusieurs enveloppes de croissances associées à des cellules solides voisines. Dans ce cas, l'enveloppe capturante effective correspond à celle la plus développée : la distance $C_\mu A$ est calculée pour les différentes enveloppes capturantes et la plus grande valeur est retenue pour définir la cellule capturante.

À l'échelle du domaine de simulation, la croissance d'un grain donné est donc le résultat d'évènements de capture successifs ayant lieu à l'échelle d'une cellule et de son voisinage. Un grain n'a donc pas de réelle signification au sens de l'approche CA. Par exemple, la cinétique de croissance est effectivement appliquée, dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, aux pointes des enveloppes de croissance de chaque cellule. Aucune cinétique de croissance n'est appliquée à un grain donné.

L'algorithme de capture en 3D, très similaire à celui présenté en 2D, n'est pas détaillé dans ce document. Le lecteur pourra en trouver les détails dans [Car12].

4.3.4 Fraction d'enveloppe

Il a été évoqué en sous-section 4.2 que l'indice d'état I_ν peut prendre la valeur 2. Cela correspond au fait que l'enveloppe a atteint son maximum de croissance. Pour caractériser ce maximum, une fraction cellulaire g_ν est définie pour chaque cellule ν . Trois cas sont à distinguer :

- $g_\nu = 0$, aucune enveloppe de croissance n'est associée à la cellule ν et $I_\nu = 0$,
- $0 < g_\nu < 1$, une enveloppe de croissance se développe localement dans le voisinage de la cellule ν et $I_\nu = 1$,
- $g_\nu = 1$, l'enveloppe de croissance de la cellule ν a atteint son maximum de croissance et $I_\nu = 2$.

La fraction cellulaire est telle que :

$$g_\nu = \min \left(\frac{A_\nu - A_{\nu \text{ capt}}}{A_{\nu \text{ max}} - A_{\nu \text{ capt}}}, 1 \right) \quad (\text{II.9})$$

où A_ν est l'aire courante de l'enveloppe de croissance de la cellule ν , $A_{\nu \text{ capt}}$ est l'aire de l'enveloppe lorsque celle-ci est créée au moment de la capture de la cellule ν et $A_{\nu \text{ max}}$ est l'aire maximale de l'enveloppe de croissance. En 3D, les volumes des enveloppes sont utilisés pour le calcul de la fraction cellulaire [Car12].

Il reste néanmoins à déterminer, au moment de la capture, la valeur de l'aire maximale $A_{\nu \text{ max}}$. Pour ce faire, plusieurs approches ont été développées et sont détaillées dans [Car12]. Ici, nous donnons uniquement celle actuellement utilisée et initialement présentée dans la littérature [Gan97 ; Gan99 ; Gui04]. Cette approche est dénotée *calcul par voisinage* et considère qu'une enveloppe associée à une cellule ν a atteint son maximum de croissance lorsque celle-ci a englobé le centre de toutes les cellules de son voisinage.

Précisons finalement que pour une cellule ν donnée et dont l'enveloppe de croissance a atteint son maximum de croissance, *i.e.* $I_\nu = 2$, la cellule ν reste présente en mémoire. Sa désallocation intervient lorsque toutes ses cellules voisines ont été capturées. Le cas échéant, la cellule ν prend pour adresse informatique celle de son grain d'appartenance. Un des avantages de l'approche CA est la rapidité d'exécution de son algorithme. Elle trouve néanmoins sa faiblesse dans le volume des données à stocker qui peut rapidement devenir considérable, notamment pour un calcul mené sur un domaine de grandes dimensions. Diverses optimisations sont implémentées à ce niveau [Car12]. L'une d'entre elle consiste, pour un grain donné, à stocker son numéro et ses orientations cristallographiques (1 valeur en 2D, 3 valeurs en 3D) une seule fois par grain. Toutes les cellules appartenant à un même grain ont pour attribut l'adresse du grain (pointeur en C++), et peuvent donc s'y référer directement.

4.4 Exemples

Croissance dendritique La figure II.9 donne un exemple d'application du modèle CA-FE, en 3D, pour la modélisation de la transition colonnaire-équiaxe sur un lingot d'Al-7%pds Si [Car12]. Le domaine simulé est un cylindre de rayon 35 mm et de hauteur 173 mm. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 250 \mu\text{m}$, soit environ 43×10^6 cellules couvrant l'intégralité du domaine. Une loi de germination surfacique est utilisée. Les sites de

germination surfacique sont répartis sur le disque inférieure et selon une densité de surface $n^s = 5 \times 10^5 \text{ m}^{-2}$. Les surfusions de germination associées aux sites surfaciques sont réparties aléatoirement et fixées à $\Delta T_N = 0^\circ\text{C}$. La germination des grains équiaxes dans le liquide surfondu est rendue possible par l'utilisation d'une loi de germination volumique, de densité $n^v = 10^{10} \text{ m}^{-3}$, de surfusion moyenne $\Delta T_N^\mu = 5,19^\circ\text{C}$ et d'écart type $\Delta T_N^\sigma = 0,5^\circ\text{C}$. Ce calcul a été réalisé en 3 jours et 6 heures sur 16 cœurs [Car12].

Cette simulation est intéressante vis-à-vis de l'étude effectuée sur la compétition de croissance dendritique présentée dans le chapitre suivant. Comme décrit dans le chapitre précédent, peu après la germination, de nombreux grains n'ont pas survécu et ont vu leur croissance bloquée par des grains adjacents. Les grains dont les directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ sont les mieux orientées par rapport au gradient de température peuvent continuer de croître et former la morphologie colonnaire. Puis, l'abaissement du gradient de température en avant de l'interface solide/liquide augmente la zone de liquide surfondu. Si, localement, la surfusion est suffisante, les sites de germination présents dans le volume vont permettre la formation de grains équiaxes. La croissance de ces grains bloque mécaniquement l'avancée du front colonnaire définissant, en conséquence, la transition colonnaire-équiaxe.

Croissance du silicium polycristallin La figure II.10 donne les résultats d'un calcul CA-FE 3D modélisant la structure de grains obtenue après solidification d'un lingot industriel de silicium pur, de section carrée $19,2 \times 19,2 \text{ mm}^2$ et de hauteur 2,08 m [Car12]. Le but de ce calcul n'est pas de comparer quantitativement les résultats de la simulation avec des observations expérimentales, mais plutôt d'estimer la faisabilité d'un calcul à l'échelle macroscopique et les limites de la parallélisation du code CA-FE. La taille des cellules est de $250 \mu\text{m}$, représentant $4,9 \times 10^9$ cellules au total sur le lingot. De plus, la croissance de $1,6 \times 10^6$ grains est suivie. Ce calcul a été produit en environ 32 jours sur 32 cœurs.

L'accord qualitatif entre le wafer expérimental, figure II.10 (b) et les section planes du lingot, figure II.10 (c) et (d), n'est pas mauvais, notamment au niveau de la densité de grains. Des meilleurs résultats seraient obtenus en utilisant une taille de cellule de $100 \mu\text{m}$ [Car12]. Il a cependant été estimé que la faisabilité d'un tel calcul nécessite d'être mené sur 500 cœurs. Il est cependant difficilement envisageable, pour une société industrielle, d'effectuer une simulation de un mois sur 500 cœurs. De plus, il a été montré [Car12] que l'efficacité de la parallélisation du code CA-FE décroît au-delà de 64 cœurs.

Si la comparaison qualitative entre le wafer expérimental et sa simulation est acceptable, deux phénomènes importants ne sont pas considérés : la croissance d'interfaces facettées et la germination de grains en relation de macle sur ces mêmes interfaces. Dans [Car12], la modélisation de ces phénomènes n'a pas été implémentée. Si les macles sont difficilement distinguables figure II.10 (b), on se permet de supposer que de nombreux grains en relation de macle ont germé, comme c'est très souvent le cas lors de la production de lingots industriels de silicium [Duf10]. Modéliser ces événements par l'approche CA est donc l'un des objectifs de ce projet de doctorat. Néanmoins, nous n'ambitionnons pas d'effectuer des calculs à une telle échelle. Il est en effet visé d'effectuer des analyses statistiques sur les différentes germinations de grains macclés. Ce type d'analyse ne présente pas de réel intérêt pour un calcul mené sur un domaine de dimensions égales à celles de la figure II.10 (a).

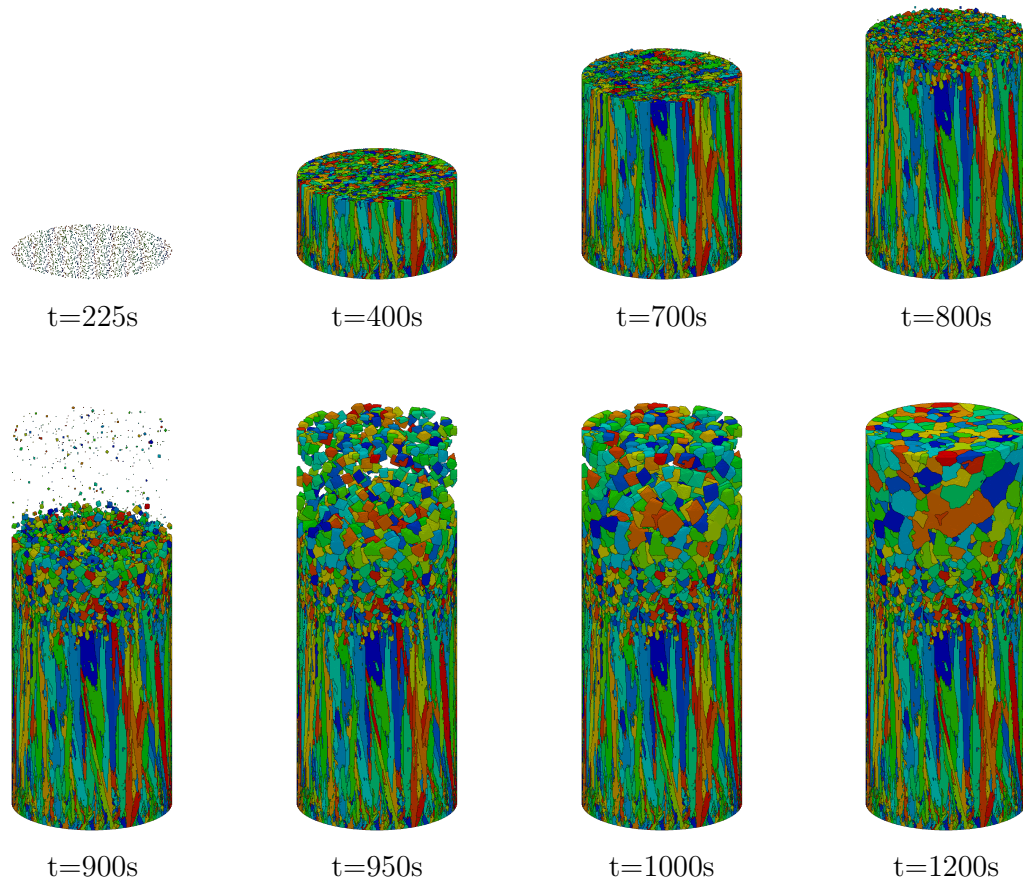


Figure II.9 – Vues 3D de la modélisation par le modèle CA-FE de la transition colonnaire-équiaxe pour un lingot d'Al-7%pds Si [Car12].

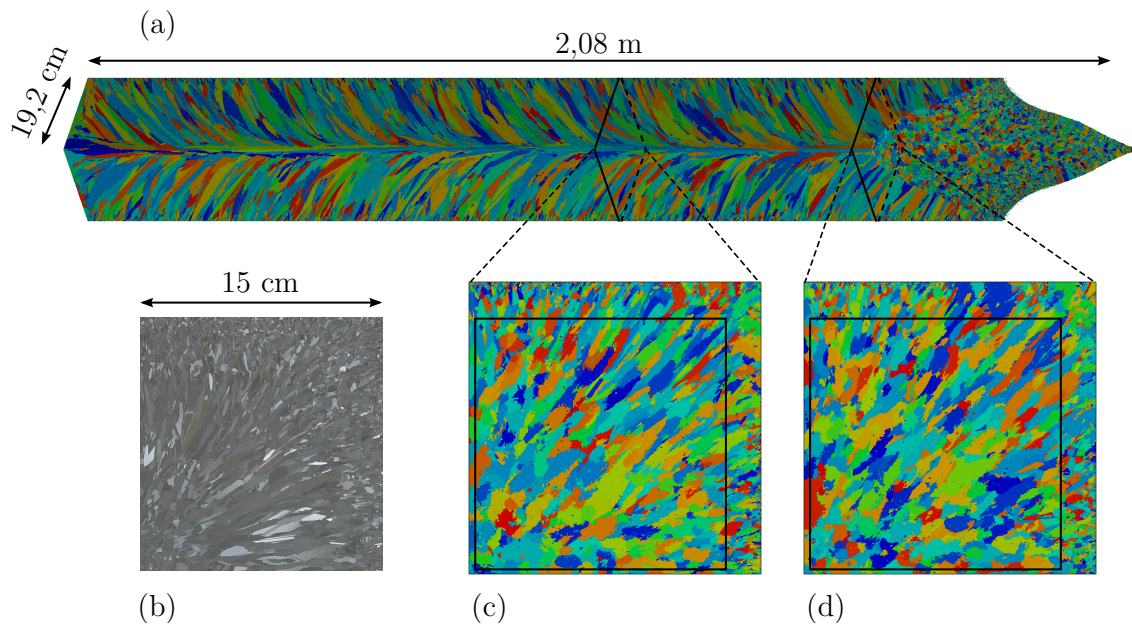


Figure II.10 – (a) Lingot 3D modélisé avec l'approche CA-FE, (b) wafer expérimental après découpe, sections transverses du lingot de la simulation CA-FE à (c) 1,1 m et à (d) 1,8 m du bas du lingot [Car12].

5 Le modèle de Nadri *et al.*

5.1 Considérations générales

Ce modèle numérique a été développé, en 2D, par Nadri et Duffar [Nad12; Nad14]. Il est dédié uniquement à la modélisation de la croissance du silicium polycristallin. Le but est de décrire l'évolution des joints de grains et de l'interface solide/liquide, tout en incluant la formation de sillon aux joints de grains et la germination de grains en relation de macle. Le champ de température est calculé par un logiciel tiers et les résultats, principalement la morphologie des isothermes à chaque pas de temps, sont enregistrés puis utilisés comme entrées pour la croissance des grains. Ce modèle ne décrit donc pas explicitement l'enveloppe externe des grains, tel que le fait l'approche CA, mais décrit l'interface solide/liquide et les joints de grains par des nuages de points. La structure de grains correspondante est construite à partir de ces données.

5.2 Principe de résolution

La germination initiale des grains s'effectue dans la partie inférieure du domaine de simulation et à chaque grain est attribuée une orientation cristallographique tirée aléatoirement. Le nombre de germe initial est donné par l'utilisateur et leur répartition spatiale est effectuée, également, par tirage aléatoire. Pour chaque grain, les 4 normales des plans $\{11\}$ des grains sont calculées. Cela permettra, lors de la croissance, de sélectionner pour un grain donné les facettes $\{11\}$ pouvant potentiellement se former. Les joints de grains sont repérés pour chaque grain voisin et un « type » de joint de grains est aléatoirement tiré, pouvant alors être « rugueux » ou « facetté ». Dans le cas d'un joint de grains « facetté », et pour les deux grains en contact, les facettes $\{11\}$ favorables pour la croissance correspondent à celles les mieux orientées par rapport aux isothermes. Ainsi, seules les facettes $\{11\}$ dont les normales sont orientées selon la direction de croissance et vers le joint de grains peuvent être sélectionnées. Le cas échéant, le joint de grains suit la bissectrice des deux facettes $\{11\}$.

La croissance est ensuite effectuée en prenant en compte trois événements : l'intersection de deux joints de grains, la germination de grains en relation de macle et le changement d'orientation des joints de grains. L'intersection de deux joints de grains permet de prendre en compte la compétition de croissance. La germination d'un nouveau grain en relation de macle n'est possible que pour les joints de grains de type « facetté » et se produit sur l'une des deux facettes $\{11\}$ décrivant le sillon de joint de grains facetté/facetté. Ces événements sont aléatoires et fonction d'une loi de distribution gaussienne. L'orientation cristallographique du nouveau grain maculé est identique à celle du grain ayant la facette $\{11\}$ où l'événement de germination s'est produit. Le développement de facettes $\{11\}$ avec les bords du domaine n'étant pas pris en compte, la germination de grains maculés sur celles-ci ne l'est pas non plus. Enfin, le changement d'orientation des joints de grains est dû à la morphologie des isothermes qui n'est pas plane durant la croissance. Pour un sillon de joint de grains facetté/facetté, il se peut qu'une facette $\{11\}$ le constituant ne soit plus, à un instant donné, favorablement orientée localement par rapport aux isothermes. La facette $\{11\}$ disparaît, et une nouvelle facette $\{11\}$, alors favorablement orientée localement par rapport aux isothermes, est sélectionnée.

5.3 Exemple

Des exemples de ce modèle sont donnés figure II.11. La germination de grains initiaux dans la partie basse du domaine est considérée et leurs orientations cristallographiques sont comprises entre -45° et 45° . Les couleurs vertes correspondent à un angle d'orientation cristallographique positif, dans le sens direct, et négatif pour les couleurs rouges. Plus la couleur est claire et plus l'angle tend vers $\pm 45^\circ$. Inversement, l'angle tend vers 0° pour les couleurs sombres.

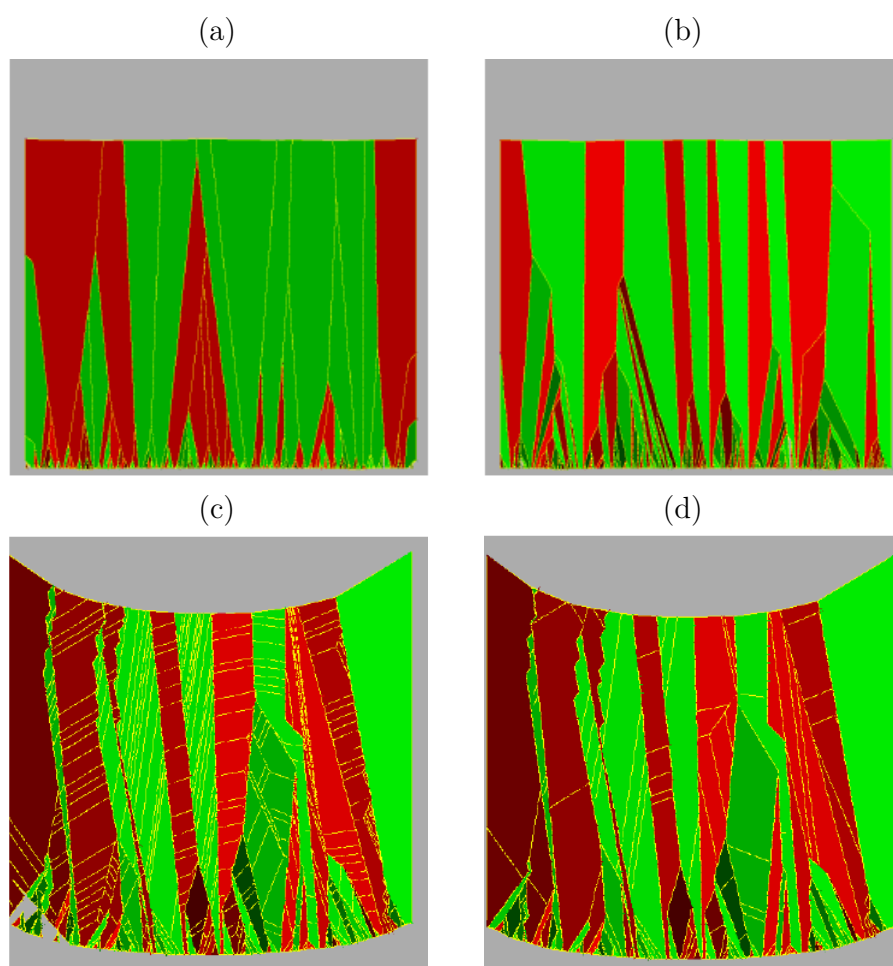


Figure II.11 – Modélisation 2D de la structure de grains du silicium polycristallin pour 244 (a,b) et 122 (c,d) germes initiaux d'orientations cristallographiques tirées aléatoirement entre -45° et 45° . Les isothermes sont planes (a,b) et courbées (c,d). (a,b) Joints de grains (a) entièrement rugueux et (b) entièrement facettés et sans germination de grains en relation de macle. (c,d) Joints de grains facettés avec germination de grains en relation de macle pour une probabilité d'évènements de germination égale à (c) $2 \pm 0,5$ mm/macle et (d) 3 ± 1 mm/macle. Figure adaptée de [Nad12].

Les figures II.11 (a) et (b) correspondent respectivement à une croissance sans formation de grains en relation de macle et une germination initiale de 244 grains. Les isothermes sont planes, le gradient de température est unidirectionnel et vertical. Le cas (a) correspond à des joints de grains uniquement de type « rugueux », et uniquement de type « facetté » pour le cas (b). Le type de joint de grains influence la croissance. Pour les joints de grains « rugueux », les grains les mieux orientés par rapport au gradient de température survivent,

cela se traduisant par une prédominance des couleurs sombres en fin de solidification. Cependant, pour des joints de grains « facettés », la sélection de croissance est plus dispersée et des grains fortement désorientés (couleurs claires) par rapport au gradient de température subsistent en fin de solidification. Une étude similaire, utilisant le modèle numérique développé dans ce travail, est présentée dans le dernier chapitre.

L'introduction d'évènements de germination de grains en relation de macle est représentée par les figures II.11 (c) et (d), où les joints de grains sont entièrement facettés et 122 germes sont initialement présents. Les isothermes sont courbées. Deux probabilités de maclage sont utilisées : $2 \pm 0,5$ mm/macle (c) et 3 ± 1 mm/macle (d). Pour la probabilité la plus importante, en (c), le nombre de grains en fin de solidification est plus important et plusieurs grains désorientés par rapport au gradient de températures (couleurs claires) sont toujours présents. Ces phénomènes sont moins accentués pour une probabilité de maclage plus faible, en (d).

Ce modèle est donc intéressant car il prend en compte, néanmoins partiellement, les deux principales spécificités de la croissance du silicium polycristallin, à savoir la formation d'interfaces facettées et la germination de grains en relation de macle sur celles-ci. Il ne considère cependant pas la formation de sillons aux joints de grains de type facetté/rugueux et la croissance de facettes $\{111\}$ aux bords du domaine de simulation. Une autre limite de ce modèle est qu'il a été développé uniquement en deux dimensions, cela rendant les comparaisons expérimentales difficiles.

6 Le modèle de Qi *et al.*

6.1 Considérations générales

À l'image de la méthode numérique décrite précédemment, ce modèle développé en 2D par Qi *et al.* [Qi19] est aussi dédié à la modélisation de la croissance du silicium polycristallin. Cette approche a la particularité de coupler le champ de phase et un automate cellulaire. La transition de phase est calculée par le modèle champ de phase, tandis que l'automate cellulaire a pour but de gérer la mise à jour de l'orientation cristallographique des grains et leur numéro, ces grandeurs étant discrétisées sur la grille automate cellulaire. Le changement d'état des cellules présentes dans le liquide, c'est-à-dire l'attribution à ces cellules d'un numéro de grain et d'une orientation cristallographique, dépend localement de la valeur de la fonction champ de phase. Pour une cellule donnée, si la valeur de la fonction champ de phase en un nœud, appartenant à la cellule, est supérieure à un seuil, alors un numéro de grain et son orientation cristallographique correspondante sont attribués à la cellule. L'utilisation de l'automate cellulaire diffère donc grandement de l'approche présentée précédemment, section 4.

Ce modèle permet la modélisation de la croissance de sillons facetté/facetté. Il considère aussi la germination de nouveaux grains en relation de macle. Ces germinations ne dépendent pas de conditions thermiques locales, mais sont gérées uniquement par tirage de nombres aléatoires. Une valeur seuil de germination est fixée, et si un nombre tiré aléatoirement est inférieur à ce seuil, alors un nouveau grain est créé localement au niveau d'une facette $\{111\}$ constituant un sillon facetté/facetté. Le modèle ayant été développé en deux dimensions, l'orientation cristallographique du nouveau grain en relation de macle est égale à celle du grain possédant la facette $\{111\}$ sur laquelle le grain a germé.

6.2 Exemple

La figure II.12 montre une comparaison entre des résultats de simulation, en (a-c), et des observations expérimentales, en (d), effectuées par Riberi-Béridot *et al.* [Rib15]. Le domaine simulé correspond à une zone précise de l'expérience et a pour dimensions $16 \times 2,8 \text{ mm}^2$. Le temps de calcul et la puissance requise ne sont pas précisés dans [Qi19]. Les résultats simulés sont globalement en bon accord avec les observations expérimentales, bien que le nombre de macles soit légèrement plus importants dans la simulation. Les fractions surfaciques des différents grains, différenciés par des numéros figure II.12, ont de plus été calculées et sont proches des valeurs expérimentales.

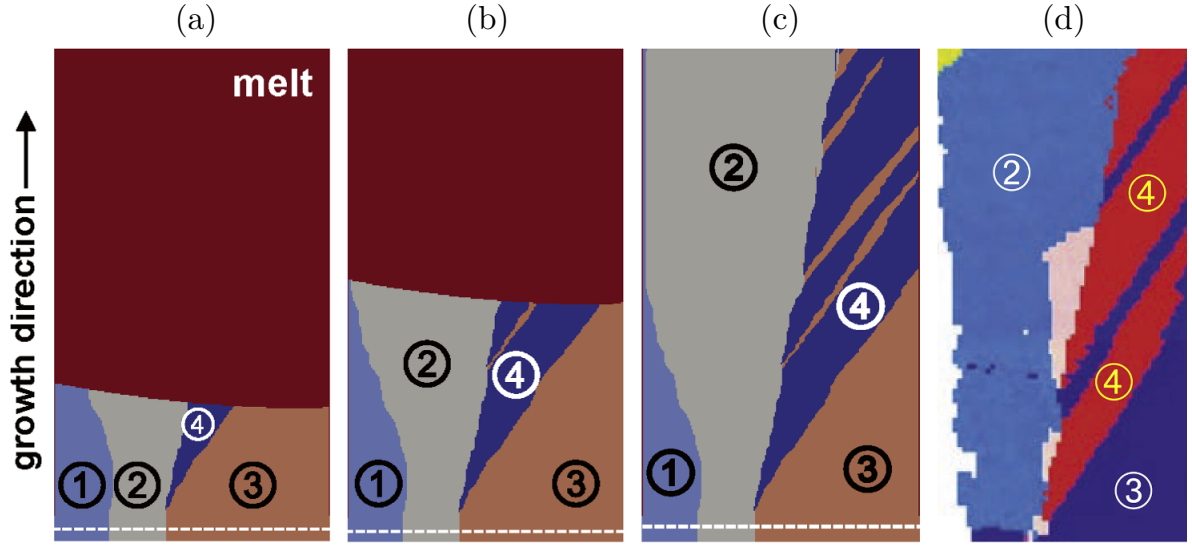


Figure II.12 – Résultat d'une simulation à différentes étapes de solidification : (a) 25 %, (b) 50 % et (c) 100 %. Observations expérimentales [Rib15] où $G = 14,5 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = 2 \text{ K min}^{-1}$. Figure adaptée de [Qi19].

Ce modèle numérique permet donc de reproduire, assez fidèlement, une expérience de solidification pour du silicium polycristallin. Néanmoins, il ne se base ici que sur une zone précise de l'échantillon et nous pouvons supposer que l'échelle spatiale constitue une potentielle limite. Ce modèle étant uniquement développé en 2D, l'intégration du processus de germination de grains en relation de macle peut s'avérer problématique car le maclage nécessite naturellement des simulations 3D, afin d'être représentatif des phénomènes physiques se déroulant lors de la croissance des grains.

7 Conclusions

De nombreux modèles numériques ont donc été développés dans le but de modéliser les procédés de solidification. Cette transition de phase est complexe et fait intervenir des phénomènes se situant à des échelles très variées, allant de l'échelle atomique à l'échelle macroscopique. Aucun modèle numérique ne permet, actuellement, de prendre en compte cette diversité. Pour la modélisation de la croissance de structures dendritiques, le modèle champ de phase s'est imposé, de part sa précision, comme la référence. Il permet en effet la modélisation des branches dendritiques primaires et secondaires, ainsi que les interactions entre elles aux joints de grains (figure II.4). Le modèle champ de phase est

néanmoins limité par l'échelle spatiale, qui peut conduire à des temps de calcul prohibitifs. À l'inverse, le modèle CA-FE permet de modéliser les structures granulaires de manière plus approximative, mais sur des pièces de dimensions industrielles (figure II.10). Concernant la modélisation de la croissance du silicium polycristallin, de nombreux efforts ont été effectués ces 10 dernières années, notamment en champ de phase. On note aussi l'apparition de méthodes moins conventionnelles et dédiées au silicium polycristallin [Nad14 ; Qi19].

Dans le chapitre suivant, nous nous intéressons à la compétition de croissance dendritique. Une étude CA est proposée et se base sur des résultats de simulations champ de phase qui sont précisément décrits. Une comparaison entre des calculs CA et l'expérience d'Esaka [Esa86] (figure I.3) est aussi proposée.

Chapitre III

Compétition de croissance dendritique

Ce chapitre présente une étude dédiée à la compétition de croissance dendritique basée sur le modèle automate cellulaire. Le but est d'étudier l'évolution de l'angle de joint de grains résultant de la compétition de croissance de deux grains adjacents, en fonction de leurs orientations cristallographiques respectives. Nous présentons premièrement trois critères donnant une prédiction de l'angle de joint de grains selon les orientations des deux grains en contact. La mise en donnée des calculs CA est ensuite présentée. Les résultats obtenus seront décrits en se basant sur les critères de prédiction. De plus, ces résultats seront comparés à une étude champ de phase aussi focalisée sur la compétition de croissance dendritique. Finalement, l'expérience d'Esaka est investiguée.

Sommaire

1	Introduction	49
2	Critères de sélection de croissance	51
2.1	Le critère FOG	51
2.2	La limite géométrique	51
2.3	Champ de phase formalisé (rev-FOG)	56
2.4	Comparaison des critères	57
3	Mise en donnée des calculs CA	58
3.1	Propriétés de l'alliage, cinétique et paramètres numériques	59
3.2	Cinétique de croissance	61
3.3	Détermination de l'angle de joint de grains	63
4	Résultats et discussions	64
4.1	Cartes de simulation	64
4.2	Taille de marche $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$	66
4.3	Voisinage et localisation de l'estimation de la température	68
4.4	Comparaisons des modèles CA et champ de phase	71
5	Expérience d'Esaka	74
5.1	Objectifs et mise en donnée des calculs CA	74
5.2	Résultats	75
5.3	Cartes de sélection CA adaptatives	82
6	Conclusions	85

1 Introduction

La revue bibliographique a montré que la morphologie granulaire dendritique est omniprésente dans les pièces métalliques obtenues par procédé de solidification. L'étude de son développement est ainsi importante pour la production de pièces moulées destinées à des produits technologiques innovants tels que, par exemple, les aubes de turbines en superalliage base nickel pour les moteurs d'avions. Les études théoriques les plus développées se sont principalement focalisées sur la microstructure dendritique interne des grains, c'est-à-dire le rayon de la pointe de dendrite ainsi que les distances interdendritiques primaires et secondaires. La formation et l'orientation des joints de grains résultants de la compétition de croissance dendritique, durant les processus de solidification dirigée, ont cependant été moins investiguées dans la littérature.

La figure III.1 montre deux simulations en champ de phase de compétition de croissance pour un bicristal [Pin18]. Deux configurations divergente (a) et convergente (b) sont représentées et seront plus précisément décrites ultérieurement. Les angles ϕ_1 et ϕ_2 , où $-45^\circ \leq \phi_1 \leq 45^\circ$ et $-45^\circ \leq \phi_2 \leq 45^\circ$, définissent les orientations des branches primaires des grains de gauche et droite, respectivement, elles-mêmes alignées dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$. L'orientation du joint de grains est définie par l'angle θ et résulte de l'interaction des branches primaires et secondaires au niveau du joint de grains.

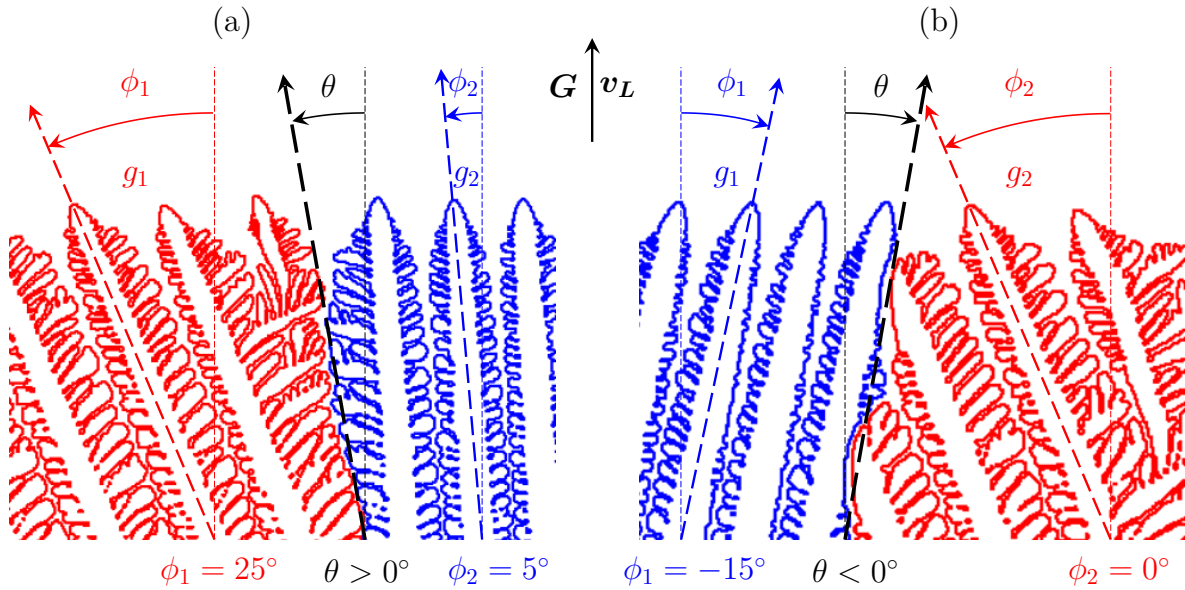


Figure III.1 – Calculs champ de phase modélisant la compétition de croissance dendritique de deux grains. L'orientation cristallographique ϕ_1 (respectivement ϕ_2) du grain de gauche noté g_1 (respectivement du grain de droite noté g_2) définit les directions des branches dendritiques primaires. L'orientation θ du joint de grains résulte de l'interaction des branchements au joint de grains pour le bicristal. Une distinction est faite entre une configuration (a) divergente et (b) convergente. La valeur des angles d'orientation est mesurée selon la direction du gradient de température, $\mathbf{G}$, ou de la vitesse des isothermes, $\mathbf{v}_L$, dirigées verticalement. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 , définies dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$, sont positives dans le sens anti-horaire [Pin18].

Comme précisé dans le chapitre précédent, numériquement, la méthode champ de phase s'est imposée comme une référence pour la modélisation de la croissance dendritique. Elle a

été appliquée à la compétition de croissance entre grains dendritiques en 2D [Tou15 ; Tou17] et 3D [Tak13]. Les résultats numériques obtenus par champ de phase peuvent seulement être comparés qualitativement avec l'expérience. En effet, les mesures expérimentales précises des orientations angulaires obtenues au niveau des joints de grains sont rarement, voire jamais, déterminées. Néanmoins, les simulations champ de phase fournissent une compréhension des mécanismes de compétition entre les branches de dendrites au joint de grains. L'influence du gradient de température a aussi été étudiée [Tak16a ; Tou15].

Dans ce chapitre, nous nous basons premièrement sur une étude menée par Tourret *et al.* [Tou17] qui ont modélisé, en 2D, la sélection du joint de grains pour un système bicristallin en solidification dirigée. Un champ de température unidirectionnel est appliqué, le gradient et la vitesse des isothermes étant alignés selon la direction verticale (figure III.1) du domaine de simulation rectangulaire, de hauteur 2,56 mm et de largeur 2,05 mm. Le gradient de température vaut 3000 K m^{-1} et la vitesse des isothermes $25 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1}$. L'étude est effectuée pour un alliage de succinonitrile-0,4% pds acétone. Une simulation débute avec deux grains formant un front de solidification dont l'interface solide/liquide est plane et en croissance à la température du liquidus. Les deux grains en compétition sont notés g_1 et g_2 , d'orientations cristallographiques ϕ_1 et ϕ_2 , respectivement, et comprises dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$ (figure III.1). Pour un couple (ϕ_1, ϕ_2) donné, 10 simulations sont effectuées et chacune diffère par les événements de branchements dendritiques aléatoirement générés. Pour chaque simulation, l'angle de joint de grains θ est déterminé et moyenné sur les 10 simulations pour le couple angulaire étudié. Au total, 480 simulations sont produites. Une unique simulation dure 16 heures sur un GPU (Tesla K40c) et 255 jours de simulations ont donc été nécessaires pour couvrir l'intégralité des couples angulaires (ϕ_1, ϕ_2) choisis. Le choix de ces derniers est présenté dans la section 3.

Dans un premier temps, le but de ce chapitre est donc de produire des simulations CA telles que correspondant aux configurations de l'étude champ de phase introduite ci-dessus (paramètres de l'alliage, histoire thermique, cinétique de croissance et couples angulaires utilisés). De manière identique, pour un couple (ϕ_1, ϕ_2) donné, la valeur de l'angle de joint de grain θ est déterminée et l'intégralité des résultats est présentée sous forme de carte angulaire, donnant les valeurs de θ pour tous les couples angulaires choisis. Ces cartes sont aussi comparées à trois autres cartes associées à trois critères concurrents donnant également une relation $\theta = f(\phi_1, \phi_2)$. Ces critères sont : (i) *Favorably Oriented Grain* (FOG), inspiré du travail de Walton et Chalmers [Wal59] mentionné dans le chapitre I, (ii) un modèle développé dans ce travail, nommé la *Limite Géométrique* (LG) et (iii) un modèle de lois phénoménologiques extraites des résultats des simulations champ de phase [Tou15 ; Tou17], nommé *revised-Favorably Oriented Grain* (rev-FOG). Par la suite, dans la dernière section, le bicristal divergent de l'expérience d'Esaka sera étudié (figure I.3 (a), page 12). Le but sera d'effectuer une étude paramétrique et de déterminer quels paramètres permettent de s'approcher au mieux de la valeur expérimentale de l'angle de joint de grains.

Dans ce chapitre et pour le reste du document, en 2D, les angles d'un bicristal sont définis par ϕ_1 et ϕ_2 , tel qu'écrit précédemment. En 3D, les orientations cristallographiques sont définies par les angles d'Euler selon la convention de Bunge [Bun82] et notés $\varphi_1, \phi, \varphi_2$ correspondant à la précession, à la nutation et à la rotation propre, respectivement. Pour un bicristal formé par deux grains g_1 et g_2 , leurs orientations cristallographiques sont définies par les triplets d'angles d'Euler notés $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1})$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2})$, respectivement.

2 Critères de sélection de croissance

2.1 Le critère FOG

Le critère FOG établit simplement que, pour un bicristal, le grain dont la direction de croissance est la mieux alignée avec le gradient de température est favorisé et survit à la compétition de croissance. La valeur de son angle ϕ définit alors la valeur de θ . En se basant sur la définition des angles donnée figure III.1, le critère FOG est simplement exprimé selon :

$$\theta_{\text{FOG}}(\phi_1, \phi_2) = \begin{cases} \phi_1 & \text{si } |\phi_1| < |\phi_2| \\ \phi_2 & \text{si } |\phi_2| < |\phi_1| \end{cases} \quad (\text{III.1a})$$

$$(\text{III.1b})$$

La représentation de ce critère sous forme de carte de sélection angulaire est donnée figure III.2. Pour un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) où ϕ_1 est tracé en abscisses et ϕ_2 en ordonnées, la valeur de θ correspondante, définie par les équations (III.1a) et (III.1b), se lit directement sur la carte via le code couleur associé. Les principales propriétés du critère FOG sont l'axe de symétrie $\phi_1 = \phi_2$ défini par $\theta_{\text{FOG}}(\phi_1, \phi_2) = \theta_{\text{FOG}}(\phi_2, \phi_1)$ et l'axe antisymétrique $\phi_1 = -\phi_2$ défini par $\theta_{\text{FOG}}(\phi_1, \phi_2) = -\theta_{\text{FOG}}(-\phi_2, -\phi_1)$.

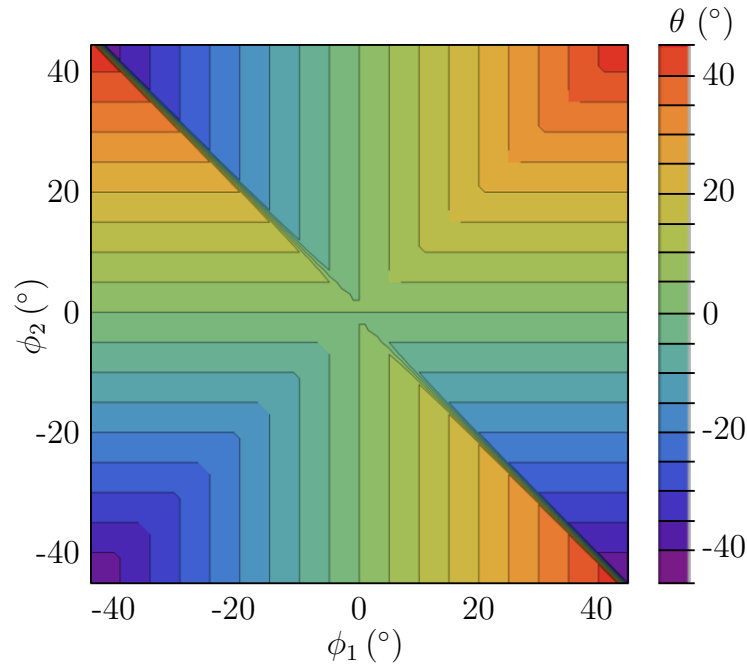


Figure III.2 – Carte de sélection angulaire donnant les valeurs de l'angle θ de joint de grains en fonction de ϕ_1 (abscisse) et ϕ_2 (ordonnée) selon le critère FOG. La définition des angles ϕ_1 , ϕ_2 et θ est donnée figure III.1. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 sont comprises dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$.

2.2 La limite géométrique

La limite géométrique (LG) est un modèle considérant des successions d'embranchements dendritiques infinitésimaux et perpendiculaires selon les directions $\langle 10 \rangle$ de croissance.

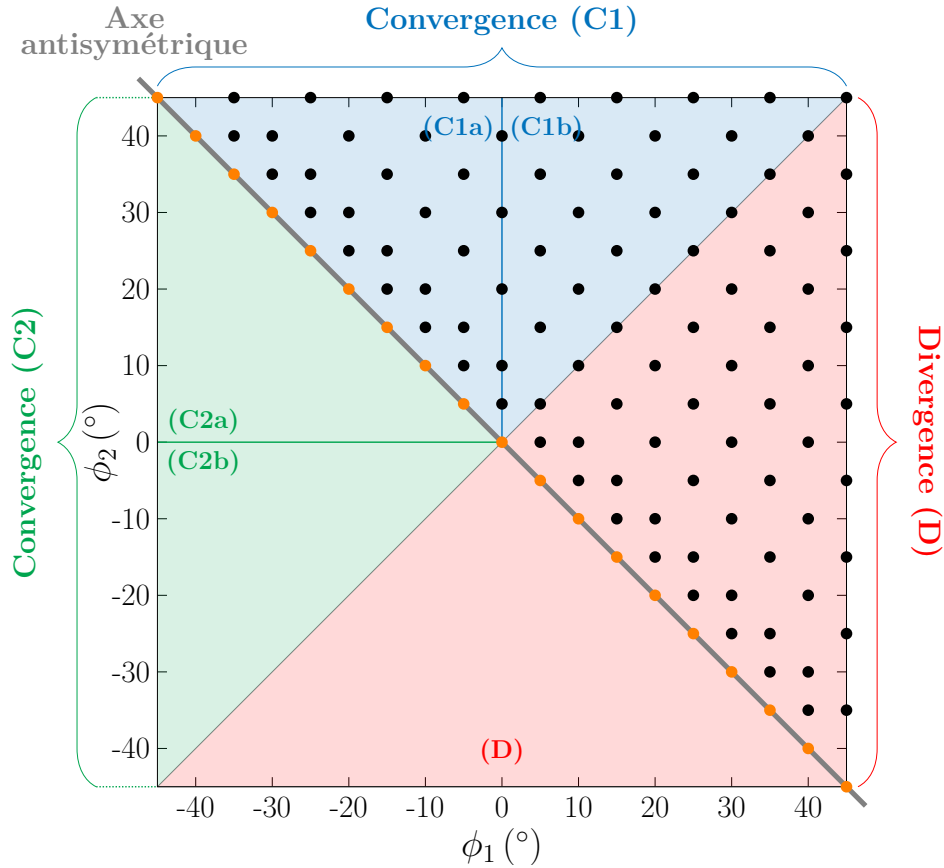


Figure III.3 – Représentation schématique des domaines angulaires spécifiques à la limite géométrique. Ces domaines sont propres à des systèmes de branchements dendritiques distincts se développant au joint de grains, pour deux grains d'angles ϕ_1 et ϕ_2 en compétition de croissance. Les conventions angulaires utilisées sont données figure III.1. Le domaine divergent (D), en rouge, est tel que $\phi_1 > \phi_2$. Deux domaines de convergence sont définis. Le domaine convergent (C1), en bleu, est tel que $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$, $\phi_1 < \phi_2$ et est divisé en deux sous-domaines : (C1a) où $\phi_1 < 0^\circ$ et (C1b) où $\phi_1 > 0^\circ$. Le dernier domaine convergent (C2), en vert, est tel que $(\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ$, $\phi_1 < \phi_2$ et lui aussi divisé en deux sous-domaines : (C2a) où $\phi_2 > 0^\circ$ et (C2b) où $\phi_2 < 0^\circ$. Les points oranges et noirs représentent les couples angulaires sélectionnés pour l'étude CA présentée en section 4.1.

L'échelle à laquelle ces embranchements sont considérés est donc bien inférieure à celle de la figure III.1. Ce modèle vise à donner une expression analytique de θ en fonction de ϕ_1 et ϕ_2 . De ce fait, les embranchements dendritiques, pour deux grains en compétition, sont uniquement étudiés au niveau du joint de grains. À l'image du critère FOG, la limite géométrique ne prend pas en compte la composition du matériau et les conditions de refroidissement, à savoir le gradient de température et la vitesse de refroidissement.

Une configuration divergente correspond à deux grains en compétition dont les branches dendritiques primaires croissent dans des directions $\langle 10 \rangle$ telles que celles-ci s'écartent au cours de la croissance, comme montré figure III.1 (a). Inversement, les branches primaires figure III.1 (b) se rencontrent et interagissent dans une configuration convergente. Comme l'illustre la figure III.3, il existe trois principales configurations de compétition de croissance, à savoir la configuration divergente (D), définie par $\phi_1 > \phi_2$ et deux configurations convergentes, (C1) et (C2), définies par $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$, $\phi_1 < \phi_2$ et $(\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ$, $\phi_1 < \phi_2$, respectivement. Les deux domaines de convergences peuvent être divisés en deux sous-

domaines. Pour (C1), on a (C1a) où $\phi_1 < 0^\circ$ et (C1b) où $\phi_1 > 0^\circ$. Similairement, pour (C2), on a (C2a) et (C2b) où $\phi_2 > 0^\circ$ et $\phi_2 < 0^\circ$, respectivement.

La figure III.4 illustre les séquences d'embranchements dendritiques au joint de grains s'effectuant durant un intervalle de temps infiniment petit δt . Les différentes configurations schématisées correspondent aux domaines représentés figure III.3. Nous décrivons donc maintenant comment, pour ces configurations, établir une relation entre θ et un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) donné.

Configurations convergentes Les configurations (C1) et (C2) sont simultanément décrites. Pour ces systèmes, un seul grain développe uniquement des branches primaires au joint de grains, à savoir le grain g_2 pour le cas (C1) et g_1 pour le cas (C2). La propagation de cette branche primaire est notée δx_1 sur la figure III.4. Inversement, un unique grain développe des branches secondaires au joint de grains, à savoir le grain g_1 pour le cas (C1) et g_2 pour le cas (C2). La succession de branchements primaires puis secondaires, dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$ est notée δx_2 et δx_3 , respectivement. Il est important de rappeler que nous considérons ici des parcours infiniment petits. Cela nous permet de considérer que, au joint de grains, les différentes propagations ($\delta x_1, \delta x_2$ et δx_3) s'effectuent à une surfusion identique et donc à une vitesse de croissance $v_{\langle 10 \rangle}$ identique. Pour (C1) et (C2), on a donc :

$$\begin{cases} \delta x_1 = v_{\langle 10 \rangle} \delta t & \text{(III.2a)} \\ \delta x_2 + \delta x_3 = v_{\langle 10 \rangle} \delta t & \text{(III.2b)} \end{cases}$$

ce qui égalise les quantités δx_1 et $\delta x_2 + \delta x_3$. D'un point de vue trigonométrique les relations suivantes sont aussi vérifiées, et nous avons pour (C1) :

$$\begin{cases} \delta x_1 \cos \phi_2 = \delta x \cos \theta & \text{(III.3a)} \\ \delta x_2 = \delta x \cos (\phi_1 - \theta) & \text{(III.3b)} \\ \delta x_3 = \delta x \sin (\phi_1 - \theta) & \text{(III.3c)} \end{cases}$$

et pour (C2) :

$$\begin{cases} \delta x_1 \cos \phi_1 = \delta x \cos \theta & \text{(III.4a)} \\ \delta x_2 = \delta x \cos (\phi_2 - \theta) & \text{(III.4b)} \\ \delta x_3 = -\delta x \sin (\phi_2 - \theta) & \text{(III.4c)} \end{cases}$$

En combinant les équations (III.3a), (III.3b) et (III.3c), on a pour (C1) :

$$\frac{\cos \theta}{\cos \phi_2} = \cos (\phi_1 - \theta) + \sin (\phi_1 - \theta) \quad \text{(III.5)}$$

et pour (C2), en combinant les équations (III.4a), (III.4b) et (III.4c) :

$$\frac{\cos \theta}{\cos \phi_1} = \cos (\phi_2 - \theta) - \sin (\phi_2 - \theta) \quad \text{(III.6)}$$

Une unique solution existe, n'étant pas comprise dans l'intervalle $[\phi_1, \phi_2]$ pour (C1) et aussi en dehors de cet intervalle pour (C2), comme attendu et montré par les constructions géométriques schématisées figure III.4 (C1) et (C2). Après développement, on a pour (C1) :

$$\theta_{\text{LG}}(\phi_1, \phi_2) = \tan^{-1} \left(\frac{\cos \phi_1 + \sin \phi_1 - \sec \phi_2}{\cos \phi_1 - \sin \phi_1} \right) \quad \text{(III.7)}$$

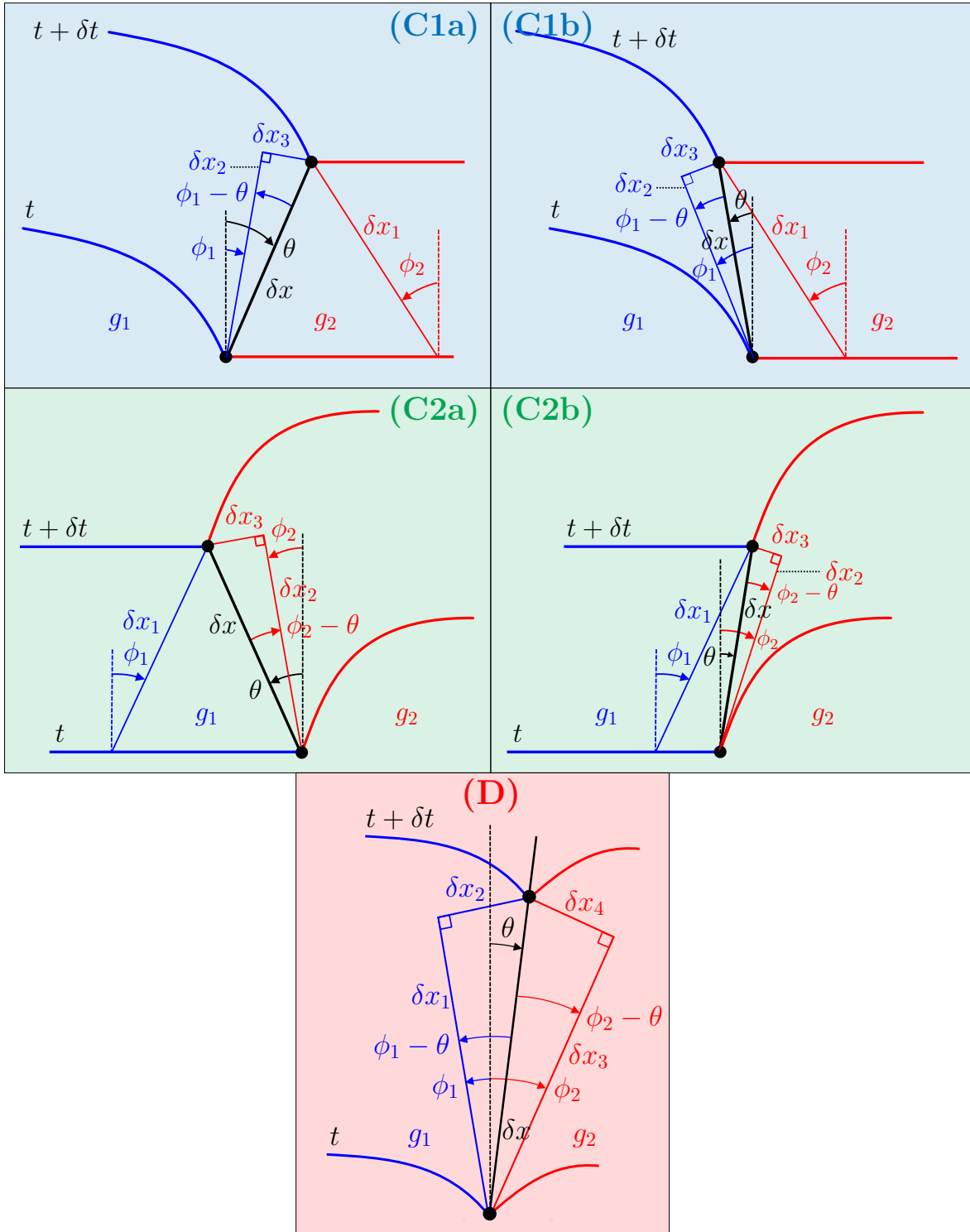


Figure III.4 – Représentation schématique des différents systèmes d’embranchements dendritiques définissant la limite géométrique. La croissance des branches s’effectue au niveau du joint de grains, dans les directions $\langle 10 \rangle$ cristallographiques, et pour deux grains en compétition notés g_1 (gauche) et g_2 (droite) d’orientations respectives ϕ_1 et ϕ_2 . Deux configurations convergentes, (C1) et (C2), et une configuration divergente (D) sont considérées. Ces configurations correspondent aux sous-domaines représentés figure III.3. Les configurations (C1a) et (C1b) (respectivement (C2a) et (C2b)) sont équivalentes.

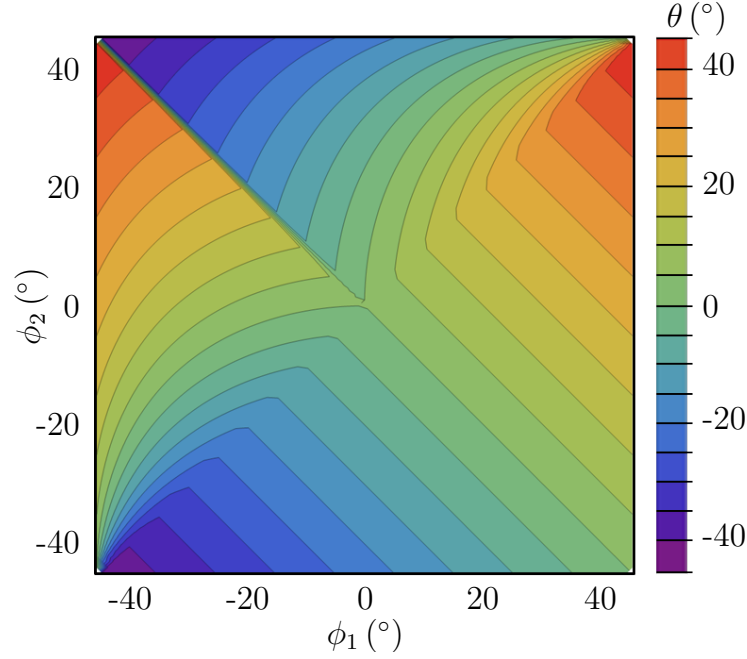


Figure III.5 – Carte de sélection angulaire donnant les valeurs de l'angle de joint de grains θ en fonction de ϕ_1 (abscisse) et ϕ_2 (ordonnée) selon la limite géométrique. La définition des angles ϕ_1 , ϕ_2 et θ est donnée figure III.1. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 sont comprises dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$.

et pour (C2) :

$$\theta_{\text{LG}}(\phi_1, \phi_2) = \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + \sec \phi_1}{\cos \phi_2 + \sin \phi_2} \right) \quad (\text{III.8})$$

où $\sec(x)$ est la fonction sécante, telle que $\sec(x) = 1/\cos(x)$ et définie pour tout $x \in \mathbb{R} - \{\pi/2 + k\pi, k \in \mathbb{Z}\}$. Notons que l'équation (III.7) (respectivement l'équation (III.8)) est valable pour (C1a) et (C1b) (respectivement (C2a) et (C2b)), ces configurations de branchements étant équivalentes.

Configuration divergente La compétition de deux grains divergents se distingue par le fait que les deux grains développent des branchements primaires et secondaires au joint de grains, tel que le schématise la figure III.4 (D). On écrit donc :

$$\begin{cases} \delta x_1 + \delta x_2 = v_{\langle 10 \rangle} \delta t \\ \delta x_3 + \delta x_4 = v_{\langle 10 \rangle} \delta t \end{cases} \quad (\text{III.9a})$$

$$(\text{III.9b})$$

les relations trigonométriques correspondantes étant :

$$\begin{cases} \delta x_1 = \delta x \cos(\phi_1 - \theta) \\ \delta x_2 = \delta x \sin(\phi_1 - \theta) \\ \delta x_3 = \delta x \cos(\phi_2 - \theta) \\ \delta x_4 = -\delta x \sin(\phi_2 - \theta) \end{cases} \quad \begin{matrix} (\text{III.10a}) \\ (\text{III.10b}) \\ (\text{III.10c}) \\ (\text{III.10d}) \end{matrix}$$

Les équations (III.10a), (III.10b), (III.10c) et (III.10d) mènent à la relation suivante :

$$\cos(\phi_1 - \theta) + \sin(\phi_1 - \theta) = \cos(\phi_2 - \theta) - \sin(\phi_2 - \theta) \quad (\text{III.11})$$

ce qui donne finalement :

$$\theta_{\text{LG}}(\phi_1, \phi_2) = \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + \cos \phi_1 + \sin \phi_1}{\sin \phi_2 + \cos \phi_2 - \sin \phi_1 + \cos \phi_1} \right) \quad (\text{III.12})$$

Notons que cette relation peut se simplifier sous la forme de la bissectrice de l'angle formé entre ϕ_1 et ϕ_2 , à savoir :

$$\theta_{\text{LG}}(\phi_1, \phi_2) = \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \quad (\text{III.13})$$

L'équation (III.12) est cependant conservée car, dans le chapitre suivant, la limite géométrique sera réécrite en introduisant un coefficient cinétique et l'équation (III.13) ne sera alors plus valable. La limite géométrique se résume donc à :

$$\theta_{\text{LG}}(\phi_1, \phi_2) = \left\{ \begin{array}{ll} \text{(C1) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_1 + \cos \phi_1 - \sec \phi_2}{\cos \phi_1 - \sin \phi_1} \right) & \text{si } (\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ \text{ et } \phi_1 < \phi_2 \\ \text{(C2) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + \sec \phi_1}{\cos \phi_2 + \sin \phi_2} \right) & \text{si } (\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ \text{ et } \phi_1 < \phi_2 \\ \text{(D) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + \cos \phi_1 + \sin \phi_1}{\sin \phi_2 + \cos \phi_2 - \sin \phi_1 + \cos \phi_1} \right) & \text{si } \phi_1 > \phi_2 \end{array} \right. \quad (\text{III.14})$$

et la carte angulaire résultante est donnée figure III.5.

2.3 Champ de phase formalisé (rev-FOG)

La figure III.6 (a) montre les résultats des calculs champ de phase [Tou17] introduits précédemment, section 1. Le critère rev-FOG est une formalisation des résultats champ de phase et est décrit par les équations suivantes :

$$\theta_{\text{rev-FOG}}(\phi_1, \phi_2) = \left\{ \begin{array}{l} \text{Si } (\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ \\ \quad \left\{ \begin{array}{l} 0^\circ \text{ si } \phi_2 < 0^\circ \\ \sin \frac{\phi_1}{\delta} (\phi_1 + \phi_2) \text{ si } \phi_1 < 0^\circ \text{ et } (\phi_1 + \phi_2) < \delta \\ \sin \frac{\phi_1}{\gamma} (45^\circ - \phi_2) \text{ si } \phi_1 > 0^\circ \text{ et } 0^\circ \leq (45^\circ - \phi_2) < \gamma \\ \sin \theta_{\text{FOG}} \end{array} \right. \\ \text{sinon } -\theta_{\text{rev-FOG}}(-\phi_2, -\phi_1) \end{array} \right. \quad (\text{III.15a})$$

où $\delta = 5^\circ$ et $\gamma = 7^\circ$ [Tou17]. La carte de sélection du critère rev-FOG est donnée figure III.6 (b) et montre qu'il permet bien d'approximer les résultats des simulations champ de phase, figure III.6 (a).

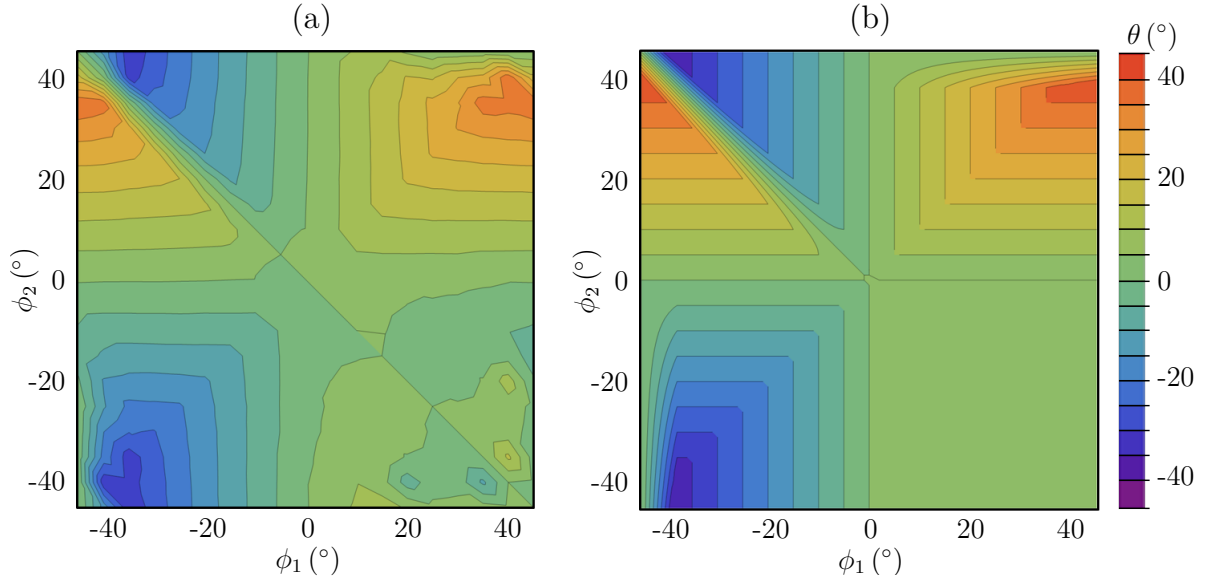


Figure III.6 – Cartes de sélection angulaire donnant les valeurs de l’angle de joint de grains θ en fonction de ϕ_1 (abscisse) et ϕ_2 (ordonnée) pour (a) les résultats des simulations champ de phase et (b) le critère rev-FOG qui formalise les résultats champ de phase. La définition des angles ϕ_1 , ϕ_2 et θ est donnée figure III.1. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 sont comprises dans l’intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$.

Ces simulations et le critère rev-FOG sont proches du critère FOG (figure III.2), sauf dans le quadrangle inférieur droit, *i.e.* $\phi_1 > 0^\circ$ et $\phi_2 < 0^\circ$, où l’angle de joint de grains θ est proche de 0° pour le champ de phase et nul pour rev-FOG. Cela signifie que le joint de grains pour un système divergent est orienté selon le gradient de température, unidirectionnel et vertical. Le quadrangle supérieur gauche est aussi similaire à FOG. Pour rev-FOG, une région de transition est introduite, d’épaisseur 2δ , selon l’axe $\phi_1 = -\phi_2$. Dans cette région, θ tend vers 0° au niveau de cet axe. Une seconde région transitoire, d’épaisseur γ , est visible aux coins supérieur droit et inférieur gauche de la carte selon les frontières $\phi_2 = 45^\circ$ et $\phi_1 = -45^\circ$, respectivement. Ces régions correspondent à une croissance dite « dégénérée » qui est progressivement observée lorsque l’un des deux grains tend vers la déviation maximale de la direction $\langle 10 \rangle$ de croissance, c’est-à-dire $\pm 45^\circ$ par rapport au gradient de température. Notons finalement que les résultats champ de phase et rev-FOG ne sont pas en bon accord avec la limite géométrique, celle-ci n’étant donc *a priori* pas un modèle satisfaisant pour la prédiction de l’angle du joint de grains. Une comparaison plus complète est développée ci-après, où nous verrons que la limite géométrique est liée à une limite de l’approche CA.

2.4 Comparaison des critères

Dans le but de comparer les trois critères entre eux, et avec les résultats champ de phase, la différence entre les valeurs de θ pour les couples (ϕ_1, ϕ_2) , notée $|\Delta\theta^{(\phi_1, \phi_2)}|$, est étudiée. Ceci est fait pour un nombre total de couples (ϕ_1, ϕ_2) $N = 213$ comprenant les 97 couples situés au dessus de l’axe $\phi_1 = -\phi_2$ (points noirs figure III.3), leur contrepartie selon l’axe antisymétrique $\phi_1 = -\phi_2$, plus les 19 valeurs situées sur la diagonale $\phi_1 = -\phi_2$ (points oranges, figure III.3). À partir de la liste des valeurs de $|\Delta\theta^{(\phi_1, \phi_2)}|$, la moyenne arithmétique

$m = (1/N) \sum_{i=1}^N x_i$ et l'écart type $s = [(1/(N-1)) \sum_{i=1}^N (x_i - m)^2]^{1/2}$ sont calculés, où x_i sont les N -valeurs des différences $|\Delta\theta^{(\phi_1, \phi_2)}|$. Pour une meilleure analyse de la distribution, la liste est triée par ordre croissant, la valeur médiane M est extraite, ainsi que le premier quartile Q_1 et troisième quartile Q_3 [Fre87]. Ces deux dernières informations donnent les valeurs aux positions 1/4 et 3/4 de la liste triée. Toutes ces valeurs sont données tableau III.1.

Tableau III.1 – Étude statistique donnant la moyenne m , l'écart type s , le premier quartile Q_1 , la valeur médiane M et le troisième quartile Q_3 des différences $|\Delta\theta^{(\phi_1, \phi_2)}|$ pour les cartes de sélection propres aux critères FOG (figure III.2), LG (figure III.5) et rev-FOG (figure III.6 (b)) ainsi que les résultats champ de phase (PF, figure III.6 (a)).

rev-FOG	FOG	LG	(m (°), s (°)) Q_1 (°), M (°), Q_3 (°)
(2,35, 1,95)	(6,17, 9,51)	(8,01, 6,19)	PF
0,99, 2,20, 3,22	1,29, 2,69, 6,39	2,97, 7,23, 11,84	
-	(5,10, 9,88)	(6,71, 5,84)	rev-FOG
	0, 0, 5	2,04, 5, 10	
	-	(11,60, 11,34)	FOG
		2,04, 8,79, 20	

La première ligne du tableau III.1 donne l'écart entre les critères de sélection et les résultats champ de phase. Le critère rev-FOG est naturellement celui le plus proche car il a été écrit spécifiquement pour approximer les résultats champ de phase. Sur cette ligne, la différence moyenne la plus importante avec le champ de phase est trouvée pour LG où $m = 8,01^\circ$. Les lignes suivantes comparent les critères entre eux. Des différences importantes apparaissent entre les critères rev-FOG et FOG, à savoir une moyenne $m = 5,10^\circ$ et un écart type $s = 9,88^\circ$. Le premier quartile Q_1 et la valeur médiane M sont nuls, le troisième quartile Q_3 restant inférieur à la valeur moyenne ($Q_3 = 5^\circ$). La large valeur de m est principalement due au quadrangle inférieur droit (figure III.2 et figure III.6 (b)) où, pour le critère rev-FOG $\theta = 0^\circ$ alors que pour le critère FOG, θ suit l'évolution donnée par les équations (III.1a) et (III.1b). Finalement, des différences marquées se situent entre la limite géométrique et le critère FOG ($m = 11,60^\circ$, $s = 11,34^\circ$). On voit en effet que la carte de sélection de la limite géométrique (figure III.5) présente peu de similitude avec celle du critère FOG (figure III.2).

3 Mise en donnée des calculs CA

Cette section introduit l'obtention des résultats par la méthode CA. Nous donnons premièrement les propriétés de l'alliage étudié, les paramètres procédé et grandeurs numériques. Un paramètre important de cette étude est aussi introduit, à savoir une marche notée $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$ propre à un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) et dépendant du gradient de température et de la vitesse de refroidissement. La cinétique de croissance utilisée pour le développement des enveloppes de croissance dans les directions $\langle 10 \rangle$ est présentée. Cette

cinétique provient de la formulation 2D d'Ivantsov [Iva47] et est sommairement présentée. Dernièrement, la méthodologie permettant le calcul de l'angle θ de joint de grains est détaillée.

3.1 Propriétés de l'alliage, cinétique et paramètres numériques

Les propriétés du matériau étudié, à savoir l'alliage binaire succinonitrile-0,4%pds acétone, les paramètres procédé et grandeurs numériques sont listés tableau III.2. Plusieurs valeurs de tailles de cellule l_{CA} , gradients thermiques G et vitesses de refroidissement $\dot{T}$ sont utilisées. Ces grandeurs sont donc des variables de l'étude. Comme décrit lors de la présentation de l'approche automate cellulaire en section 4 du chapitre II, le voisinage d'une cellule donnée peut être de type von Neumann (premiers voisins) ou de type Moore (premiers et seconds voisins). De plus, pour une enveloppe de croissance associée à une cellule donnée, l'estimation de la température peut se faire aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ de l'enveloppe, ou directement au centre de la cellule. Le calcul de la température intervient dans l'algorithme de croissance des enveloppes. L'influence de l'environnement et de la localisation du calcul de la température est aussi étudiée.

Les propriétés de l'alliage sont extraites de [Tou15; Tou17]. La constante de stabilité marginale σ^* provient des simulations champ de phase et est très proche de la valeur mesurée pour le succinonitrile pur [Hua81]. La relation reliant la cinétique de croissance dans les direction cristallographiques $\langle 10 \rangle$, $v_{\langle 10 \rangle}$, à la surfusion, ΔT , est corrélée par une loi puissance de paramètres cinétiques A et n :

$$v_{\langle 10 \rangle} = A \Delta T^n \quad (\text{III.16})$$

Cette loi est plus précisément présentée ci-après, en sous-section 3.2.

Avec une vitesse des isothermes $v_L = 25 \mu\text{m s}^{-1}$, la croissance stationnaire d'une dendrite parfaitement alignée avec le gradient de température, c'est-à-dire d'orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$, résulte en une vitesse v^{0° égale à la vitesse des isothermes et à une surfusion stationnaire égale à :

$$\Delta T_s^{0^\circ} = \left(\frac{v_L}{A} \right)^{1/n} \quad (\text{III.17})$$

soit ici $\Delta T_s^{0^\circ} = 0,69 \text{ K}$. Les dendrites primaires désorientées selon le gradient thermique ($\phi \neq 0^\circ$) doivent croître plus rapidement, à savoir $v_s^\phi = v_L / \cos \phi$, afin de maintenir une croissance à surfusion stationnaire [Gan94; Gan96a], comme brièvement introduit dans le chapitre I. La vitesse v_s^ϕ et la surfusion stationnaire ΔT_s^ϕ associée sont liées par la relation :

$$v_s^\phi = A (\Delta T_s^\phi)^n \quad (\text{III.18})$$

ce qui correspond à une surfusion stationnaire :

$$\Delta T_s^\phi = \Delta T_s^{0^\circ} (\cos \phi)^{(-1/n)} \quad (\text{III.19})$$

Pour $v_L = 25 \mu\text{m s}^{-1}$, la valeur stationnaire maximale de v_s^ϕ est donnée pour $\phi = \pm 45^\circ$ et est telle que :

$$v_s^{\pm 45^\circ} = \sqrt{2} v_L \quad (\text{III.20})$$

soit $35 \mu\text{m s}^{-1}$. Ceci correspond à une surfusion stationnaire des dendrites primaires :

$$\Delta T_s^{\pm 45^\circ} = \Delta T_s^{0^\circ} \sqrt{2}^{(1/n)} \quad (\text{III.21})$$

Tableau III.2 – Propriétés du succinonitrile-0,4%pds acétone, paramètres procédé et numérique. Les propriétés de l’alliage sont extraites de [Tou15 ; Tou17].

	Symbole	Valeur	Unité
Propriétés alliage			
Composition	w_0	0,4	%pds
Température de fusion	T_f	331,24	K
Pente du liquidus	m_L	-3,02	K %pds ⁻¹
Température du liquidus	T_L	330,032	K
Coefficient de partage	k	0,1	-
Coefficient de diffusion dans le liquide	D^l	$1,27 \times 10^{-9}$	m ² s ⁻¹
Coefficient de Gibbs-Thomson	Γ	$6,40 \times 10^{-8}$	K m
Constante de stabilité marginale	σ^*	0,02	-
Corrélation Ivantsov 2D, $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T^n$	A	$1,08 \times 10^{-4}$	m s ⁻¹ K ⁻ⁿ
	n	3,93	-
Orientations cristallographiques	ϕ_1, ϕ_2	$[-45; 45]$	°
Paramètres procédé			
Gradient de température	G	$[300; 30000]$	K m ⁻¹
Vitesse de refroidissement	$\dot{T}$	$[-0,0075; -0,75]$	K s ⁻¹
Vitesse des isothermes	v_L	25×10^{-6}	m s ⁻¹
Température initiale	T_0	330,032	K
Paramètres numériques			
Tailles des cellules	l_{CA}	$[10^{-7}; 7,5 \times 10^{-4}]$	m
Largeur du domaine	L/l_{CA}	200	-
Hauteur du domaine	H/l_{CA}	400	-
Rapport pas de temps	$(l_{CA}/v_L)/\Delta t$	10	-

égale à 0,75 K selon les données du tableau III.2.

Pour un cas de solidification dirigée selon un gradient de température unidirectionnel vertical, des dendrites primaires désorientées de $\phi = \pm 45^\circ$ formeront un front de croissance stationnaire localisé en dessous des fronts propres aux dendrites primaires mieux alignées. Ce phénomène a été montré figure I.3 (b), page 12. Pour deux grains en compétition de croissance, formant un couple (ϕ_1, ϕ_2) , cette différence de hauteur est caractérisée par une marche, notée $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$, pouvant être exprimée en fonction du gradient de température G :

$$\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} = \frac{|\Delta T_s^{\phi_1} - \Delta T_s^{\phi_2}|}{G} \quad (\text{III.22})$$

ou alors :

$$\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} = \frac{\Delta T_s^{0^\circ}}{G} \left| (\cos \phi_1)^{(-1/n)} - (\cos \phi_2)^{(-1/n)} \right| \quad (\text{III.23})$$

et naturellement, la valeur maximale de $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$ est donnée pour le couple $(\phi_1, \phi_2) = (0^\circ, \pm 45^\circ)$, soit :

$$\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} = \frac{\Delta T_s^{0^\circ}}{G} \left| \sqrt{2}^{(1/n)} - 1 \right| \quad (\text{III.24})$$

Pour l'intervalle de gradients thermiques donné tableau III.2, la marche maximale est située dans l'intervalle $2,12 \mu\text{m} \leq \delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} \leq 212 \mu\text{m}$. Notons que cet intervalle est contenu dans celui des tailles de cellules l_{CA} aussi donné tableau III.2.

Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 couvrent l'intégralité des orientations cristallographiques possibles, à savoir $[-45^\circ, 45^\circ]$. Tous les couples utilisés pour les simulations CA et champ de phase sont représentés par les points noirs figure III.3 et constituent 97 calculs. Les points oranges (figure III.3) correspondent à $\phi_1 = -\phi_2$. Pour ces points, les calculs ne sont pas effectués et la valeur de θ correspondante est fixée à 0° , de manière identique à l'étude champ de phase [Tou17]. L'intégralité de la carte est déduite selon l'axe antisymétrique $\phi_1 = -\phi_2$. Pour un couple (ϕ_1, ϕ_2) donné, et donnant une valeur d'angle de joint de grain θ , la valeur symétrique selon l'axe pour le couple $(-\phi_2, -\phi_1)$ vaut $-\theta$.

La taille de cellule l_{CA} est une variable de cette étude. Pour chaque valeur de l_{CA} , les calculs sont menés sur un domaine de rapport hauteur/largeur $(H/L) = 2$, où la grille automate cellulaire contient 200 cellules dans la direction horizontale et 400 cellules dans la direction verticale, cela représentant au total 80×10^3 cellules. Cette valeur est jugée suffisante pour atteindre un régime de croissance stationnaire où l'orientation du joint de grains est stable. Le pas de temps numérique Δt est choisi de manière à permettre une propagation du front de croissance correspondant à une fraction du pas de cellule, à savoir $\Delta t = 0,1 \times l_{CA}/v_L$.

Le temps nécessaire pour simuler la compétition de croissance du bicristal ne dépasse pas 3 minutes sur un unique CPU. La production d'une carte de sélection angulaire complète ne dépasse donc pas 5 heures. Cela représente un facteur d'accélération supérieur à 300 par rapport aux 16 heures requises pour produire une unique simulation avec le modèle champ de phase parallélisé sur un GPU.

3.2 Cinétique de croissance

Nous considérons ici la croissance d'une dendrite solutale dans un régime purement diffusif. L'étude de la cinétique d'une pointe de dendrite dans un régime de diffusion pure a été formalisée par Ivantsov [Iva47]. Ici, nous présentons le modèle développé par Kurz [Kur86]. Afin de calculer la cinétique de croissance dendritique dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, une simple loi puissance, équation (III.16), est utilisée. Elle relie la cinétique d'une pointe de dendrite à sa surfusion $\Delta T = T_L - T$, où T est la température de la pointe et T_L est la température de liquidus de l'alliage. En considérant un diagramme de phase binaire linéarisé, on peut écrire :

$$T_L = T_f + m_L w_0 \quad (\text{III.25})$$

où T_f est la température de fusion du succinonitrile pur, m_L est la pente du liquidus et w_0 la composition nominale de l'alliage. Pour l'intervalle de gradient étudié (tableau III.2), nous considérons que la surfusion totale est la somme d'une contribution d'origine solutale, ΔT_ξ , et d'une contribution de courbure, ΔT_κ , les surfusions thermique et cinétique étant négligées :

$$\Delta T = \Delta T_\xi + \Delta T_\kappa \quad (\text{III.26})$$

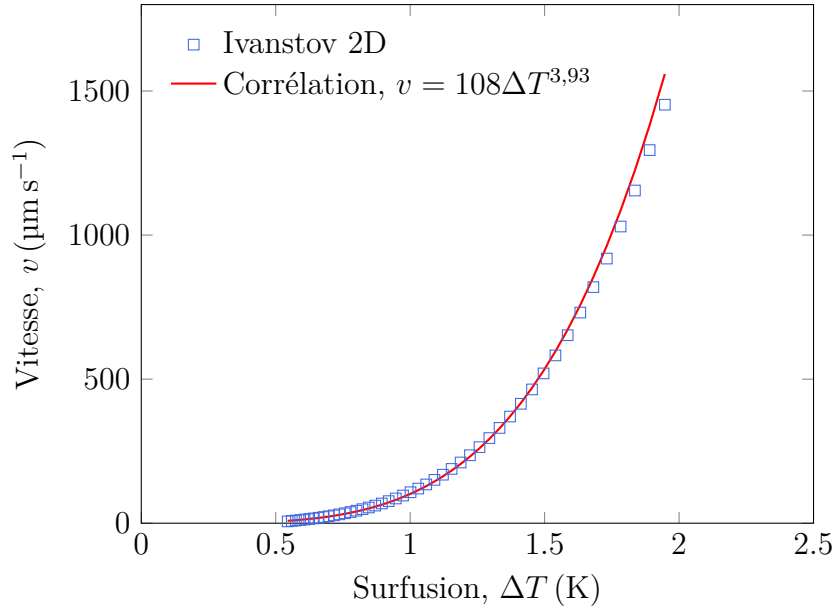


Figure III.7 – Lois de cinétique pour les paramètres donnés tableau III.2 où ($\square$) est la solution d'Ivantsov 2D et (—) représente la corrélation en loi puissance.

En assumant un équilibre thermodynamique à l'interface solide/liquide, on écrit :

$$w^{s/l} = k w^{l/s/l} \quad (\text{III.27})$$

avec $w^{l/s/l}$ et $w^{s/l}$ respectivement la composition du liquide et du solide à l'interface. En négligeant les effets de diffusion dans le solide et en approximant la pointe de dendrite par une morphologie parabolique, la solution analytique de la diffusion dans le liquide pour une croissance stationnaire dans un domaine semi-infini à la composition w_0 s'écrit :

$$\Omega = \text{Iv}_{2D}(Pe) \quad (\text{III.28})$$

avec :

$$\Omega = \frac{w^{l/s/s} - w_0}{w^{l/s/l} - w^{s/l}} \quad (\text{III.29})$$

où Ω est la supersaturation chimique à la pointe de dendrite et $\text{Iv}_{2D}(Pe)$ est la solution 2D d'Ivantsov pour la diffusion d'une espèce chimique dans le liquide, devant une pointe solide parabolique :

$$\text{Iv}_{2D}(Pe) = \pi^{1/2} Pe^{1/2} \exp(Pe) \text{erf}(Pe^{1/2}) \quad (\text{III.30})$$

où erf est la fonction d'erreur :

$$\text{erf} : \begin{cases} \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R} \\ x \mapsto \text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-t^2) dt \end{cases}$$

et Pe est le nombre de Péclet solutal défini par :

$$Pe = \frac{rv}{2D^l} \quad (\text{III.32})$$

avec r le rayon de la pointe de la dendrite et D^l le coefficient de diffusion dans le liquide. Dans l'approximation d'une pente de liquidus m_L constante entre w_0 et $w^{ls/l}$, la surfusion chimique ΔT_ξ peut être estimée telle que :

$$\Delta T_\xi = m_L (w_0 - w^{ls/l}) \quad (\text{III.33})$$

La surfusion de courbure ΔT_κ est estimée par la condition de Gibbs-Thomson :

$$\Delta T_\kappa = \frac{\Gamma}{r} \quad (\text{III.34})$$

Les équations ci-dessus donnent le produit (rv) pour une valeur donnée de supersaturation chimique Ω . Le rayon r et la vitesse v de la pointe ne peuvent être individuellement déterminés. Pour ce faire, l'approche de stabilité marginale [Mul64] fait l'hypothèse que le rayon de la pointe de dendrite est égal à la longueur d'onde minimale nécessaire pour déstabiliser une surface plane, ce qui amène à :

$$\begin{aligned} r^2 v &= \frac{D^l \Gamma}{\sigma^* m_L (w^{ss/l} - w^{ls/l})} \\ &= \frac{D^l \Gamma}{\sigma^* m_L (k - 1) w^{ls/l}} \end{aligned} \quad (\text{III.35})$$

où σ^* est la constante de stabilité marginale. La solution d'Ivantsov 2D, équation (III.32), donne $rv = \text{constante}$, le critère de stabilité marginale, équation (III.35), donne $r^2 v = \text{constante}$ et le système correspondant admet alors une solution unique. La loi de cinétique pour la solution d'Ivantsov 2D de l'alliage binaire étudié et la corrélation en loi puissance de paramètres (A, n) sont représentées figure III.7. La loi corrélée est ainsi simplement utilisée pour déterminer les cinétiques et faire croître, dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, les enveloppes de croissance du modèle CA.

3.3 Détermination de l'angle de joint de grains

Pour un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) donné, les résultats obtenus avec l'approche CA sont post-traités avec MATLAB afin de déterminer l'angle θ de joint de grains résultant. Un exemple de ce post-traitement est donné figure III.8 où les grains g_1 et g_2 , d'orientations cristallographiques respectives $\phi_1 = 30^\circ$ et $\phi_2 = 10^\circ$, sont en compétition de croissance en solidification dirigée avec $v_L = 25 \mu\text{m s}^{-1}$ et $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$, un environnement de Moore est utilisé et la température est calculée aux quatre pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance. Seules les cellules de joint de grains constituent les sorties du calcul CA et sont représentées figure III.8. Ces cellules sont aisément extraites par un nuage de points où localement l'orientation cristallographique de la cellule solide voisine diffère. Une régression linéaire est effectuée sur une partie du nuage de points définissant le joint de grains, permettant de déterminer la pente du joint de grains notée S_{GB} (figure III.8). Cette régression n'est pas effectuée sur l'intégralité du nuage de points, car pour des couples angulaires spécifiques (ϕ_1, ϕ_2) et pour une grille automate cellulaire très fine, une seconde limite géométrique est observée. Cette limite, non prise en compte dans cette étude, est néanmoins détaillée en annexe A. À partir de la pente S_{GB} , l'angle θ est calculé tel que $\theta = \tan^{-1}(S_{GB}) + 90^\circ$ si $S_{GB} < 0$, figure III.8 (b), et $\theta = \tan^{-1}(S_{GB}) - 90^\circ$ si $S_{GB} > 0$, figure III.8 (c).

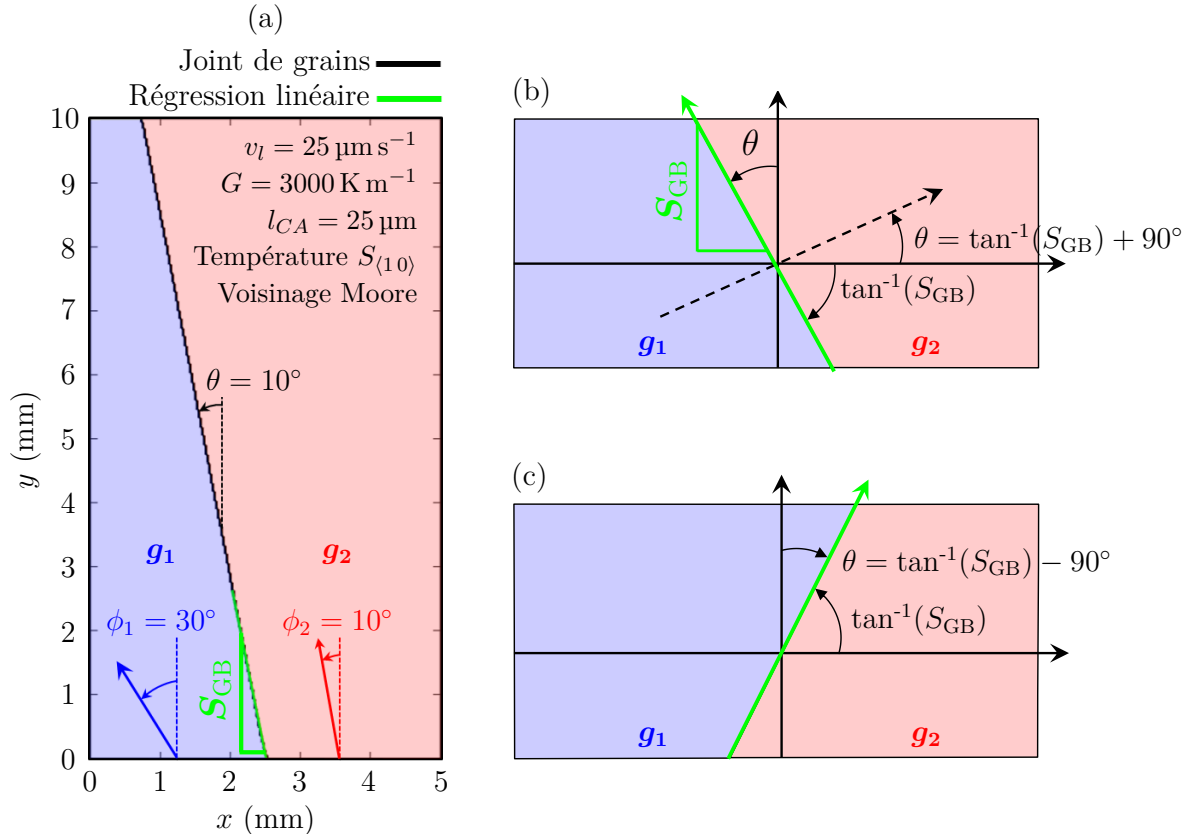


Figure III.8 – (a) Résultats d’une simulation CA de la compétition de croissance de deux grains g_1 et g_2 , d’orientations cristallographiques $\phi_1 = 30^\circ$ et $\phi_2 = 10^\circ$. Une régression linéaire effectuée sur un nuage de points constituant le joint de grains permet de déterminer la valeur de θ selon la pente S_{GB} du joint de grains. Calcul de θ pour (b) $S_{GB} < 0$ et (c) $S_{GB} > 0$.

4 Résultats et discussions

4.1 Cartes de simulation

La figure III.9 compile les résultats de l’étude CA, sous forme de cartes de sélection angulaire, pour un voisinage de Moore, une estimation de la température aux pointes $S_{(10)}$ des enveloppes de croissance et pour différentes valeurs de tailles de cellules et gradients de température. À titre d’exemple, les résultats montrés figure III.8, c’est-à-dire pour le couple angulaire $(\phi_1, \phi_2) = (30^\circ, 10^\circ)$, l’orientation du joint de grain résultant, $\theta = 10^\circ$, se lit directement sur la carte angulaire montrée figure III.9 (C) via le code couleur donné en haut à gauche.

Nous considérons premièrement la rangée centrale de la figure III.9, où le gradient de température est maintenu constant à $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$ et où la taille de cellule varie entre $l_{CA} = 2,5 \mu\text{m}$ (figure III.9 (O)) et $l_{CA} = 250 \mu\text{m}$ (figure III.9 (E)). Pour la taille de cellule minimale, la carte de sélection angulaire (figure III.9 (O)) est proche du critère de la limite géométrique montré figure III.5. Ce bon accord provient de la grille automate cellulaire très fine permettant de rendre actifs les systèmes de branchements proches des constructions géométriques données figure III.4.

Pour une taille de cellule importante, la carte de sélection figure III.9 (E) s’approche

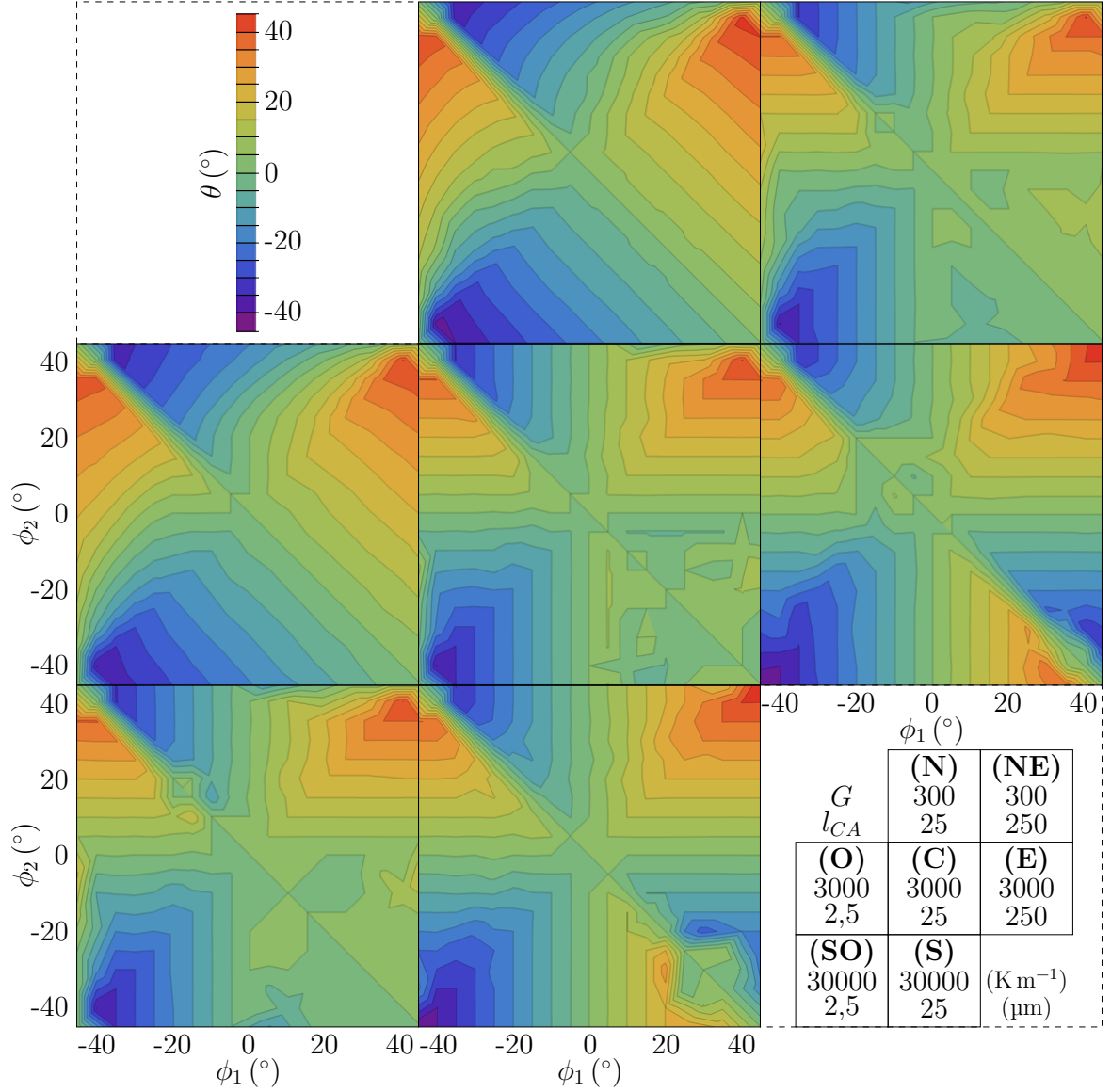


Figure III.9 – Cartes de sélection angulaire pour un bicristal produites avec l’approche CA où les angles ϕ_1 (grain de gauche) et ϕ_2 (grain de droite) sont donnés en abscisses et ordonnées, respectivement. Pour un couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) , la valeur de l’angle θ de joint de grains est donnée par le code couleur représenté en haut à gauche. La vitesse des isothermes est fixée à $v_L = 25 \mu\text{m s}^{-1}$. La vitesse de refroidissement, $\dot{T}$, est donc adaptée en fonction de G afin de maintenir une valeur de v_L constante. Le voisinage est de type Moore et l’estimation de la température est effectuée aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance. Les variables sont la taille de cellule, où $l_{CA} = \{2,5; 25; 250\} \mu\text{m}$, et le gradient de température, où $G = \{300; 3000; 30000\} \text{K m}^{-1}$. La carte angulaire (C) correspond aux paramètres $(G, \dot{T})$ des calculs champ de phase pour lesquels la carte angulaire de la figure III.6 (a) était donnée.

du critère FOG présenté figure III.2. Selon ce critère, le grain le moins désorienté vis-à-vis du gradient de température définit l'orientation du joint de grains, pour la compétition de croissance d'un bicristal (équations (III.1a) et (III.1b)). Autrement dit, seules les branches dendritiques primaires participent à la compétition de croissance au joint de grains, et les mieux alignées imposent la valeur de θ . Les branches dendritiques secondaires, bien que considérées, n'interagissent pas au joint de grains. Utiliser une grille automate cellulaire large ne permet pas de modéliser le parcours des branches secondaires, seules les branches primaires interagissent et il n'est donc pas surprenant d'obtenir des résultats en bon accord avec le critère FOG. Finalement, dans le quadrangle supérieure gauche, une zone de transition autour de l'axe $\phi_1 = -\phi_2$ est observée, similaire à celle formalisée dans le critère rev-FOG par une épaisseur $\delta = 5^\circ$.

La carte de sélection angulaire figure III.9 (C) est produite pour une taille de cellule intermédiaire $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ et est proche de la carte du critère rev-FOG, donnée figure III.6 (b). Cela est particulièrement visible dans le quadrangle inférieur droit, où une faible valeur moyenne de θ est obtenue, comme produit par les résultats champ de phase (figure III.6 (a)). Aussi, deux fines bandes, dans le haut du quadrangle supérieur droit et à gauche du quadrangle inférieur gauche, sont obtenues où une baisse brutale de l'orientation du joint de grains est observée, formalisée par une épaisseur $\gamma = 7^\circ$, équation (III.15a).

L'effet du gradient de température pour une taille de cellule $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ constante est illustré dans la colonne centrale de la figure III.9. La carte de sélection angulaire de la figure III.9 (N) est produite pour une faible valeur de gradient thermique, $G = 300 \text{ K m}^{-1}$, et tend vers le critère LG. Inversement, une valeur plus importante, $G = 30\,000 \text{ K m}^{-1}$ figure III.9 (S), résulte en une carte de sélection qui se rapproche du critère FOG. Ainsi, une faible valeur de gradient de température favorise le développement de branches dendritiques secondaires, tandis qu'une valeur de gradient de température importante, $G = 30\,000 \text{ K m}^{-1}$, tend à les inhiber. Des simulations avec de plus grandes variations de tailles de cellule et gradients de température ont été effectuées (non montrées dans ce document) et confirment les mêmes convergences vers les critères LG ou FOG.

4.2 Taille de marche $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$

Les explications données précédemment peuvent être mieux comprises en considérant la combinaison de deux effets. D'un côté, le gradient de température influence la taille de marche $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$ entre la position de deux branches primaires de deux grains dendritiques différents au front de solidification, comme décrit par l'équation (III.23). Plus le gradient est faible, plus la taille de marche est importante. D'un autre côté, abaisser la taille de cellule permet la modélisation des branchements intervenant au joint de grains.

L'orientation du joint de grains est le résultat de la compétition des branches dendritiques $\langle 10 \rangle$ de chaque côté de la frontière des grains. Nous proposons de considérer le rapport $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ caractérisant le nombre de cellules localisées à l'intérieur de la marche. Pour une valeur inférieure à 1, la position du front de croissance, pour deux grains en compétition, est contenue dans une unique couche de cellules. Pour une valeur supérieure à 1, plusieurs couches de cellules définissent le front de croissance et les branchements peuvent facilement opérer au joint de grains. Cela permet de mimer la compétition de croissance entre branches dendritiques primaires et secondaires.

La figure III.10 montre deux exemples de valeurs différentes de rapport $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$. Pour les deux cas schématisés, les grains g_1 et g_2 ont pour orientations cristallographiques respectives $\phi_1 = -15^\circ$ et $\phi_2 = 30^\circ$. Sur la figure III.10 (a), la grille automate cellulaire est

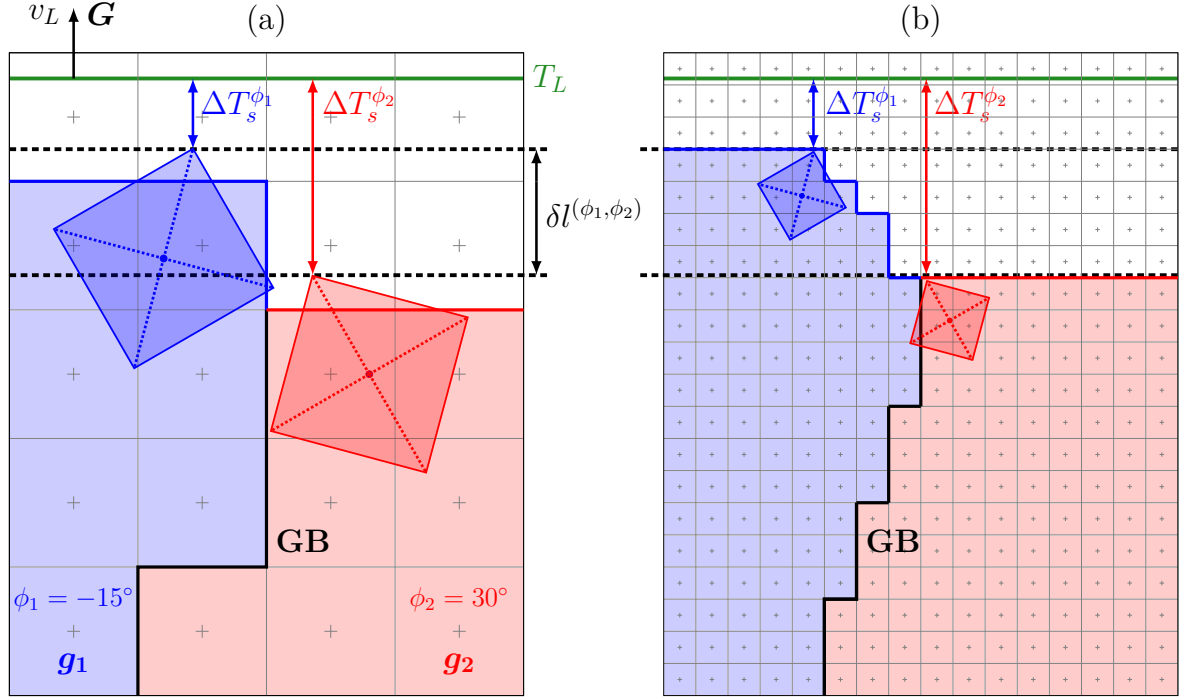


Figure III.10 – Représentation schématique 2D de deux exemples de compétition de croissance d'un bicristal pour (a) une grille automate cellulaire large et (b) une grille automate cellulaire fine. Pour les deux cas, les orientations cristallographiques des grains g_1 et g_2 valent $\phi_1 = -15^\circ$ et $\phi_2 = 30^\circ$, respectivement. La marche $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)}$ entre deux points de dendrites primaires est telle que $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} = |\Delta T_s^{\phi_1} - \Delta T_s^{\phi_2}| / G$.

large et le nombre de cellules définissant le front de croissance est faible. À l'inverse, figure III.10 (b), la grille automate cellulaire est fine et le front de croissance est contenu dans un nombre de cellules plus important. Notons que pour la grille automate cellulaire fine, la modélisation des embranchements au joint de grain est possible. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 utilisées définissent une configuration convergente de type (C1a) schématisée sur la figure III.4.

Cela est vérifié figure III.9 (O) et (E) où, pour $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$, le rapport maximal $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ vaut 8,48 pour $l_{CA} = 2,5 \mu\text{m}$ et le rapport minimal vaut 0,0848 pour $l_{CA} = 250 \mu\text{m}$. Un rapport proche de 1, à savoir 0.848 est obtenu pour $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$, figure III.9 (C). Identiquement, le rapport maximal est aussi égal à 8,48 et minimal, égal à 0,0848 pour les figures III.9 (N) et (S), où $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ pour $G = 300 \text{ K m}^{-1}$ et $G = 30\,000 \text{ K m}^{-1}$, respectivement. Les figures III.9 (O) et (N) sont très similaires. Des observations similaires sont vérifiées pour les figures III.9 (S) et (E), ainsi que pour (SO), (C) et (NE), correspondant donc à une lecture en diagonale de la figure III.9. Ces cartes, dont les résultats sont proches entre eux, ont des rapports $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ égaux, c'est-à-dire que les valeurs de G et l_{CA} sont modifiées tel que $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ reste constant. Plus $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ est important, plus la carte de sélection correspondante tend vers le critère LG. Inversement, plus $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ est faible, et plus la carte de sélection tend vers le critère FOG. Lorsque $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ est proche de 1, la carte de sélection tend vers le critère rev-FOG, et donc les résultats des simulations champ de phase.

Il est possible de quantifier, par une analyse statistique, la comparaison des cartes de sélection CA avec celle donnée par le critère rev-FOG, figure III.6 (b). Nous rappelons que ce critère est une formalisation des résultats champ de phase et constitue donc les

résultats de référence de cette étude. L'influence de la taille de cellule est étudiée, où $l_{CA} \in [0,1; 750] \mu\text{m}$, et pour un gradient de température constant $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$. Les résultats de l'analyse statistique sont donnés figure III.11. Cette analyse est similaire à celle présentée dans le tableau III.1. Notons que sur la figure III.9, trois valeurs de l_{CA} sont étudiées, alors que un total de 16 valeurs sont utilisées dans cette étude et représentées en abscisse, figure III.11. Les 213 couples angulaires (ϕ_1, ϕ_2) correspondant à la production d'une carte de sélection complète sont utilisés. Pour chacun des 213 couples, la différence en valeur absolue entre l'angle θ résultant et celui donné par le critère rev-FOG est calculée. Les valeurs médianes, M , et moyennes, m , sont reportées en ordonnée. Notons que le rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA}$ est donné sur l'axe supérieur des abscisses.

Les cartes de sélection CA montrées figure III.9 correspondent à un environnement de Moore et une estimation de la température aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance, ce qui est aussi le cas de la figure III.11 (a). La moyenne arithmétique des différences atteint un minimum $m = 1,21^\circ$ pour $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$. L'écart type minimum, non reporté sur la figure III.11 (a), vaut $s = 2,19^\circ$ et correspond aussi à $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$. En abaissant la valeur de l_{CA} à $0,1 \mu\text{m}$, la moyenne et l'écart type augmentent et on a $m = 7,34^\circ$ et $s = 5,92^\circ$, respectivement. Ces valeurs sont proches de celles correspondant à la comparaison entre LG et rev-FOG, données tableau III.1, où $m = 6,71^\circ$ et $s = 5,92^\circ$. Cela confirme que pour une grille automate cellulaire fine, la carte de sélection angulaire CA tend vers LG comme le montre la figure III.9 (O). À l'inverse, et comme il a été décrit pour la figure III.9 (E), augmenter la taille de cellule à $l_{CA} = 750 \mu\text{m}$ mène à $m = 5,81^\circ$ et $s = 8,42^\circ$, ces valeurs étant proches de celles pour la comparaison entre FOG et rev-FOG, à savoir $m = 5,10^\circ$ et $s = 9,88^\circ$ (tableau III.1). Cela confirme que pour une grille automate cellulaire large, la carte de sélection angulaire résultante tend vers le critère FOG.

Il est intéressant de noter que la valeur médiane est presque nulle pour $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$, puis augmente jusqu'à $M = 1,08^\circ$ pour $l_{CA} = 500 \mu\text{m}$. Pour cet intervalle de tailles de cellule, le premier quartile Q_1 est nul et le troisième quartile Q_3 augmente avec la taille de cellule. L'interprétation correspondante est que les cartes de sélection CA divergent du critère rev-FOG autour de $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ et l'accord avec rev-FOG devient progressivement moins bon lorsque la taille de cellule augmente. Similairement, lorsque l_{CA} décroît à partir de $25 \mu\text{m}$, c'est-à-dire $l_{CA} \in [0,1; 25] \mu\text{m}$, les valeurs de Q_1 et Q_3 suivent l'évolution de M et traduisent donc que l'écart du critère rev-FOG est bien distribué entre les couples angulaires (ϕ_1, ϕ_2) . Cela est aussi décrit par les figures III.9 (C) et (O), où une transition de (C) vers (O), c'est-à-dire une convergence vers LG, nécessite une variation progressive de toutes les valeurs $|\Delta\theta(\phi_1, \phi_2)|$.

4.3 Voisinage et localisation de l'estimation de la température

Nous décrivons maintenant les influences du type de voisinage (Moore ou von Neumann) et de la localisation de l'estimation de la température utilisée pour faire croître les enveloppes de croissance (pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes ou centre C de la cellule).

Pour le voisinage de Moore, les courbes tracées figure III.11 (a) et (b) montrent un comportement similaire pour des faibles tailles de cellule. L'estimation de la température aux pointes et au centre de la cellule devient très proche lorsque la taille de la grille automate cellulaire diminue. De ce fait, les calculs des cinétiques de croissances ne diffèrent pratiquement pas. Lorsque la taille de cellule augmente, l'influence du champ de température local, au joint de grains, se fait ressentir et les cinétiques des branches dendritiques sont intégrées de manière plus réaliste avec une résolution aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$. Sur la figure

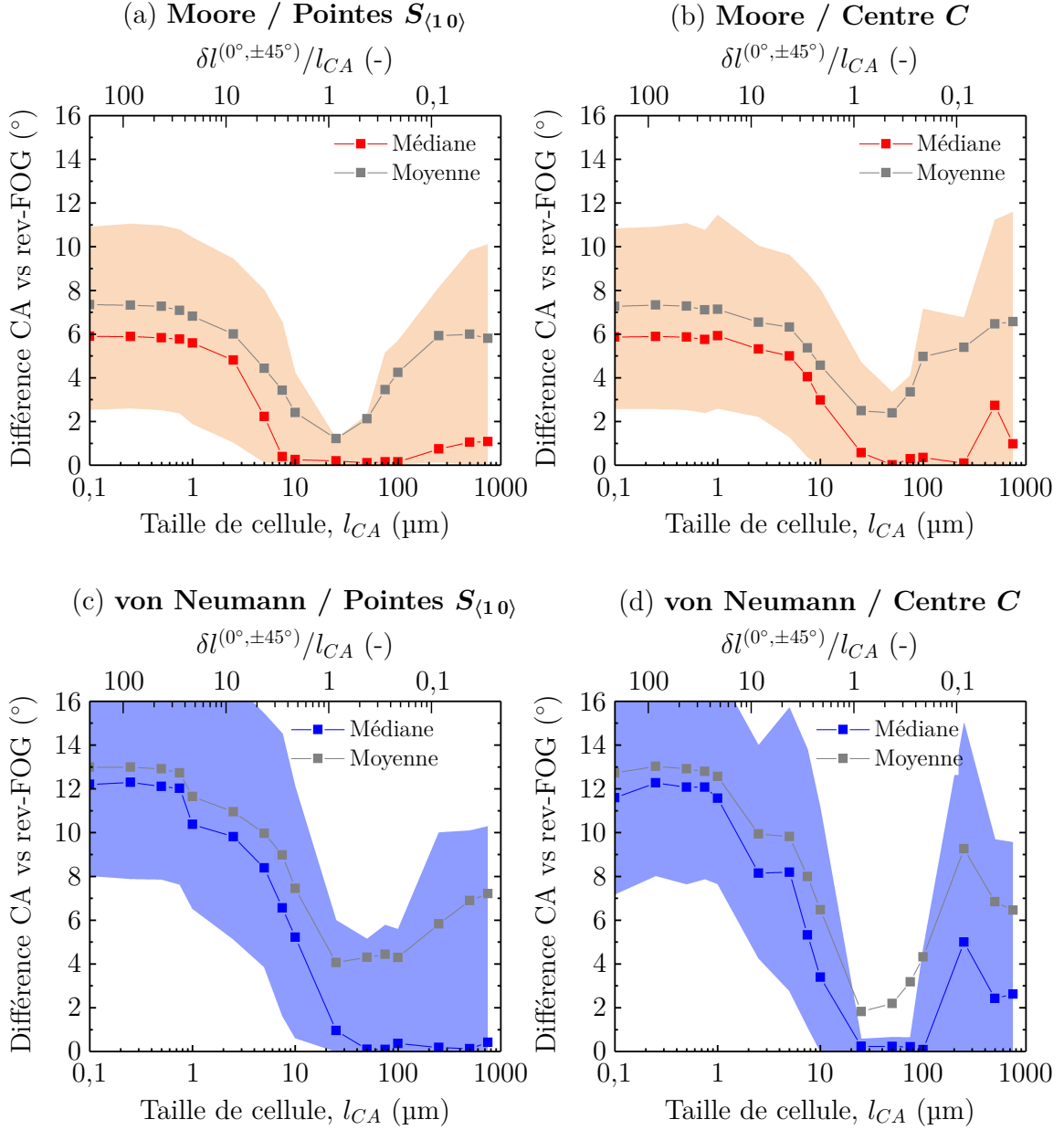


Figure III.11 – Étude statistique en fonction de la taille de cellule, reportée en abscisse, où $l_{CA} \in [0,1; 750] \mu\text{m}$, des différences entre les cartes de sélection CA et celle du critère rev-FOG. Le gradient de température est constant et vaut $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$. Les paramètres étudiés, en plus de l_{CA} sont : (a,b) l’environnement de Moore, (c,d) l’environnement de von Neumann, l’estimation de la température (a,c) aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance et (b,d) aux centres de cellules. La moyenne arithmétique m des différences est reportée sur les courbes et symboles gris, la médiane M est donnée par les courbes et symboles rouges (a,b) et bleus (c,d), les premiers quartiles Q_1 et troisièmes quartiles Q_3 sont respectivement précisés par les limites inférieures et supérieures des régions colorées.

III.11 (a), pour une estimation de la températures aux pointes $S_{(10)}$, la valeur moyenne m est relativement constante ($m \approx 6^\circ$) pour des valeurs de l_{CA} comprises entre $0,1 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$. Au delà de $l_{CA} = 1 \mu\text{m}$, la valeur moyenne décroît. Cette même décroissance est observée plus tardivement pour une estimation de la température aux centres des cellules, figure III.11 (b). L'influence de la localisation de l'estimation de la température est donc ressentie à partir de $l_{CA} > 1 \mu\text{m}$. Pour des valeurs de l_{CA} importantes, c'est-à-dire des valeurs de rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA}$ faibles, les valeurs moyennes m obtenues, figure III.11 (a) et (b), sont similaires. La localisation de l'estimation de la température n'a donc plus d'influence sur la sélection de joint de grains. On note néanmoins pour $l_{CA} = 750 \mu\text{m}$, figure III.11 (b), des valeurs de M et Q_3 plus importantes en comparaison avec celles reportées figure III.11 (a).

Avec un environnement de Moore, les résultats sont globalement meilleurs avec une estimation aux pointes des enveloppes de croissance qu'une estimation au centre des cellules. Autrement dit, la différence avec le critère rev-FOG est plus faible lorsque les calculs de température sont effectués aux pointes $S_{(10)}$. Cette résolution n'était pas initialement présente dans l'algorithme de croissance automate cellulaire implémenté dans le modèle CA-FE, le calcul de la température étant uniquement effectué au centre des cellules [Gan94]. Le calcul aux pointes $S_{(10)}$ n'a que récemment été ajouté [Car12]. La raison est principalement liée aux temps de calculs. En effet, la température est déterminée par interpolation sur le maillage éléments finis. Pour une grille automate cellulaire et un maillage éléments finis statiques, le centre C d'une cellule appartient à un élément donné du maillage FE et les coefficients d'interpolations correspondants sont initialisés une seule fois, au début de la simulation. À l'inverse, et même pour des grilles CA et maillage FE statiques, les calculs de températures aux pointes $S_{(10)}$ nécessitent, non seulement de les localiser sur le maillage FE, mais aussi de mettre à jour les coefficients d'interpolations en raison de la croissance des enveloppes. En effet, une pointe peut changer d'élément d'appartenance lors de son évolution. De plus, l'algorithme de croissance est résolu un nombre de fois égal au nombre de pointes (4 en 2D, 6 en 3D). Pour un même couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) , un calcul utilisant une résolution de la température aux pointes résulte en une augmentation du temps de calcul de 8,4%, en comparaison avec une résolution au centre des cellules. Dans cette étude, les simulations de compétition de croissance des bicristaux sont très rapides (~ 3 minutes par calcul) et cette augmentation n'est pas jugée problématique. Elle peut néanmoins l'être sur des calculs nécessitant des temps de simulation plus importants.

Les figures III.11 (c) et (d) montrent l'influence d'un voisinage de type von Neumann. En comparaison avec les figures III.11 (a) et (b), à savoir un voisinage de Moore, les quantités statistiques sont globalement plus importantes. L'utilisation d'un voisinage de type von Neumann donne donc des résultats moins proches du critère rev-FOG, en comparaison avec un environnement de Moore. Les tendances observées sont néanmoins les mêmes, pour les deux types de voisinage, à savoir une déviation minimale par rapport à rev-FOG et centrée autour de $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$. Finalement, la combinaison d'un environnement de Moore avec une résolution de la température aux pointes $S_{(10)}$ des enveloppes de croissance donne les meilleurs comparaisons avec rev-FOG.

Un analyse statistique est maintenant donnée figure III.12. Elle présente les comparaisons entre les résultats CA et tous les critères ainsi que les résultats champ de phase. Les résultats CA proviennent de simulations réalisées pour un environnement de Moore et un calcul de la température aux pointes $S_{(10)}$ des enveloppes de croissance. La comparaison avec le critère rev-FOG, déjà présentée figure III.11 (a), est reproduite figure III.12 (a)

afin de faciliter la lecture des différences avec les autres critères.

La figure III.12 (b) présente donc la comparaison entre les résultats CA et champ de phase. Les tendances sont très similaires à celles observées figure III.12 (a), à savoir la comparaison avec le critère rev-FOG. À nouveau, cela vient simplement du fait que le critère rev-FOG est une formalisation écrite spécifiquement pour approximer les résultats champ de phase. Les valeurs des quantités statistiques données figure III.12 (b) sont néanmoins 1 à 2° plus importantes que celles de la figure III.12 (a). Les résultats CA sont donc plus proches du critère rev-FOG qu'ils ne le sont des résultats champ de phase. Cela est dû à l'absence de la prise en compte de l'écart entre la direction de croissance des dendrites et les orientations cristallographiques $\langle 10 \rangle$ nominales, à la fois dans le modèle CA et le critère rev-FOG. Cet effet est naturellement pris en compte dans le modèle champ de phase. Les différences de résolution numérique entre les modèles CA et champ de phase sont plus précisément décrites ci-après, en sous-section 4.4.

Les comparaisons avec les critères FOG et LG sont données figure III.12 (c) et III.12 (d), respectivement. Différentes tendances sont révélées lorsque la taille de cellule augmente. La déviation est minimale pour des valeurs importantes de l_{CA} , figure III.12 (c) et minimale pour des faibles valeurs de l_{CA} , figure III.12 (d). Inversement, cette même déviation est maximale pour des faibles valeurs de l_{CA} figure III.12 (c) et maximale pour des valeurs importantes de l_{CA} , figure III.12 (d). Les tendances observées figure III.12 (d) s'expliquent par le fait que les constructions géométriques, figure III.4, permettant d'écrire le critère LG, équation (III.14), peuvent être modélisées uniquement avec des grilles automates cellulaires fines. De ce fait, les valeurs moyenne et médiane des différences tendent vers 0° lorsque l_{CA} tend vers 0 μm . Comme décrit précédemment, les résultats CA tendent vers FOG lorsque l_{CA} augmente. Ceci est visible figure III.12 (c) où les valeurs moyenne et médiane des différences se rapprochent de 0° lorsque la taille de cellule augmente.

4.4 Comparaisons des modèles CA et champ de phase

Le but de cette section n'est pas de détailler quantitativement les différences entre les résultats CA avec ceux du modèle champ de phase, mais plutôt de comparer les spécificités de ces deux approches expliquant les différences de résultats.

Dans la modélisation champ de phase, la physique de l'interface solide/liquide et l'équation de conservation du soluté sont résolus. Aussi, la cinétique de croissance instantanée et fonction du champ de soluté, l'écart entre la direction de croissance des branches primaires et les orientations cristallographiques $\langle 10 \rangle$ nominales, ainsi que la nature stochastique des événements des mécanismes de branchements sont pris en compte. Tous ces effets sont négligés dans le modèle automate cellulaire, ce qui explique les écarts observés dans les figures III.12 (a) et (b). Malgré les approximations du modèle CA, des comparaisons quantitatives peuvent être effectuées pour un matériau donné de composition w_0 et des paramètres procédés fixés ($G, \dot{T}$) en choisissant une taille de cellule et un voisinage appropriés. Pour un voisinage de Moore et un calcul de la température aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance, un très bon accord est obtenu pour un rapport $\delta l^{(0^\circ \pm 45^\circ)} / l_{CA}$ proche de 1. Plus précisément, la comparaison des cartes de sélection données figure III.6 (a) et figure III.9 (C) donne des valeurs minimales de la moyenne $|\Delta\theta(\phi_1, \phi_2)|$ des différences, $m = 2,71^\circ$ et de l'écart type $s = 2,82^\circ$, respectivement. En négligeant les effets du nombre de Péclet sur les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, et en comparant avec le critère rev-FOG, ces valeurs deviennent $m = 1,21^\circ$ et $s = 2,19^\circ$ (figures III.6 (b) et III.9 (C)). Ces observations montrent que pour le matériau étudié et les paramètres procédé

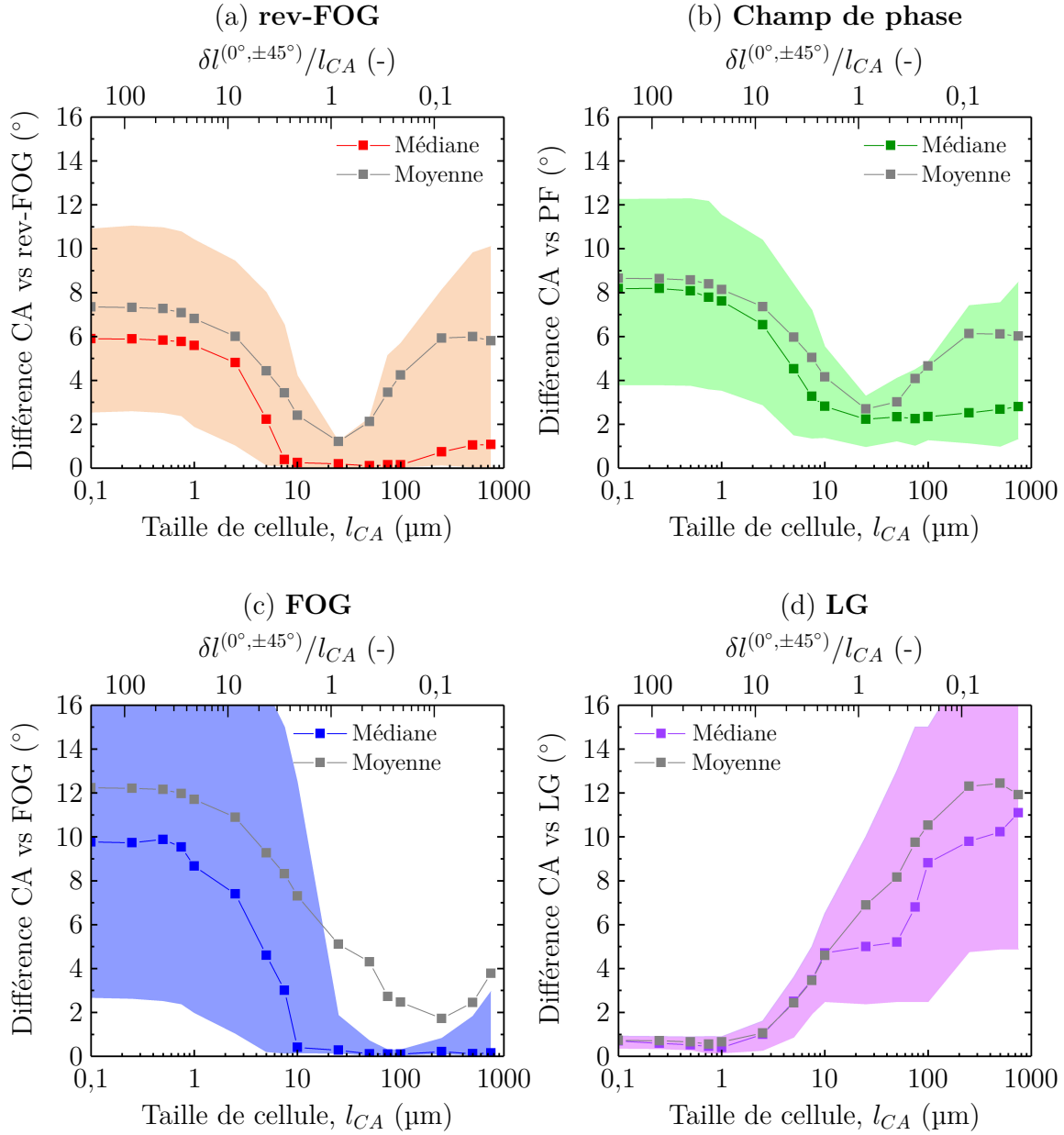


Figure III.12 – Étude statistique en fonction de la taille de cellule, reportée en abscisse, où $l_{CA} \in [0,1; 750] \mu\text{m}$, des différences entre les cartes de sélection CA et celles (a) du critère rev-FOG, (b) des résultats champ de phase (PF), (c) du critère FOG et (d) du critère LG. Le gradient de température est constant et vaut $G = 3000 \text{ K m}^{-1}$, un environnement de Moore est utilisé et l'estimation de la température est effectuée aux points $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance. La moyenne arithmétique m des différences est reportée sur les courbes et symboles gris, la médiane M est donnée par les courbes et symbole rouges (a) et verts (b), bleus (c) et violets (d). Les premiers quartiles Q_1 et troisièmes quartiles Q_3 sont respectivement précisés par les limites inférieures et supérieures des régions colorées.

utilisés, une simple loi de croissance établie pour le régime stationnaire et l'alliage de composition nominale, ainsi que l'algorithme CA ne prenant pas en compte les interactions solutales entre les bras de dendrites, est suffisant pour obtenir une prédiction réaliste de la compétition de croissance de deux grains dendritiques.

Pour les variables statistiques reportées figure III.12, nous choisissons arbitrairement un écart acceptable de 5°. Pour celui-ci, l'intervalle de tailles de cellule est tel que $l_{CA} \in [10; 100] \mu\text{m}$. Cet intervalle correspond, selon l'équation (III.23) à un rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA} \in [0,212; 2,12]$. De plus, l'équation (III.23) peut se ré-écrire telle que :

$$\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} = \left(\frac{v_L}{A} \right)^{1/n} \frac{|\sqrt{2}^{1/n} - 1|}{G} \quad (\text{III.36})$$

Pour les coefficients cinétiques (A, n) donnés du matériaux, le critère de sélection de l'intervalle de tailles de cellule est donc proportionnel à v_L et G . Une évolution temporelle typique de ces quantités peut être calculée pour la solidification d'un métal en fusion au contact d'un moule. La vitesse des isothermes et le gradient de température deviennent inversement proportionnels à la racine carré du temps t , *i.e.* $t^{-1/2}$ [Kur98]. Ainsi, le rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA}$ est proportionnel à $(t^{(1/2-1/2n)} / A^{1/n}) |\sqrt{2}^{1/n} - 1|$. Selon les paramètres matériaux donnés tableau III.2 ($n = 3, 93$), une variation d'un ordre de grandeur du rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA}$ conduit à une variation de trois ordres de grandeur du temps t .

La carte de sélection champ de phase (figure III.6) sur laquelle se base notre étude CA n'a été produite que pour des valeurs uniques de G , v_L et w_0 . Nous rappelons que la production de celle-ci a nécessité 255 jours de calculs continus sur un GPU (Tesla K40c). La production d'une carte de sélection CA est quant à elle effectuée en moins de 5 heures sur un unique CPU. Des simulations champ de phase 3D à des échelles spatiales et temporelles pertinentes sont possibles, mais demeurent encore plus exigeantes en termes de puissances de calcul. Par exemple, pour les paramètres de l'expérience d'Esaka [Esa86] (figure I.3 (a), page 12), à savoir $w_0 = 1,3 \text{ \%pds}$, $G = 1900 \text{ K m}^{-1}$ et $v_L = 86 \mu\text{m s}^{-1}$, une simulation de 30 secondes sur un domaine de dimensions $450 \times 800 \times 150 \mu\text{m}^3$ nécessite 12 jours de calcul sur un multi-GPU de 8 cartes graphiques Nvidia TeslaK80c.

Takaki *et al.* [Tak18] ont étudié par un modèle champ de phase 3D, en solidification dirigée, l'influence du gradient de température sur la compétition de croissance pour un alliage cuivre-3%pds aluminium, pour une vitesse de refroidissement fixée et pour une germination surfacique initiale de 64 grains d'orientations cristallographiques tirées aléatoirement. Les auteurs ont observé que, pour les plus grandes valeurs de gradient de température utilisées, un plus grand nombre de grains survivent à la fin de la solidification. De plus, la sélection de croissance est, pour cette étude, en bon accord avec le critère FOG. Pour ce travail, 15 simulations ont été effectuées sur un domaine de taille $768 \times 768 \times 1149,75 \mu\text{m}^3$ et pour une durée de solidification de 133,9s. L'ensemble des simulations a nécessité un temps de calcul de 5,2 jours sur 144 GPUs Nvidia K20X (supercalculateur TSUBAME2.5).

À l'opposé, et compte tenu de la faible puissance de calcul requise pour produire des cartes de sélection CA, il n'y a pas de problème à effectuer ces calculs pour des compositions d'alliage ou conditions de refroidissement différentes.

5 Expérience d'Esaka

5.1 Objectifs et mise en donnée des calculs CA

Dans cette section, nous étudions un système bicristallin propre à l'expérience d'Esaka [Esa86]. Comme écrit dans le chapitre I, cette expérience consiste en une compétition de croissance dendritique entre trois grains pour un alliage de succinonitrile-1,3%pds acétone. Nous nous intéressons ici à deux des grains notés g_1 et g_2 . Leurs orientations cristallographiques sont définies par les triplets d'angles d'Euler $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$, comme montré sur la figure III.13.

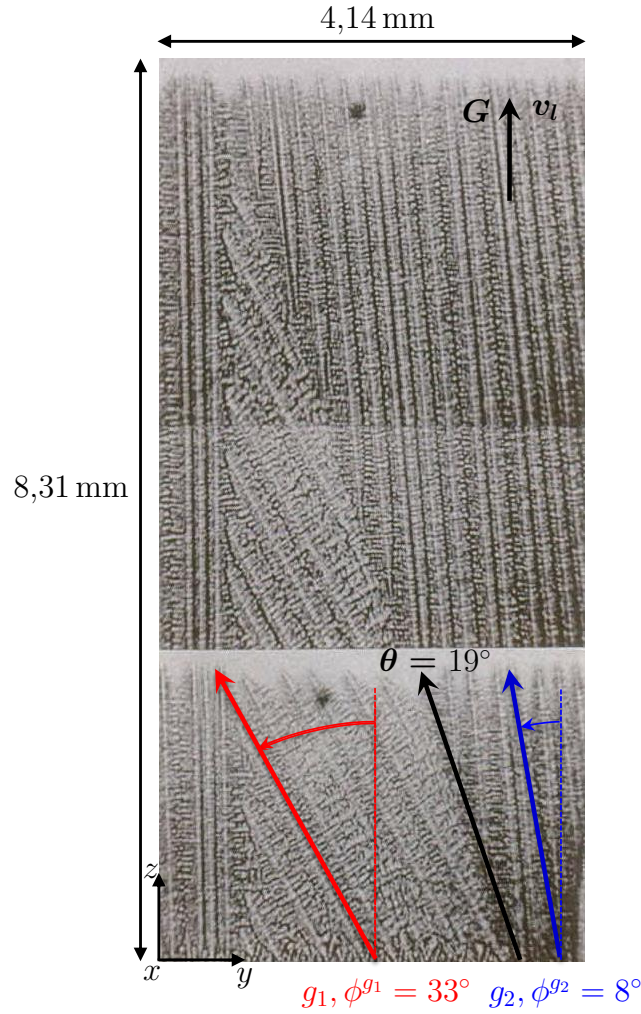


Figure III.13 – Expérience d'Esaka. Le système étudié correspond à la configuration divergente propre aux grains g_1 et g_2 . La définition des angles ϕ^{g_1} , ϕ^{g_2} et θ est donnée figure III.1. Figure adaptée de [Esa86].

Le but est d'effectuer une étude paramétrique et de déterminer le jeu de paramètres permettant de s'approcher au mieux de la valeur expérimentale de l'angle θ de joint de grains. Cette valeur a été mesurée et vaut $\theta = 19^\circ$ (figure III.13). Les paramètres étudiés sont :

- tailles de cellule : $l_{CA} \in [1; 1000] \mu\text{m}$,
- cinétiques de croissance : lois d'Ivantsov 2D et Ivantsov 3D,
- dimensions spatiale du problème : 2D et 3D,

- épaisseurs de l'échantillon : $W = 1$ cellule et $W = 50$ cellules,
- désorientations des branches secondaires pour les deux grains simultanément : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 45^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 45^\circ)$ et de manière isolée, pour g_1 uniquement : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 45^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$ et pour g_2 uniquement : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 45^\circ)$.

La solution d'Ivantsov 2D est donnée par l'équation (III.30). En 3D, cette solution s'écrit :

$$\text{Iv}_{3\text{D}}(Pe) = Pe \exp(Pe) E_1(Pe) \quad (\text{III.37})$$

où E_1 est la fonction exponentielle intégrale :

$$E_1 : \begin{cases} \mathbb{R}^* \rightarrow \mathbb{R} \\ x \mapsto E_1(x) = \int_1^\infty \frac{e^{-tx}}{t} dt \end{cases}$$

Les paramètres fixés sont donnés tableau III.3. Les solutions d'Ivantsov 2D et 3D, ainsi que leurs corrélations en loi puissance respectives sont montrées figure III.14. Aussi, un voisinage de Moore et une estimation de la température aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ sont utilisés. La méthode pour déterminer l'angle de joint de grains est celle décrite figure III.8.

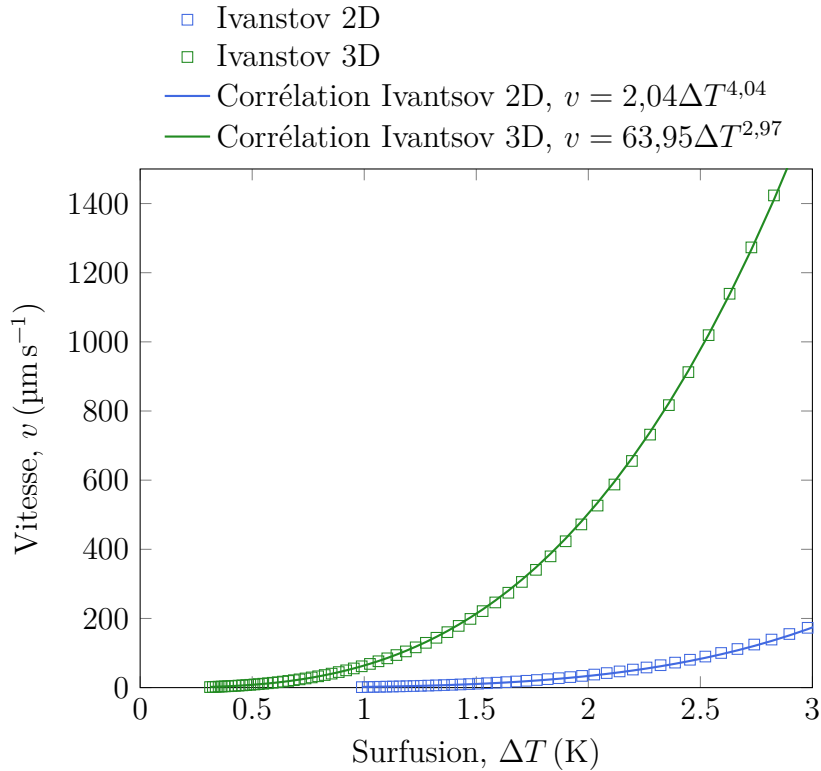


Figure III.14 – Lois de cinétique pour les paramètres donnés tableau III.3 où $(\square)$ est la solution d'Ivantsov 2D, $(—)$ est sa corrélation en loi puissance, $(\square)$ est la solution d'Ivantsov 3D et $(—)$ sa corrélation en loi puissance.

5.2 Résultats

Les quatre prochaines figures donnent l'évolution de l'angle θ de joint de grains en fonction de la taille de cellule et selon les différents paramètres cités précédemment.

Tableau III.3 – Propriétés du succinonitrile-1,3%pds acétone, paramètres procédé et numérique. Les propriétés de l’alliage sont extraites de [Son18]. Dans [Son18], la valeur de σ^* vaut 0,0271 et provient d’une expression du produit r^2v qui diffère d’un facteur 2 de celle utilisée dans ce manuscrit.

	Symbole	Valeur	Unité
Propriétés alliage			
Composition	w_0	1,3	%pds
Pente du liquidus	m_L	-3,02	K %pds ⁻¹
Température du liquidus	T_L	330,032	K
Coefficient de partage	k	0,1	-
Coefficient de diffusion dans le liquide	D	$1,27 \times 10^{-9}$	m ² s ⁻¹
Coefficient de Gibbs-Thomson	Γ	$6,40 \times 10^{-8}$	K m
Constante de stabilité marginale	σ^*	0,01355	-
Corrélation Ivanstov 2D $v = A\Delta T^n$	A	$2,04 \times 10^{-6}$	m s ⁻¹ K ⁻¹
	n	4,04	-
Corrélation Ivanstov 3D $v = A\Delta T^n$	A	$63,94 \times 10^{-6}$	m s ⁻¹ K ⁻¹
	n	2,97	-
Orientations cristallographiques	$\varphi_1^{g_1}, \varphi_1^{g_2}$	0	°
	(ϕ^{g_1}, ϕ^{g_2})	(33, 8)	°
	$\varphi_2^{g_1}$	{0, 45}	°
	$\varphi_2^{g_2}$	{0, 45}	°
Paramètres procédé			
Gradient de température	G	1900	K m ⁻¹
Vitesse de refroidissement	$\dot{T}$	-0,1634	K s ⁻¹
Vitesse des isothermes	v_L	86×10^{-6}	m s ⁻¹
Température initiale	T_0	330,032	K
Paramètres numériques			
Taille des cellules	l_{CA}	$[1 \times 10^{-6}; 1 \times 10^{-3}]$	m
Largeur du domaine	L/l_{CA}	200	-
Hauteur du domaine	H/l_{CA}	400	-
Épaisseur du domaine (calculs 3D)	W/l_{CA}	[1; 50]	-
Rapport pas de temps	$(l_{CA}/v_L)/\Delta t$	10	-

Sur chaque figure est donné le cas de « référence », représenté par le symbole (○) et correspondant à : 50 cellules dans l'épaisseur du domaine de simulation, une cinétique en loi puissance corrélée sur la solution d'Ivantsov 3D (Iv3D), une dimension 3D du problème (CA3D) et des branches dendritiques secondaires non désorientées ($\varphi_1^{g1} = \varphi_2^{g1} = 0^\circ$, $\varphi_1^{g2} = \varphi_2^{g2} = 0^\circ$).

5.2.1 Épaisseur du domaine de simulation

La figure III.15 montre l'évolution de θ en fonction de l_{CA} pour deux épaisseurs de domaine, à savoir 1 cellule (●) et $W = 50$ cellules (○). Les calculs correspondent à des simulations 3D, une corrélation d'Ivantsov 3D est utilisée et les branches secondaires ne sont pas désorientées. Deux tailles de marche sont repérées sur la figure III.15 par les lignes verticales en pointillés et correspondent à la marche maximale, $\delta l_{Iv3D}^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} = 72,1 \mu\text{m}$, et à la marche propre au couple (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) , à savoir $\delta l_{Iv3D}^{(33^\circ, 8^\circ)} = 33,6 \mu\text{m}$.

- CA3D, Iv3D, $W = 1$ cellule, $\varphi_1^{g1} = \varphi_2^{g1} = 0^\circ$, $\varphi_1^{g2} = \varphi_2^{g2} = 0^\circ$
- CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g1} = \varphi_2^{g1} = 0^\circ$, $\varphi_1^{g2} = \varphi_2^{g2} = 0^\circ$

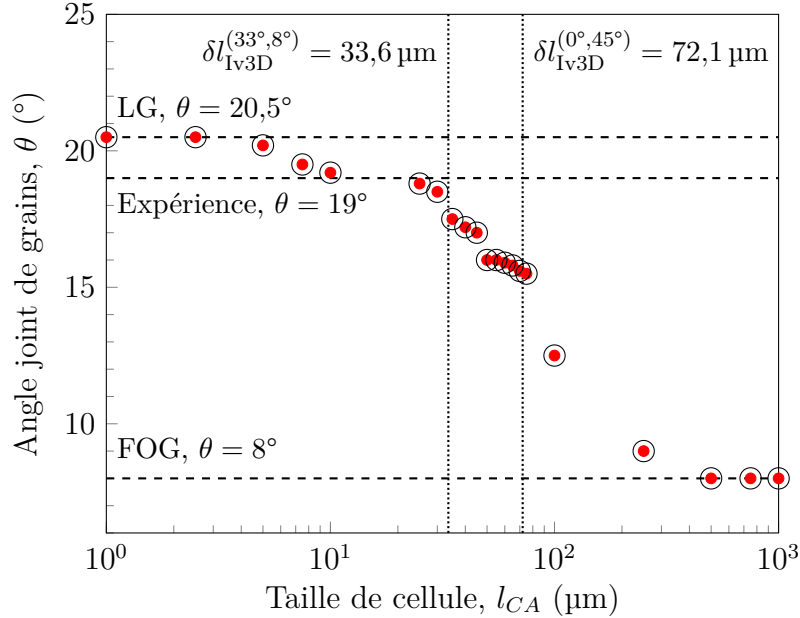


Figure III.15 – Évolution de l'angle θ de joint de grains pour la configuration angulaire $(\varphi_1^{g1}, \phi^{g1}, \varphi_2^{g1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$ et $(\varphi_1^{g2}, \phi^{g2}, \varphi_2^{g2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$ en fonction de la taille de cellule l_{CA} . Influence du nombre de cellules dans l'épaisseur de l'échantillon pour des calculs 3D où (○) est la configuration de référence, avec 50 cellules dans l'épaisseur, et (●) est le cas avec 1 cellule dans l'épaisseur. Pour les deux cas, les branches secondaires ne sont pas désorientées, à savoir $\varphi_1^{g1} = \varphi_2^{g1} = 0^\circ$ et $\varphi_1^{g2} = \varphi_2^{g2} = 0^\circ$.

Notons premièrement que le nombre de cellules dans l'épaisseur du domaine n'influence pas la compétition de croissance entre les branchements au joint de grains. Pour des faibles valeurs de l_{CA} , la valeur de θ tend vers le critère LG détaillé précédemment. Le couple angulaire forme une configuration divergente ($\phi^{g1} > \phi^{g2}$) et la valeur donnée par la limite géométrique correspond à l'équation (III.12), à savoir $\theta = 20,5^\circ$. Pour des valeurs importantes de l_{CA} , la valeur de θ tend vers le critère FOG (équations (III.1a) et (III.1b)), à savoir $\theta = 8^\circ$. Il existe entre ces deux limites un domaine de transition où la valeur de

θ obtenue avec l'approche CA est très proche de la valeur θ expérimentale, et cela pour $l_{CA} \approx \delta l_{Iv3D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$. Cette observation est intéressante car elle est directement liée au couple angulaire. Elle est néanmoins en contradiction avec les résultats obtenus dans l'étude précédente, vis-à-vis des calculs champ de phase, où la différence entre l'approche CA et le champ de phase évaluée sur toute la carte de sélection est minimale pour $l_{CA} \approx \delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$.

5.2.2 Cinétique de croissance

L'influence de la cinétique de croissance est étudiée et l'évolution de θ en fonction de l_{CA} est montré figure III.16 où (○) est le cas de référence, (◆) correspond à une cinétique corrélée Ivantsov 2D et (♦) une cinétique corrélée Ivantsov 3D. Pour ces deux derniers cas, les calculs correspondent à des simulations 2D (CA2D). Le couple angulaire étudié est donc $(\phi^{g1}, \phi^{g2}) = (33^\circ, 8^\circ)$. Comme pour la figure III.15, les marches propres au couple (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) , $\delta l_{Iv3D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$, et la valeur maximale, $\delta l_{Iv3D}^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$, sont reportées. Ces grandeurs sont spécifiques d'une cinétique de croissance Ivantsov 3D. Ainsi, les tailles de marche correspondant à une cinétique de croissance Ivantsov 2D sont également reportées, figure III.16, et on a : $\delta l_{Iv2D}^{(33^\circ, 8^\circ)} = 52,6 \mu\text{m}$ et $\delta l_{Iv2D}^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} = 115,8 \mu\text{m}$.

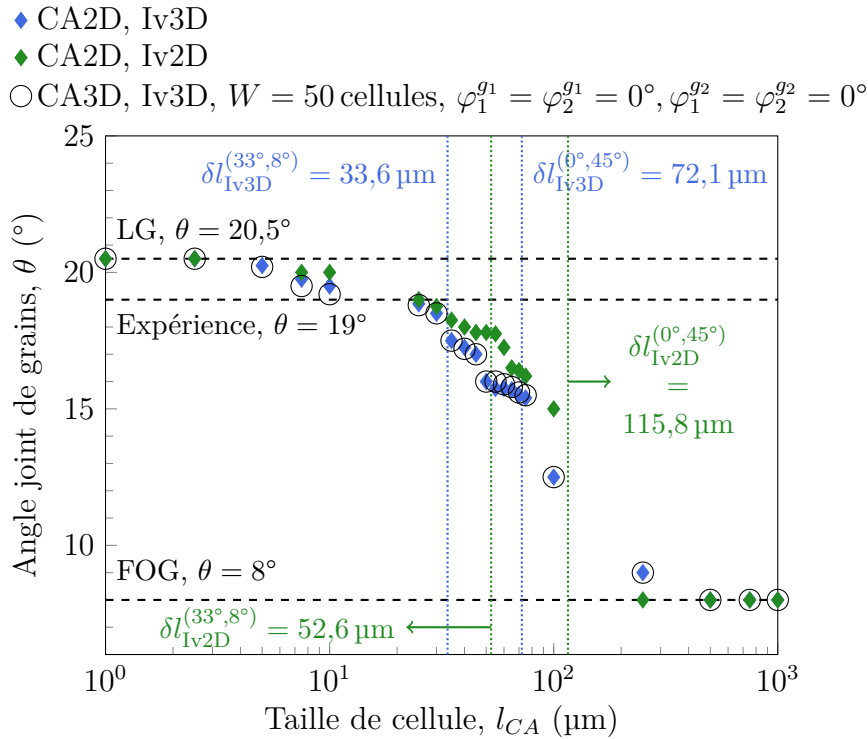


Figure III.16 – Évolution de l'angle θ de joint de grains pour la configuration angulaire $(\phi^{g1}, \phi^{g2}) = (33^\circ, 8^\circ)$ en fonction de la taille de cellule l_{CA} . Influence de la loi de cinétique pour des calculs 2D où (○) est le cas de référence, (♦) correspond à une cinétique d'Ivantsov 3D et (◆) une cinétique d'Ivantsov 2D.

Les tendances obtenues pour les trois cas sont identiques, à savoir une convergence vers le critère LG pour des faibles valeurs de l_{CA} et une convergence vers le critère FOG pour des valeurs de l_{CA} élevées. Pour une cinétique d'Ivantsov 3D, la dimension spatiale du problème n'a presque pas d'influence, les valeurs (○) et (♦) étant très proches. Dans la zone de transition entre LG et FOG, de légères différences sont observées entre la cinétique

d'Ivantsov 3D (◆) et celle d'Ivantsov 2D (◆). Pour cette dernière, on observe aussi que la valeur de θ pour $l_{CA} \approx \delta l_{Iv2D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$ est proche de la valeur expérimentale.

5.2.3 Désorientation simultanée des branches secondaires

L'évolution de θ en fonction de l_{CA} est donnée figure III.17. Une désorientation simultanée des branches secondaires correspond à $\varphi_1^{g_1} = 0^\circ, \varphi_2^{g_1} = 45^\circ$ et $\varphi_1^{g_2} = 0^\circ, \varphi_2^{g_2} = 45^\circ$. Les triplets d'angles d'Euler des grains g_1 et g_2 sont donc $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 45^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 45^\circ)$, respectivement. Des simulations 3D sont effectuées. Une corrélation Ivantsov 3D est utilisée et deux épaisseurs du domaine sont utilisées, à savoir $W = 1$ cellule, symboles (▲), et $W = 50$ cellules, symboles (▲). Comme précédemment, les valeurs de $\delta l_{Iv3D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$ et $\delta l_{Iv3D}^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$ sont reportées sur la figure III.17.

- ▲ CA3D, Iv3D, $W = 1$ cellule, $\varphi_1^{g_1} = 0^\circ, \varphi_2^{g_1} = 45^\circ, \varphi_1^{g_2} = 0^\circ, \varphi_2^{g_2} = 45^\circ$
- ▲ CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g_1} = 0^\circ, \varphi_2^{g_1} = 45^\circ, \varphi_1^{g_2} = 0^\circ, \varphi_2^{g_2} = 45^\circ$
- CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g_1} = \varphi_2^{g_1} = 0^\circ, \varphi_1^{g_2} = \varphi_2^{g_2} = 0^\circ$

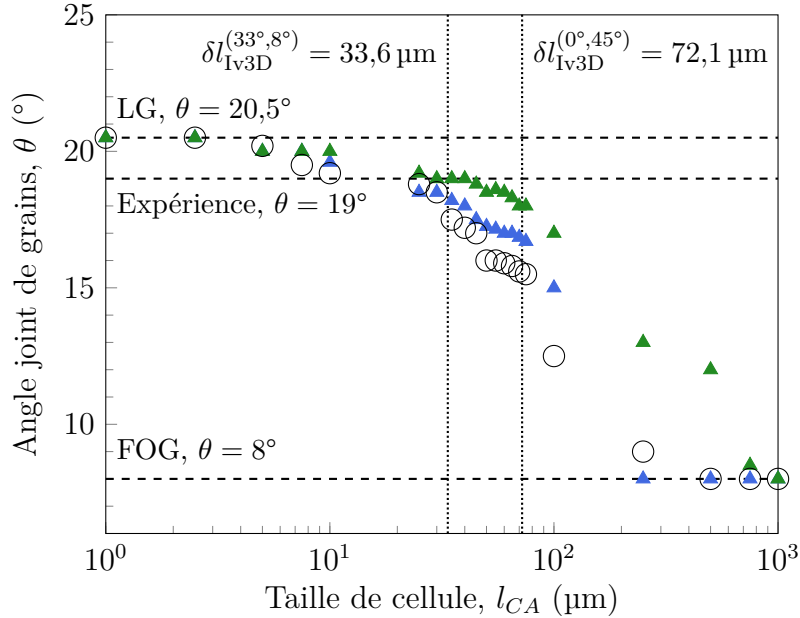


Figure III.17 – Évolution de l'angle θ de joint de grains en fonction de la taille de cellule l_{CA} . Influence du nombre de cellules dans l'épaisseur de l'échantillon pour des calculs 3D et des branches secondaires désorientées de 45° où (○) est la configuration de référence, (▲) 1 cellule dans l'épaisseur et (▲) 50 cellules dans l'épaisseur.

À nouveau, une convergence vers LG pour des petites cellules et une convergence vers FOG pour des grandes cellules sont observées. Il est intéressant de noter qu'une désorientation simultanée des branches secondaires ne modifie pas la valeur de θ obtenue pour des petites cellules. En d'autres termes, pour des grilles automate cellulaire fines, la compétition de croissance est identique pour les triplets d'angles d'Euler suivants : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$, $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 45^\circ)$, $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 45^\circ)$.

Pour le cas de référence (○), les branches secondaires ne sont pas désorientées. On voit donc qu'une désorientation de 45° des branches secondaires, symboles (▲), influence la compétition de croissance au joint de grains, notamment à partir de $l_{CA} = 10 \mu\text{m}$. Pour une

épaisseur de domaine $W = 1$ cellule, symboles ($\blacktriangle$), et pour des petites cellules, les résultats obtenus sont proches du cas de référence et du cas où $W = 50$ cellules. En revanche, au delà de $l_{CA} = 10 \mu\text{m}$, et pour $W = 1$ cellule, les valeurs de θ divergent de celles pour $W = 50$ cellules. Ces différences sont particulièrement importantes pour $l_{CA} \geq 90 \mu\text{m}$. Globalement, les différences observées montrent qu'un nombre de cellules plus important dans l'épaisseur de l'échantillon influence la compétition de croissance lorsque les branches secondaires sont désorientées, ces branches pouvant interagir au joint de grains.

5.2.4 Désorientation isolée des branches secondaires

On s'intéresse maintenant à l'effet de la désorientation, pour un grain unique, des branches secondaires. Les simulations sont 3D, une corrélation Ivantsov 3D et une unique épaisseur du domaine de simulation, $W = 50$ cellules, sont utilisées. L'évolution de θ en fonction de l_{CA} est donnée figure III.18 où les symboles ($*$) correspondent à une désorientation des branches secondaires pour le grain g_1 , uniquement, et les symboles ($*$) correspondent à une désorientation des branches secondaires pour le grain g_2 , uniquement.

- * CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g_1} = 0^\circ, \varphi_2^{g_1} = 45^\circ, \varphi_1^{g_2} = \varphi_2^{g_2} = 0^\circ$
- * CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g_1} = \varphi_2^{g_1} = 0^\circ, \varphi_1^{g_2} = 0^\circ, \varphi_2^{g_2} = 45^\circ$
- CA3D, Iv3D, $W = 50$ cellules, $\varphi_1^{g_1} = \varphi_2^{g_1} = 0^\circ, \varphi_1^{g_2} = \varphi_2^{g_2} = 0^\circ$

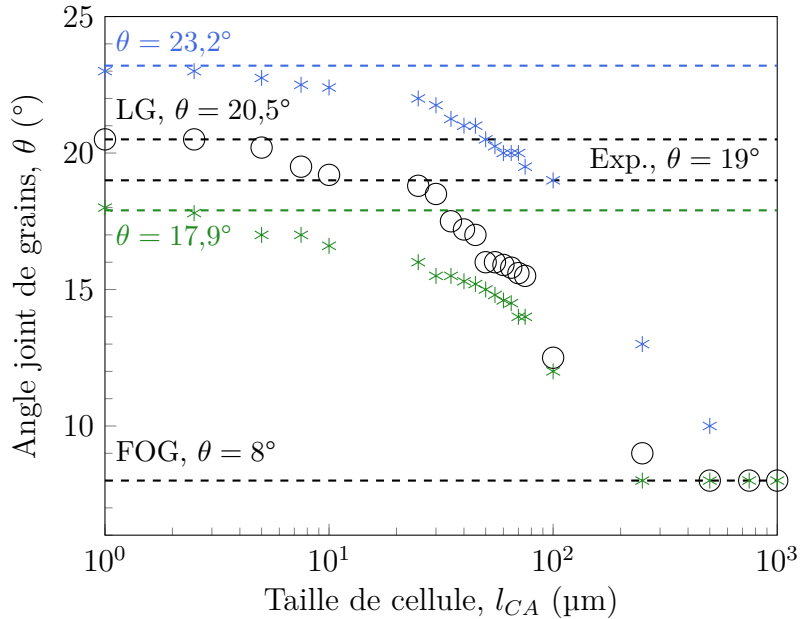


Figure III.18 – Évolution de l'angle θ de joint de grains en fonction de la taille de cellule l_{CA} . Influence de la désorientation des branches secondaires pour un grain unique et des calculs 3D où (○) est la référence, ($*$) correspond à des branches secondaires désorientées de 45° pour le grain g_1 et ($*$) pour le grain g_2 .

Notons premièrement que le critère FOG est retrouvé pour des grandes cellules. En revanche, pour des petites cellules, LG n'est pas retrouvée pour les cas ($*$) et ($*$) qui tendent, pour des petites cellules, vers les valeurs $\theta = 23,2^\circ$ et $\theta = 17,9^\circ$, respectivement et reportées sur la figure III.18. La valeur de $\theta = 20,5^\circ$ est obtenue en utilisant l'équation (III.12), avec $\phi^{g_1} = 33^\circ$ et $\phi^{g_2} = 8^\circ$, et ce couple angulaire correspond à une configuration divergente telle que schématisée figure III.4 (D), page 54. Comme la valeur $\theta = 20,5^\circ$ n'est pas retrouvée, cela signifie que la configuration divergente, figure III.4 (D), n'est plus

valable lorsqu'un grain unique présente une désorientation des branches secondaires. Il devient donc nécessaire de considérer une autre succession des branchements dendritiques au joint de grains afin de retrouver les valeurs de θ obtenues pour les cas (*) et (**) et pour des petites cellules ($\theta = 23,2^\circ$ et $\theta = 17,9^\circ$, respectivement).

Pour le cas (*), seul le grain g_1 a des branches secondaires désorientées. Le bicristal est défini par les triplets d'angles d'Euler suivants : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 45^\circ)$, $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$ et la configuration correspondante est divergente. Il convient donc de considérer la figure III.4 (D) où le parcours infinitésimal δx_2 , propre aux branches secondaires du grain g_1 , s'effectue dans la direction cristallographique $[0\ 1\ 1]$. Dans cette direction cristallographique, la vitesse de la branche secondaire projetée dans le plan d'observation peut s'écrire : $v_{[0\ 1\ 1]} = v_{[0\ 0\ 1]}/\sqrt{2}$. En considérant le temps δt infinitésimal au cours duquel se produisent simultanément les branchements au joint de grains, on écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta t = \frac{\delta x \times \cos(\phi^{g_1} - \theta)}{v_{[0\ 0\ 1]}} + \frac{\delta x \times \sin(\phi^{g_1} - \theta)}{v_{[0\ 0\ 1]}/\sqrt{2}} \end{array} \right. \quad (\text{III.39a})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta t = \frac{\delta x \times \cos(\phi^{g_2} - \theta)}{v_{[0\ 0\ 1]}} - \frac{\delta x \times \sin(\phi^{g_2} - \theta)}{v_{[0\ 0\ 1]}} \end{array} \right. \quad (\text{III.39b})$$

et on obtient :

$$\cos(\phi^{g_1} - \theta) + \sqrt{2} \sin(\phi^{g_1} - \theta) = \cos(\phi^{g_2} - \theta) - \sin(\phi^{g_2} - \theta) \quad (\text{III.40})$$

d'où finalement :

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi^{g_2} - \cos \phi^{g_2} + \cos \phi^{g_1} + \sqrt{2} \sin \phi^{g_1}}{\sin \phi^{g_2} + \cos \phi^{g_2} - \sin \phi^{g_1} + \sqrt{2} \cos \phi^{g_1}} \right) \quad (\text{III.41})$$

L'application numérique avec $\phi^{g_1} = 33^\circ$ et $\phi^{g_2} = 8^\circ$ donne $\theta = 23,2^\circ$, ce qui correspond bien à la limite pour des tailles de cellule très faibles reportée sur la figure III.18.

Pour le cas (**), seul le grain g_2 a des branches secondaires désorientées. Le bicristal est défini par les triplets d'angles d'Euler suivants : $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$, $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (0^\circ, 8^\circ, 45^\circ)$. De ce fait, l'équation (III.40) devient :

$$\cos(\phi^{g_1} - \theta) + \sin(\phi^{g_1} - \theta) = \cos(\phi^{g_2} - \theta) - \sqrt{2} \sin(\phi^{g_2} - \theta) \quad (\text{III.42})$$

et finalement :

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{2} \sin \phi^{g_2} - \cos \phi^{g_2} + \cos \phi^{g_1} + \sin \phi^{g_1}}{\sqrt{2} \cos \phi^{g_2} + \sin \phi^{g_2} - \sin \phi^{g_1} + \cos \phi^{g_1}} \right) \quad (\text{III.43})$$

L'application numérique avec $\phi^{g_1} = 33^\circ$ et $\phi^{g_2} = 8^\circ$ donne $\theta = 17,9^\circ$, ce qui correspond bien, à nouveau, à la limite pour des tailles de cellule très faibles et reportée sur la figure III.18.

5.2.5 Conclusion sur l'étude paramétrique

Le premier but de cette étude était de trouver une corrélation entre une valeur de θ proche de l'expérience et un ou plusieurs paramètres utilisés. Ainsi, pour une cinétique d'Ivantsov 3D et une taille de cellule prise telle que $l_{CA} \approx \delta l_{\text{Iv3D}}^{(33^\circ, 8^\circ)}$, l'erreur sur la valeur expérimentale, $\theta = 19^\circ$, est de l'ordre de 1° . Ce résultat ne dépend pas du nombre de

cellules dans l'épaisseur du domaine, de la désorientation des branches secondaires ou de la dimension spatiale du problème (2D ou 3D). Similairement, pour une cinétique d'Ivantsov 2D et une taille de cellule $l_{CA} \approx \delta l_{Iv2D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$, la valeur de θ simulée est proche de la valeur expérimentale.

Pour chaque paramètre étudié, l'influence de la taille de cellule montre que pour des faibles valeurs, l'angle de joint de grains tend vers la limite géométrique. Inversement, l'angle de joint de grains tend vers le critère FOG pour des tailles de cellule importantes. Ceci est donc en accord avec l'étude précédente réalisée sur le succinonitrile-0,4%pds acétone. De plus, lorsqu'un grain unique a des branches secondaires désorientée de 45° par rapport à l'axe de la branche primaire la mieux orientée vis-à-vis du gradient de température, une limite géométrique existe, mais ne correspond pas à celle développée figure III.4 (D). Pour un grain unique, ses branches secondaires désorientées interagissent au joint de grains et il est nécessaire de prendre en compte leur parcours et leur cinétique associée afin de retrouver une nouvelle expression analytique de θ (figure III.18). Lorsque les branches secondaires des deux grains ne sont pas désorientées, le nombre de cellules dans l'épaisseur du domaine n'influence pas la compétition de croissance (figure III.15).

5.3 Cartes de sélection CA adaptatives

Nous venons de voir que la valeur expérimentale de θ est approchée pour une cinétique Ivantsov 3D (respectivement Ivantsov 2D) et une taille de cellule $l_{CA} \approx \delta l_{Iv3D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$ (respectivement $l_{CA} \approx \delta l_{Iv2D}^{(33^\circ, 8^\circ)}$). Nous proposons maintenant d'effectuer une carte CA 2D de sélection dite *adaptive* pour la même composition utilisée précédemment. Les couples angulaires utilisés sont identiques à ceux de l'étude sur le succinonitrile-0,4%pds acétone (figure III.3, page 52). La taille de cellule n'est pas fixe et est égale à la taille de marche de chaque couple angulaire étudié. Ainsi, pour un couple angulaire (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) donné, la taille de cellule utilisée pour la simulation est donnée par l'équation (III.23), page 60. À nouveau, les domaines de simulation ont un rapport hauteur/largeur $(H/L) = 2$, où la grille automate cellulaire contient 200 cellules dans la direction horizontale et 400 cellules dans la direction verticale. Deux cinétiques de croissance sont utilisées, à savoir deux lois puissance corrélées sur les solutions d'Ivantsov 2D et 3D dont les paramètres (A, n) sont donnés tableau III.3. Les mêmes paramètres procédé et matériau sont utilisés. La figure III.19 donne les tailles de marche $\delta l^{(\phi^{g1}, \phi^{g2})}$ associés aux couples angulaires (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) étudiés pour une cinétique d'Ivantsov 2D et 3D.

Les couleurs chaudes sont associées aux valeurs élevées de $\delta l^{(\phi^{g1}, \phi^{g2})}$. Naturellement, la valeur maximale correspond aux couples $(\phi^{g1}, \phi^{g2}) = (0^\circ, \pm 45^\circ)$ (ou $(\phi^{g2}, \phi^{g1}) = (\pm 45^\circ, 0^\circ)$) et est donnée par l'équation (III.24). Inversement, la valeur minimale correspond aux couples (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) tels que $|\phi^{g1}| = |\phi^{g2}|$ et vaut $\delta l^{(|\phi^{g1}|=|\phi^{g2}|)} = 0 \mu\text{m}$. Ainsi, pour un couple (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) et une cinétique d'Ivantsov donnés, la taille de cellule utilisée pour le calcul CA se lit directement sur la figure III.19. Notons que les couples où $|\phi^{g1}| = |\phi^{g2}|$ sont problématiques puisque la taille de marche correspondante est nulle. Cela reviendrait donc à effectuer des calculs CA avec $l_{CA} = 0 \mu\text{m}$. L'écart minimal entre les couples angulaire étudiés est de 5° (figure III.3, page 52), ce qui résulte en une taille de marche égale à $1,98 \mu\text{m}$ pour une cinétique d'Ivantsov 2D et égale à $0,74 \mu\text{m}$ pour une cinétique d'Ivantsov 3D. Pour les couples où $|\phi^{g1}| = |\phi^{g2}|$, ce sont donc ces valeurs qui sont utilisées pour la taille de cellule.

Les cartes de sélection CA adaptatives sont données en figure III.20 pour (a) une cinétique d'Ivanstov 2D et (b) une cinétique d'Ivantsov 3D. La sélection de joint de grains

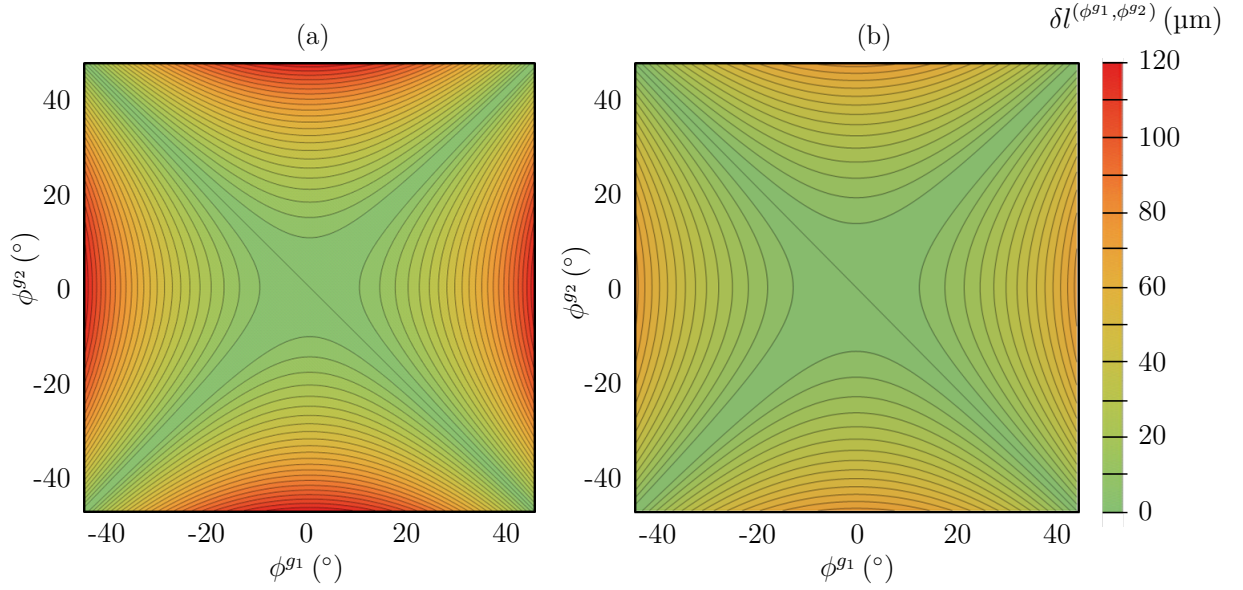


Figure III.19 – Cartes de taille de marche $\delta l^{(\phi^{g1}, \phi^{g2})}$ associées aux couples angulaires (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) où ϕ^{g1} et ϕ^{g2} sont compris entre -45° et 45° pour une cinétique d'Ivantsov (a) 2D et (b) 3D. Pour un couple (ϕ^{g1}, ϕ^{g2}) donné, la valeur de $\delta l^{(\phi^{g1}, \phi^{g2})}$ correspondante se lit via le code couleur.

est très similaires pour les deux cas. On note néanmoins que ces cartes de sélection sont très différentes de celles obtenues avec une taille de cellule fixée, pour le succinonitrile-0,4%pds acétone, et données figure III.9. Par souci de lisibilité, la carte des tailles de marche pour une cinétique d'Ivantsov 3D est rajoutée figure III.20 (c).

Sur cette figure, les ellipses bleues représentent les domaines où la taille de marche est faible. À l'inverse, les rectangles noirs correspondent aux tailles de marche importantes. La carte de sélection angulaire du critère LG est aussi rajoutée, figure III.20 (d). Dans les domaines où la taille de marche est faible (ellipses bleues III.20 (c)), les calculs CA sont effectués avec des petites cellules. De ce fait, pour ces domaines, les résultats entre les calculs CA pour la cinétique d'Ivantsov 3D, figure III.20 (b), et LG sont proches. Inversement, pour des grandes cellules (rectangles noirs figure III.20 (c)), les résultats CA s'écartent de LG et se rapprochent du critère FOG (figure III.2, page 51). Notons que ces observations sont tout aussi valables pour la carte de sélection CA Ivantsov 2D, figure III.20 (a). Il conviendrait alors de considérer les domaines de petites et grandes tailles de cellule pour la carte de taille de marche correspondant à une cinétique d'Ivantsov 2D et donnée en figure III.19 (a).

Il a été décrit précédemment que, pour le couple angulaire $(\varphi_1^{g1}, \phi^{g1}, \varphi_2^{g1}) = (0^\circ, 33^\circ, 0^\circ)$ et $(\varphi_1^{g2}, \phi^{g2}, \varphi_2^{g2}) = (0^\circ, 8^\circ, 0^\circ)$ (respectivement $(\phi^{g1}, \phi^{g2}) = (33^\circ, 8^\circ)$ en 2D), et correspondant à la configuration divergente de l'expérience d'Esaka, la valeur expérimentale de l'angle de joint de grains ($\theta = 19^\circ$) est bien approchée par l'approche CA lorsque $l_{CA} \approx \delta l^{(33^\circ, 8^\circ)}$. Cette observation est la principale motivation de la réalisation des cartes de sélection CA adaptatives. Nous pouvons logiquement penser que réaliser une carte de sélection CA adaptative pour le succinonitrile-0,4%pds acétone donnerait une meilleure comparaison avec les résultats champ de phase (figure III.6 (a), page 57) et le critère rev-FOG (figure III.6 (b)). Néanmoins, les tendances obtenues seraient très proches de celles observées figure III.20 (a) et (b). Ces cartes sont bien moins proches des résultats champ de phase et du critère rev-FOG, en comparaison avec celle réalisée pour $l_{CA} \approx \delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$, figure III.9

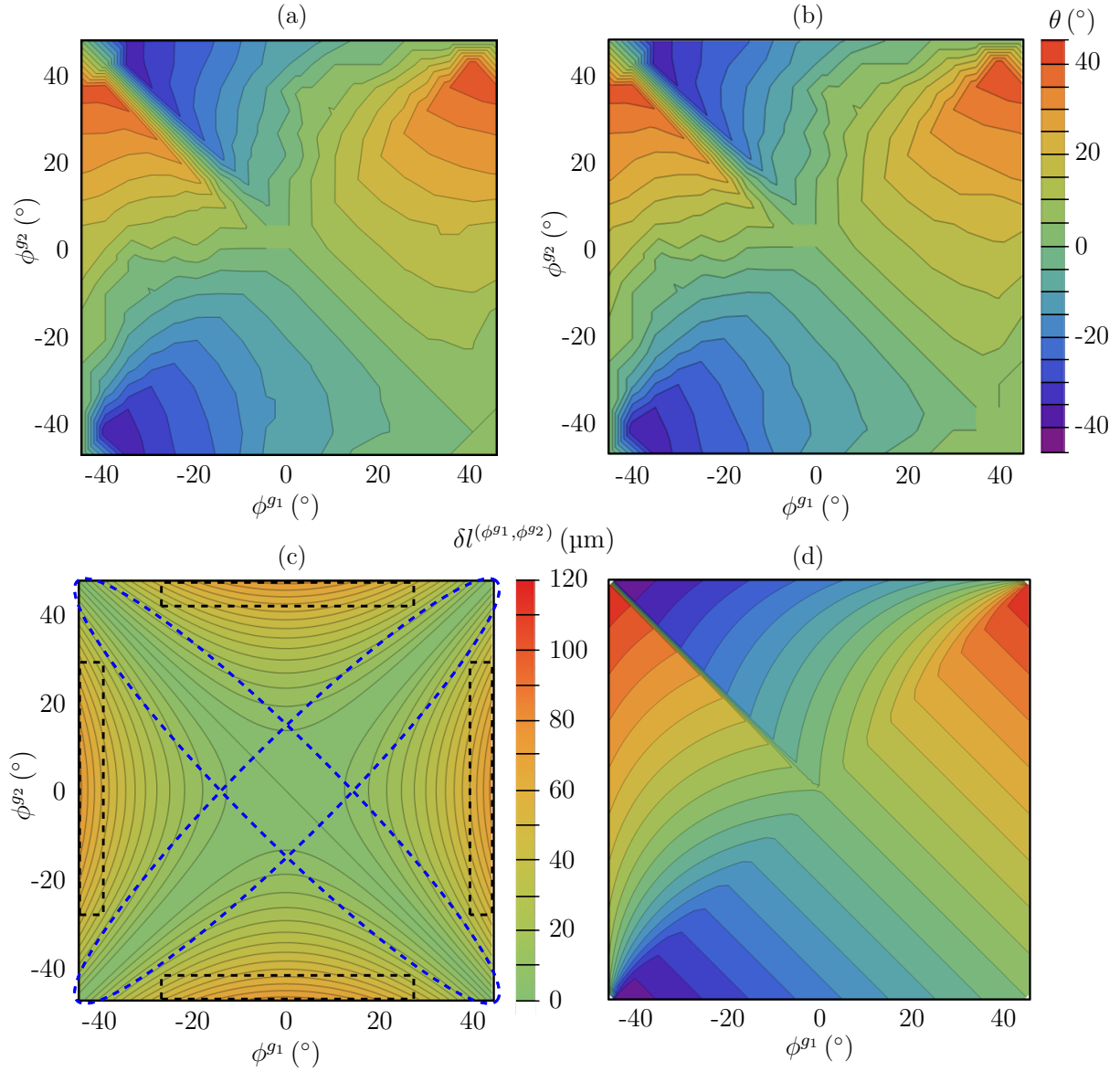


Figure III.20 – Carte de sélection angulaire donnant les valeurs de l'angle θ de joint de grains en fonction de ϕ^{g1} (abscisse) et ϕ^{g2} (ordonnée) pour une cinétique d'Ivantsov (a) 2D et (b) 3D. Les valeurs de ϕ^{g1} et ϕ^{g2} sont comprises dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$. La carte de sélection angulaire associée au critère LG est rappelée en (d).

(C). La méthode de tailles de cellule adaptative n'est donc, *a priori*, pas convenable pour le succinonitrile-0,4%pds acétone et la comparaison avec l'étude champ de phase.

Actuellement, il n'existe pas de carte de sélection angulaire champ de phase pour le succinonitrile-1,3%pds acétone et les conditions de refroidissement de l'expérience d'Esaka. La configuration divergente a cependant été simulée en 3D comme le montre la figure III.21 et la valeur de θ simulée est très proche de la valeur expérimentale [Son18]. De plus, on note bien l'écart entre la direction de croissance des dendrites et les orientations cristallographiques $\langle 10 \rangle$ nominales. En effet, figure III.21, les valeurs mesurées de ϕ^{g_1} et ϕ^{g_2} diffèrent de 33° et 8° , respectivement.

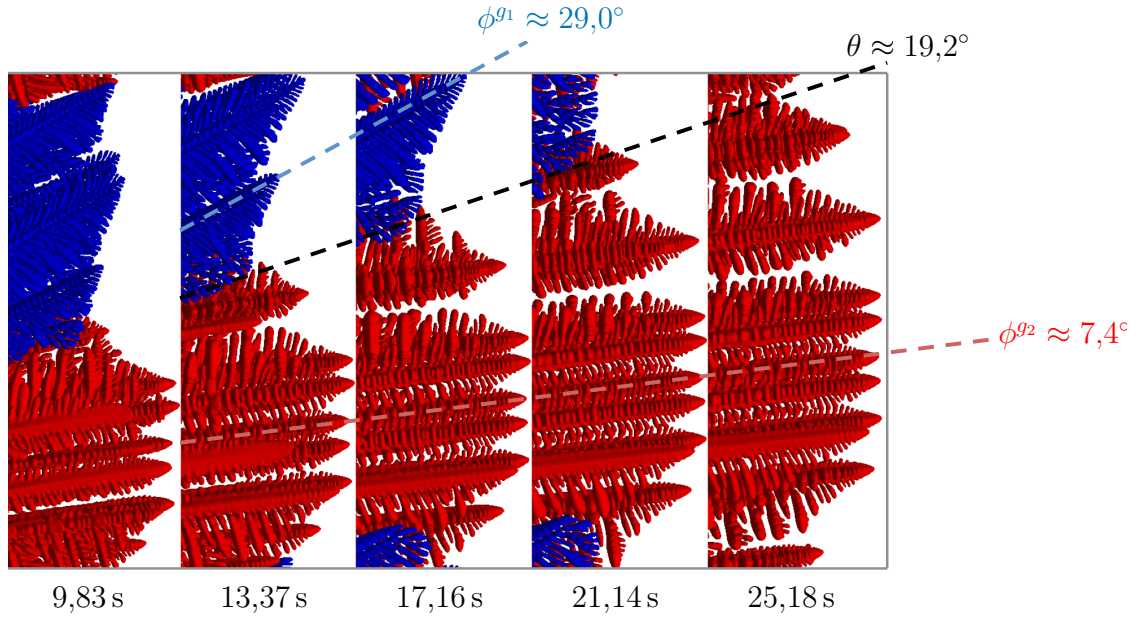


Figure III.21 – Calcul champ de phase pour la configuration divergente d'Esaka [Son18].

6 Conclusions

Comparaison avec le modèle champ de phase

Dans cette étude, la compétition de croissance en solidification dirigée d'un bicristal de succinonitrile-0,4%pds acétone est modélisée par l'approche automate cellulaire. Les résultats sont quantitativement comparés à une étude champ de phase et à trois critères donnant une prédiction de l'angle θ du joint de grains pour deux grains en compétition. Ces critères sont FOG (*Favorably Oriented Grain*), LG (*Limite Géométrique*) et rev-FOG (*revised-FOG*). Le critère FOG, inspiré de Walton et Chalmers [Wal59], énonce que le grain le mieux orienté vis-à-vis du gradient de température survit à la compétition de croissance et définit l'orientation du joint de grains. La limite géométrique se base sur des branchements dendritiques se développant au joint de grains à une échelle infiniment petite. Le critère rev-FOG est une formalisation des résultats champ de phase.

Les calculs CA sont menés en 2D et pour plusieurs couples angulaires (ϕ_1, ϕ_2) et l'angle θ est déterminé. Les résultats permettent de construire une carte de sélection angulaire et leur étude mène aux conclusions suivantes :

- L'orientation du joint de grains calculée par la méthode CA dépend de la taille de cellule l_{CA} , le type de voisinage (von Neumann ou Moore) et la position à laquelle

- la température, utilisée pour l'algorithme de croissance, est calculée (pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance ou centre C des cellules).
- Les calculs effectués sur une grille automate cellulaire fine tendent vers une carte de sélection proche de celle donnée par la limite géométrique. Cela démontre l'aptitude de la méthode CA à modéliser différents systèmes de branchements (configurations convergente et divergente, figure III.4) au joint de grains. Ces branchements définissent l'orientation du joint de grains.
 - Les calculs effectués avec une grille automate cellulaire large ne permettent pas de modéliser des branchements à une échelle infinitésimale et les résultats tendent vers le critère FOG.
 - Pour un intervalle de tailles de cellule défini par la marche maximale $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$ entre les dendrites primaires stationnaires, les résultats CA sont en bon accord avec le critère rev-FOG et les résultats champ de phase. La déviation minimale est obtenue pour un rapport $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)} / l_{CA} \approx 1$. Les différences avec le champ de phase viennent principalement des approximations utilisées dans la méthode CA.
 - L'utilisation d'un voisinage de Moore et l'estimation de la température aux pointes $S_{\langle 10 \rangle}$ des enveloppes de croissance donnent les meilleurs résultats.

Si la méthode champ de phase fait office de référence pour la modélisation de la croissance de microstructures dendritiques, elle requiert néanmoins une puissance de calcul conséquente. La production de la carte de sélection champ de phase, figure III.6 (a), a en effet nécessité 255 jours de calculs continus sur un GPU (Tesla k40c). À l'inverse, la production d'une carte de sélection CA s'effectue en moins de 5 heures sur un unique CPU. L'approche CA demeure donc avantageuse pour la prédiction de structures de grains dans les procédés de solidification à l'échelle industrielle [Car12].

Concernant la compétition de croissance à une plus fine échelle, il peut être pertinent de mener des calculs CA pour des compositions d'alliage et conditions de refroidissement différentes. Il peut aussi clairement être intéressant de mener des études de compétition de croissance avec d'autres méthodes numériques récemment développées telles que le modèle d'enveloppe [Ste99; Sou16], l'approche DNN (*Dendritic Needle Network*) [Tou13] ou une récente méthode couplant un automate cellulaire, un réseau de paraboles et les éléments finis (méthode CA-PTN-FE, *Cellular Automaton-Parabolic Thick Needle-Finite Elements*) [Fle19]. Néanmoins, des études statistiques provenant d'observations expérimentales de compétition de croissance entre bicristaux dendritiques restent, à notre connaissance, indisponibles actuellement.

Expérience d'Esaka

Le système bicristallin divergent de l'expérience d'Esaka a été étudié par l'approche CA en 2D et 3D. Pour une taille de cellule proche de la taille de marche propre au couple angulaire, l'angle du joint de grain simulé est proche de la valeur expérimentale. L'erreur sur cette valeur est de l'ordre de 1° pour des cinétiques d'Ivantsov 3D et d'Ivantsov 2D. Pour ces deux cinétiques de croissance, et pour tous les paramètres étudiés (désorientation des branches secondaires, épaisseur et dimension spatiale du domaine de simulation), l'angle de joint de grains tend vers le critère de limite géométrique pour des tailles de cellule très inférieures à la marche maximale $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$. Inversement, l'angle de joint de grains s'approche du critère FOG pour des tailles de cellule supérieures à $\delta l^{(0^\circ, \pm 45^\circ)}$. Lorsque un grain unique présente une désorientation des branches secondaires, il convient de considérer une autre limite géométrique, celle-ci étant retrouvée pour des petites cellules. Des cartes

de sélection CA à tailles de cellule adaptatives sont proposées. Les cartes de sélection angulaires diffèrent fortement de celles pour une taille de cellule fixe, bien que ces dernières n'aient été réalisées que pour le succinonitrile-0,4%*pds* acétone (figure III.9).

La valeur expérimentale de l'angle de joint de grain est aussi bien approchée par des simulations 3D champ de phase. Actuellement, aucune carte de sélection champ de phase n'est disponible pour le succinonitrile-1,3%*pds* acétone et les conditions de refroidissement de l'expérience d'Esaka. Cette réalisation présente donc un intérêt futur, compte tenu du faible de temps de calcul d'une carte de sélection CA. Des études par d'autres méthodes numérique mentionnées précédemment, à savoir le DNN, le modèle d'enveloppe ou la méthode CA-PTN-FE peuvent offrir des perspectives intéressantes.

Chapitre IV

Modélisation de la croissance du silicium polycristallin

Ce chapitre est dédié à la modélisation de la croissance du silicium polycristallin par la méthode automate cellulaire. Les stratégies adoptées pour simuler le développement des interfaces facettées, la germination de nouveaux grains en relation de macle, ainsi que leur croissance sont successivement présentées. Les approches proposées sont de type cinétique et géométrique. Pour ces deux méthodes, des exemples sont présentés et les deux approches sont comparées. Les applications proposées servent à illustrer concrètement les diverses méthodologies développées et ne constituent pas des configurations propres à des observations expérimentales. Ces dernières sont présentées dans le chapitre suivant.

Sommaire

1	Interfaces facettées	91
1.1	Approche cinétique	91
1.2	Approche géométrique	98
2	Germination d'un grain en relation de macle	108
2.1	Germination par capture	108
2.2	Orientations cristallographiques du grain maclé	110
3	Croissance de deux grains en relation de macle	113
3.1	Approche cinétique	113
3.2	Approche géométrique	122
4	Conclusions	125

1 Interfaces facettées

Comme détaillé dans la section 3 du chapitre I, la formation et la croissance d'interfaces facettées sont fréquemment observées durant la solidification du silicium. Ces interfaces se forment au contact des parois du lingot, ou à l'intersection de l'interface solide/liquide et d'un joint de grains. Pour le silicium, les facettes n'étant que des plans cristallographiques $\{111\}$, ce sont sur ces interfaces que la germination de nouveaux grains en relation de macle est favorisée. Leur modélisation constitue donc la première étape pour simuler un évènement de maclage. Deux approches ont été développées, que nous appellerons l'approche cinétique et l'approche géométrique.

1.1 Approche cinétique

Dans le but de faire croître une interface facettée pour un grain de silicium donné, l'approche cinétique se base sur une surfusion critique et constante, notée ΔT_c^ϕ . Comme il sera détaillé, cette surfusion est fonction de l'orientation cristallographique ϕ du grain. Pour une cellule en croissance, lorsque sa surfusion locale, ΔT , devient supérieure à ΔT_c^ϕ , sa cinétique est alors seuillée. Ainsi, toutes les cellules pouvant croître, et dont la surfusion est localement supérieure à la surfusion critique ont une vitesse de croissance constante, dans les directions cristallographiques $\langle 10 \rangle$, qui n'est plus dépendante de la surfusion locale. La figure IV.1 montre la relation de dépendance entre la vitesse de croissance $v_{\langle 10 \rangle}$ et la surfusion ΔT pour une loi seuillée et une loi non seuillée.

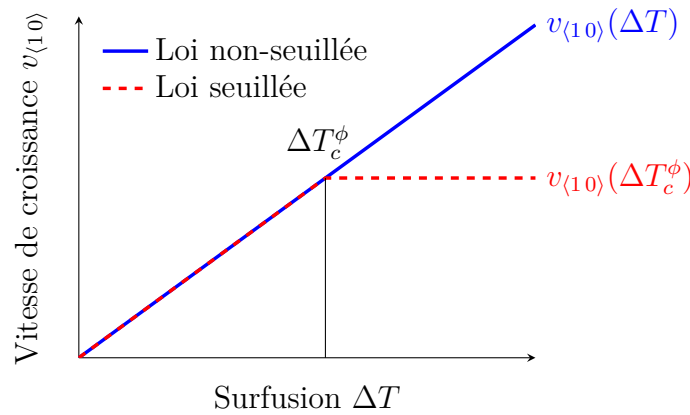


Figure IV.1 – Représentation schématisée d'une loi non seuillée (—), et d'une loi seuillée (---). Le basculement de cinétique s'effectue lorsque la surfusion locale d'une cellule atteint la surfusion critique ΔT_c^ϕ , sa vitesse $v_{\langle 10 \rangle}$ devient alors constante et n'est plus fonction de la surfusion.

1.1.1 Facette de bord

La méthode de seuillage est premièrement appliquée en deux dimensions pour un grain unique de silicium d'orientation cristallographique $\phi = 10^\circ$. Le but recherché est que ce grain développe une facette avec l'une des parois du domaine. Le domaine est rectangulaire de hauteur 6 mm et de largeur 4 mm. La solidification s'effectue de bas en haut dans une configuration de type Bridgman, c'est-à-dire pour un gradient de température unidirectionnel vertical, $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$, et une vitesse de refroidissement,

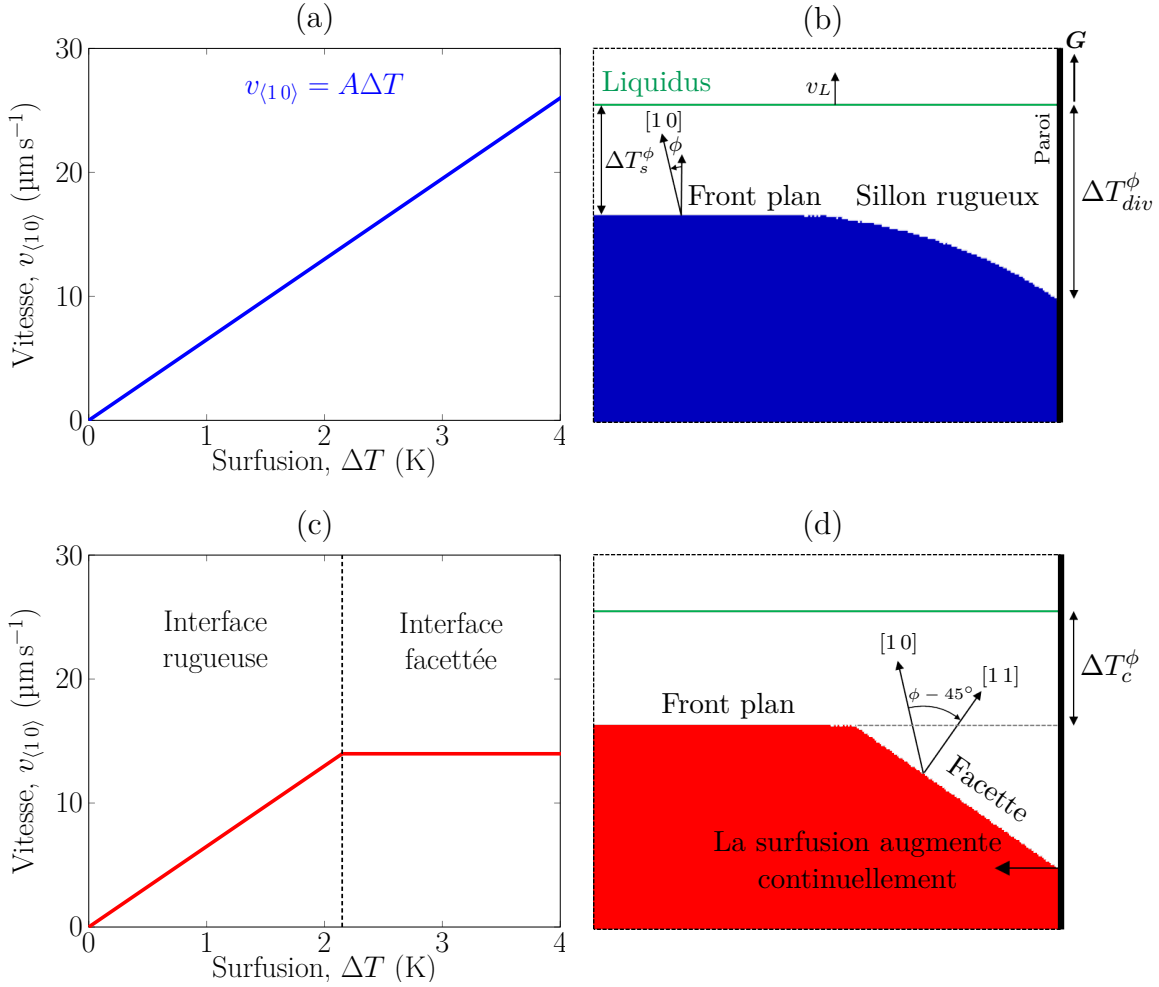


Figure IV.2 – Lois de cinétique de croissance non seuillée, seuillée et résultats associés pour un monograin d'orientation cristallographique $\phi = 10^\circ$. Les cellules ont une taille $l_{CA} = 10 \mu\text{m}$ et le pas de temps vaut $\Delta t = 0,1 \text{ s}$. (a) Loi non seuillée $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T$ où $A = 6,5 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$. (b) Résultats CA pour la loi non seuillée. L'interface solide/liquide consiste en un front plan en croissance à la surfusion stationnaire ΔT_s^ϕ et un sillon rugueux stabilisé à la surfusion divergente ΔT_{div}^ϕ en paroi droite de domaine. (c) Loi seuillée de surfusion critique ΔT_c^ϕ et (d) résultats associés, l'interface étant constituée d'un front plan en croissance à la surfusion stationnaire et d'une facette pour les cellules dont la surfusion est supérieure à ΔT_c^ϕ .

$\dot{T} = -0,016 \text{ K s}^{-1}$, constants. La vitesse du liquidus résultante, v_L , vaut $13,3 \mu\text{m s}^{-1}$. La cinétique appliquée aux directions $\langle 10 \rangle$ est une loi linéaire dépendante de la surfusion : $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T^n$ où $A = 6,5 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$ et $n = 1$. Cette loi correspond à la cinétique de croissance du silicium déterminée expérimentalement [Tan13b] pour les conditions de refroidissement ($G, \dot{T}$) données ci-dessus. Les cellules ont une taille $l_{CA} = 10 \mu\text{m}$ et l'évolution des enveloppes de croissance est faite périodiquement à chaque pas de temps macroscopique $\Delta t = 0,1 \text{ s}$. La loi cinétique non seuillée est donnée figure IV.2 (a) et les résultats associés pour le monograin sont représentés figure IV.2 (b) à un temps $t = 150 \text{ s}$. L'intégralité du domaine n'est pas représentée, un zoom étant effectué sur une zone d'intérêt spécifiée par le point inférieur gauche de coordonnées (2 mm ; 2 mm) et supérieur droit de coordonnées (4 mm ; 3,5 mm). Cette zone d'intérêt montre la morphologie du grain

au niveau de la paroi latérale droite du domaine. Ce grain présente donc un front de solidification plan et un sillon rugueux.

La surfusion stationnaire, ΔT_s^ϕ , d'un grain d'orientation cristallographique ϕ a été développée dans le chapitre précédent et est donnée par l'équation (III.19), page 59. Nous rappelons ici son expression, à savoir $\Delta T_s^\phi = \Delta T_s^{0^\circ} (\cos \phi)^{(-1/n)}$, où ici $\Delta T_s^{0^\circ} = v_L/A$, soit $\Delta T_s^{0^\circ} = 2,05$ K. Ainsi, pour $\theta = 10^\circ$ l'application numérique donne : $\Delta T_s^\phi = 2,08$ K.

Comme représentée figure IV.2 (b), la surfusion divergente notée ΔT_{div}^ϕ correspond à la surfusion à laquelle le sillon rugueux est stabilisé sur la paroi verticale du domaine. En d'autres termes, une fois cette surfusion atteinte, l'intégralité de l'interface solide/liquide est en régime stationnaire. Afin de déterminer une formulation analytique de ΔT_{div}^ϕ [Bus97], il convient de considérer les parcours infinitésimaux successifs δx_1 et δx_2 des branches primaires $[01]$ et secondaires $[10]$, respectivement, comme schématisé par la figure IV.3. On écrit :

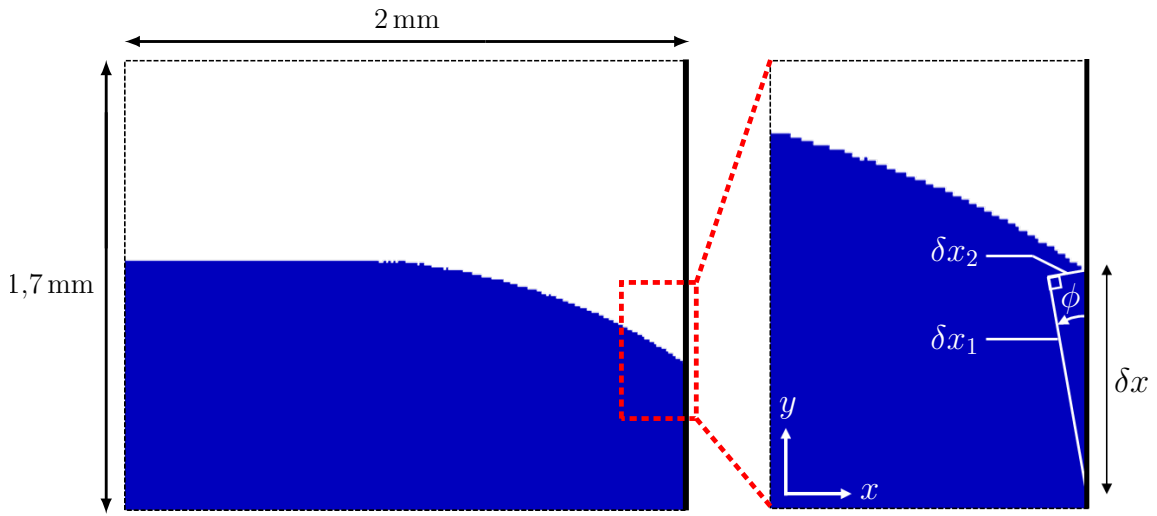


Figure IV.3 – (a) Croissance du monograin selon une loi de cinétique de croissance non seuillée. (b) Zoom sur le fond du sillon rugueux où sont représentés les embranchements primaires et secondaires infinitésimaux permettant de déterminer une formulation analytique de la surfusion divergente ΔT_{div}^ϕ .

$$\begin{aligned}
 v_{\langle 10 \rangle} &= \frac{\delta x_1 + \delta x_2}{\delta t} \\
 &= \frac{\delta x}{\delta t} \times (\cos \phi + |\sin \phi|) \\
 &= v_L \times (\cos \phi + |\sin \phi|)
 \end{aligned} \tag{IV.1}$$

et comme $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T$, en régime stationnaire on a :

$$A\Delta T_{div}^\phi = v_L \times (\cos \phi + |\sin \phi|)$$

d'où finalement :

$$\Delta T_{div}^\phi = \frac{v_L}{A} \times (\cos \phi + |\sin \phi|) \tag{IV.2}$$

L'application numérique donne ici $\Delta T_{div}^\phi = 2,37$ K.

La figure IV.2 (c) montre la loi seuillée utilisée. La cinétique de pointes dans les directions $\langle 10 \rangle$ des cellules dont la surfusion locale est supérieure à ΔT_c^ϕ est ainsi constante

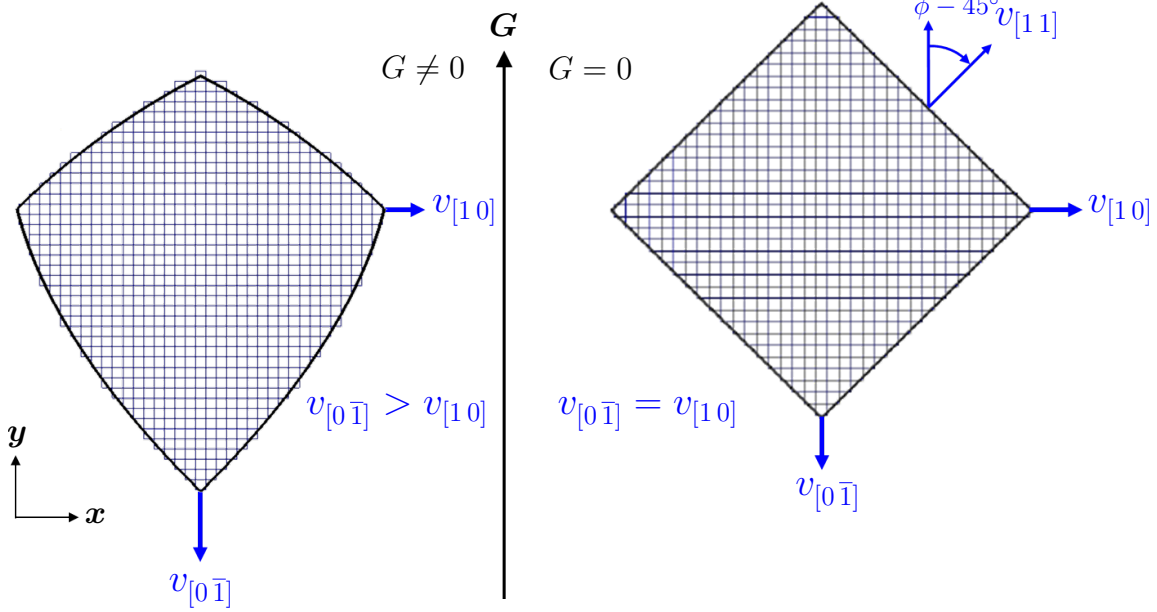


Figure IV.4 – Croissance d'un monograin equiaxe d'orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$ dans (a) un champ de température non uniforme ($G \neq 0$) et (b) un champ de température uniforme ($G = 0$). Pour une thermique non uniforme, la cinétique de pointe $v_{[0\bar{1}]}$ est plus importante que $v_{[10]}$, et résulte en une déformation temporelle de l'enveloppe externe du grain, l'éloignant d'une forme quadratique. Dans un champ de température uniforme, les quatre vitesses de pointes sont égales et permettent la croissance d'un grain dont l'enveloppe externe est quadratique. Figure adaptée de [Car12].

et égale à $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T_c^\phi$. La figure IV.2 (d) décrit les résultats associés. L'interface solide/liquide consiste donc en un front plan en croissance stationnaire et en une facette (11).

Afin d'expliquer les raisons de l'obtention de ces résultats, il convient de considérer deux grains : l'un se développant dans un champ de température non uniforme ($G \neq 0$, figure IV.4 (a)) et l'autre en croissance dans un champ de température uniforme ($G = 0$, figure IV.4 (b)). Le grain montré sur cette figure a pour orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$. Dans le cas non uniforme, la surfusion locale des cellules est plus importante dans la partie inférieure du domaine. De ce fait, la vitesse des pointes, par exemple, dans la direction $[0\bar{1}]$ est plus grande que celle dans la direction $[10]$, conduisant à la déformation de l'enveloppe du grain. Cependant, dans le cas où le gradient de température est nul, les vitesses aux quatre pointes de l'enveloppe sont égales. Ainsi, l'enveloppe adopte une forme quadratique qui est conservée continuellement pendant la croissance et ses diagonales sont alors orientées dans les directions $\langle 11 \rangle$ voulues. En seillant la cinétique de croissance des cellules au delà d'une surfusion critique, nous nous abrogeons donc de la relation de dépendance entre la vitesse et la surfusion. Tout se passe alors comme si les cellules voyaient un champ de température uniforme (ce qui, bien entendu, n'est pas le cas dans un gradient non nul). Cette approche permet alors le développement de la facette (11) observée figure IV.2 (d).

Nous détaillons finalement comment choisir la surfusion critique ΔT_c^ϕ . Ce choix est conditionné par deux grandeurs, à savoir la surfusion stationnaire ΔT_s^ϕ du grain et sa surfusion divergente ΔT_{div}^ϕ (représentées figure IV.2 (b)). La surfusion ΔT_c^ϕ doit naturellement être supérieure à ΔT_s^ϕ . En effet, dans le cas contraire, comme le processus de

seuillage conduit à une augmentation continue de la surfusion, le grain ne disposerait plus d'un front plan de solidification stabilisé en régime stationnaire à ΔT_s^ϕ . De plus, nous devons nécessairement avoir $\Delta T_c^\phi < \Delta T_{div}^\phi$, puisque dans le cas contraire, ΔT_c^ϕ ne serait jamais atteinte en fond de sillon et aucune facette $\{11\}$ ne pourrait alors se former. Numériquement, et comme montré figure IV.2 (c), nous choisissons ici $\Delta T_c^\phi = 2,15$ K. Cette valeur est prise légèrement supérieure à ΔT_s^ϕ et, de ce fait, l'interface solide/liquide est constituée d'un front plan et d'une facette $\{11\}$.

1.1.2 Sillon facetté/facetté

L'approche de seuillage est maintenant appliquée à deux grains en compétition dans le but de former un sillon facetté/facetté. Les conditions de refroidissement ($G, \dot{T}$), le coefficient cinétique A , la taille de cellule l_{CA} et le pas de temps Δt sont identiques à ceux utilisés précédemment pour l'étude de la facette de bord. Les grains g_1 et g_2 ont des orientations cristallographiques $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = -30^\circ$, respectivement. La figure IV.5 (a) montre la cinétique utilisée, indépendante de l'orientation cristallographique du grain. La figure IV.5 (b) représente la morphologie de l'interface solide/liquide pour cette loi non seuillée. L'interface présente donc deux fronts de solidification plans propres aux deux grains g_1 et g_2 et un sillon rugueux/rugueux. Les deux fronts plans sont en croissances stationnaires, aux surfusions stationnaires de g_1 et g_2 , à savoir $\Delta T_s^{\phi_1}$ et $\Delta T_s^{\phi_2}$, respectivement. Sur cette figure, est aussi représentée la surfusion divergente $\Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)}$ qui correspond à la surfusion à laquelle le sillon rugueux/rugueux est stabilisé. Afin d'en déterminer une formulation analytique, il convient de se référer à la figure III.4 (D), page 54, qui schématise une compétition de croissance divergente où $\phi_1 > 0^\circ$ et $\phi_2 < 0^\circ$, ce qui est également le cas figure IV.5 (b). En régime stationnaire, la vitesse en fond de sillon est donnée telle que $v_{\langle 10 \rangle} = A \Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)}$. En reprenant les équations (III.9a) et (III.9b), page 55, en régime stationnaire et pour une frontière entre grains d'orientation θ , on écrit :

$$A \Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)} = \frac{\delta x}{\delta t} \times [\cos(\phi_1 - \theta) + |\sin(\phi_1 - \theta)|] \quad (\text{IV.3})$$

$$= \frac{\delta x}{\delta t} \times [\cos(\phi_2 - \theta) + |\sin(\phi_2 - \theta)|] \quad (\text{IV.4})$$

soit :

$$A \Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)} = \frac{v_L}{\cos \theta} \times [\cos(\phi_1 - \theta) + |\sin(\phi_1 - \theta)|] \quad (\text{IV.5})$$

$$= \frac{v_L}{\cos \theta} \times [\cos(\phi_2 - \theta) + |\sin(\phi_2 - \theta)|] \quad (\text{IV.6})$$

et finalement :

$$\Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)} = \frac{v_L}{A \cos \theta} \times [\cos(\phi_1 - \theta) + |\sin(\phi_1 - \theta)|] \quad (\text{IV.7})$$

$$= \frac{v_L}{A \cos \theta} \times [\cos(\phi_2 - \theta) + |\sin(\phi_2 - \theta)|] \quad (\text{IV.8})$$

où θ est donné par l'équation (III.12). On obtient $\theta = -10^\circ$ et $\Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)} = 2,66$ K. De plus, on a $\Delta T_s^{\phi_1} = 2,08$ K et $\Delta T_s^{\phi_2} = 2,36$ K.

Comme montré figure IV.5 (c), deux lois de croissance seuillées propres aux grains g_1 et g_2 sont utilisées. La figure IV.5 (d) montre l'interface solide/liquide, et on voit donc à nouveau que le seuillage permet la formation des facettes $\{11\}$ souhaitées. Pour le grain g_1

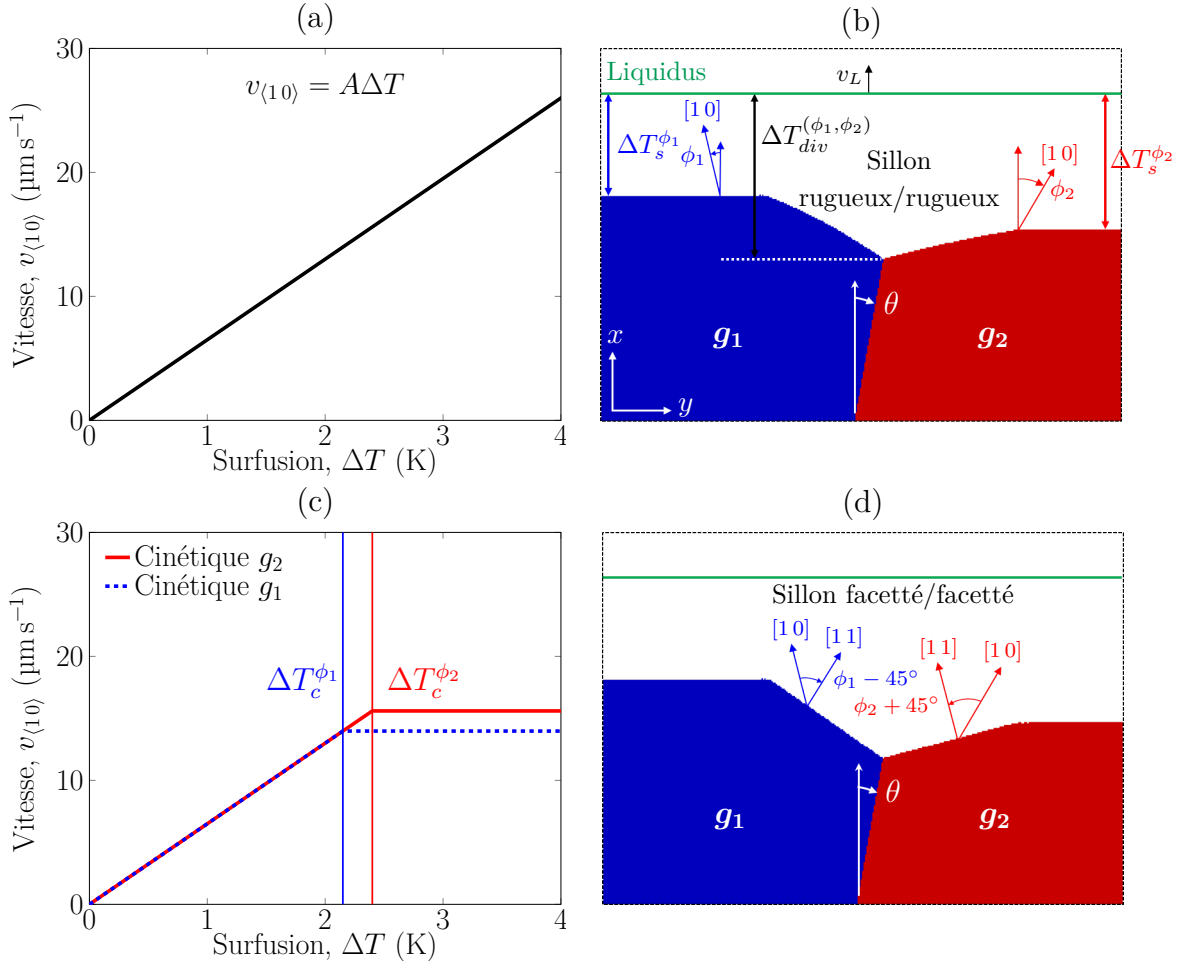


Figure IV.5 – Lois de cinétique de croissance non seuillée et seuillée et les résultats associés pour deux grain g_1 et g_2 d'orientations cristallographiques $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = -30^\circ$, respectivement, et $l_{CA} = 10\mu\text{m}$, $\Delta t = 0,1\text{ s}$. (a) Loi non seuillée $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T$ où $A = 6,5 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$. (b) Résultats CA pour la loi non seuillée. L'interface solide/liquide consiste en deux fronts plans en croissance aux surfusions stationnaires $\Delta T_s^{\phi_1}$ et $\Delta T_s^{\phi_2}$ et un sillon rugueux/rugueux stabilisé à la surfusion divergente $\Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)}$. (c) Lois seuillées de surfusions critiques $\Delta T_c^{\phi_1}$ et $\Delta T_c^{\phi_2}$ propres aux grains g_1 et g_2 , respectivement et (d) les résultats associés. L'interface est constituée de deux fronts plans en croissance stationnaire. Les cellules dont la surfusion locale est supérieure aux surfusions critiques permettent le développement du sillon facetté/facetté.

(respectivement g_2), nous devons avoir $\Delta T_c^{\phi_1} > \Delta T_s^{\phi_1}$ (respectivement $\Delta T_c^{\phi_2} > \Delta T_s^{\phi_2}$). Ici, et comme précédemment, les valeurs de $\Delta T_c^{\phi_1}$ et $\Delta T_c^{\phi_2}$ doivent être inférieures à $\Delta T_{div}^{(\phi_1, \phi_2)}$. Dans le cas contraire, les effets liés au seuillage ne seraient pas observés.

1.1.3 La limite de l'approche cinétique

Comme il a été montré ci-dessus, le seuillage de la cinétique de croissance permet effectivement le développement de facettes $\{11\}$. Cette méthode présente néanmoins une sérieuse limite. Nous allons voir, dans le chapitre V, que un grain donné peut potentiellement développer simultanément plusieurs facettes avec les parois du domaine. Cependant, la méthode de seuillage ne permet le développement que d'une unique facette.

Afin de mieux illustrer ces propos, nous proposons pour exemple la croissance, en deux dimensions, d'un monograin d'orientation cristallographique $\phi = 20^\circ$ dans un gradient de température vertical. La figure IV.6 schématise le résultat souhaité, c'est-à-dire, que le grain développe simultanément les facettes $(\bar{1}1)$ et (11) avec les parois gauche et droite du domaine, respectivement. Sur cette figure, les quatre facettes $\{11\}$ du grain sont représentées. Les normales aux facettes $(1\bar{1})$ et $(\bar{1}\bar{1})$ ne pointent pas dans la direction du gradient de température, et il n'est pas attendu que celles-ci se développent durant la croissance du grain.

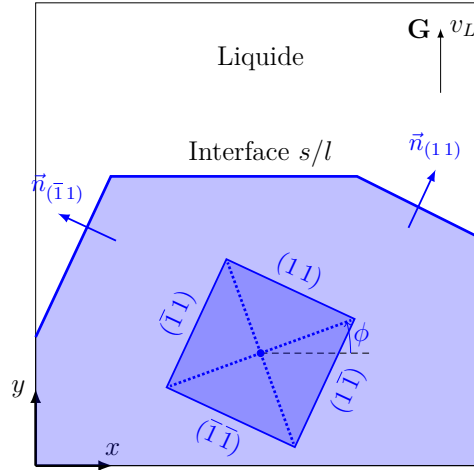


Figure IV.6 – Représentation schématique d'un monograin d'orientation cristallographique $\phi = 20^\circ$ et développant simultanément une facette $(\bar{1}1)$ et (11) avec les parois gauche et droite du domaine, respectivement.

Le calcul est mené pour des conditions de refroidissement identiques à celles utilisées précédemment (figure IV.2 et figure IV.5). Aussi, les paramètres numériques et la taille du domaine ($6\text{ mm} \times 4\text{ mm}$) sont les mêmes. Le grain n'occupe initialement pas toute la largeur du domaine. Sa surface initiale est définie par un point inférieur gauche de coordonnées $(1,5\text{ mm}, 0\text{ mm})$, et supérieur droit de coordonnées $(2,5\text{ mm}, l_{CA})$. Cela permet, au début du calcul, de visualiser certains des plans $\{11\}$ du grain. La température au temps $t = 0\text{ s}$ et à la position verticale $y = 0$ est fixée à la surfusion stationnaire du grain, étant égale à $\Delta T_s^\phi = 2,17\text{ K}$. La surfusion critique de seuillage est prise telle que légèrement supérieure à ΔT_s^ϕ , soit $\Delta T_c^\phi = 2,20\text{ K}$.

La figure IV.7 montre les résultats associés, et pour chaque incrément, la ligne verte représente l'isovaleur correspondant à la surfusion critique. Toutes les cellules situées en dessous de cette ligne ont donc une cinétique de croissance seuillée et égale à $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T_c^\phi$. À $t = 35\text{ s}$, la figure IV.7 montre donc, initialement, la présence de trois facettes $\{11\}$ du grain s'étant formées grâce au seuillage. Durant la solidification, deux de ces facettes disparaissent finalement en interagissant avec les parois du domaine, à savoir les facettes $(\bar{1}1)$ et $(1\bar{1})$. Ce phénomène n'est pas lié à l'utilisation d'une loi de seuillage, mais résulte directement de l'orientation cristallographique du grain. Une unique orientation de facette devient alors favorisée, à savoir la facette (11) , comme le montre la figure IV.7 au temps $t = 320\text{ s}$. La configuration souhaitée, figure IV.6, est néanmoins obtenue figure IV.7 aux temps $t = 180\text{ s}$ et $t = 250\text{ s}$. Cependant, entre ces deux temps, la facette $(\bar{1}1)$ se referme au contact de la frontière gauche. Autrement dit, la surfusion au fond de cette facette décroît temporellement pour finalement atteindre la surfusion stationnaire du front plan

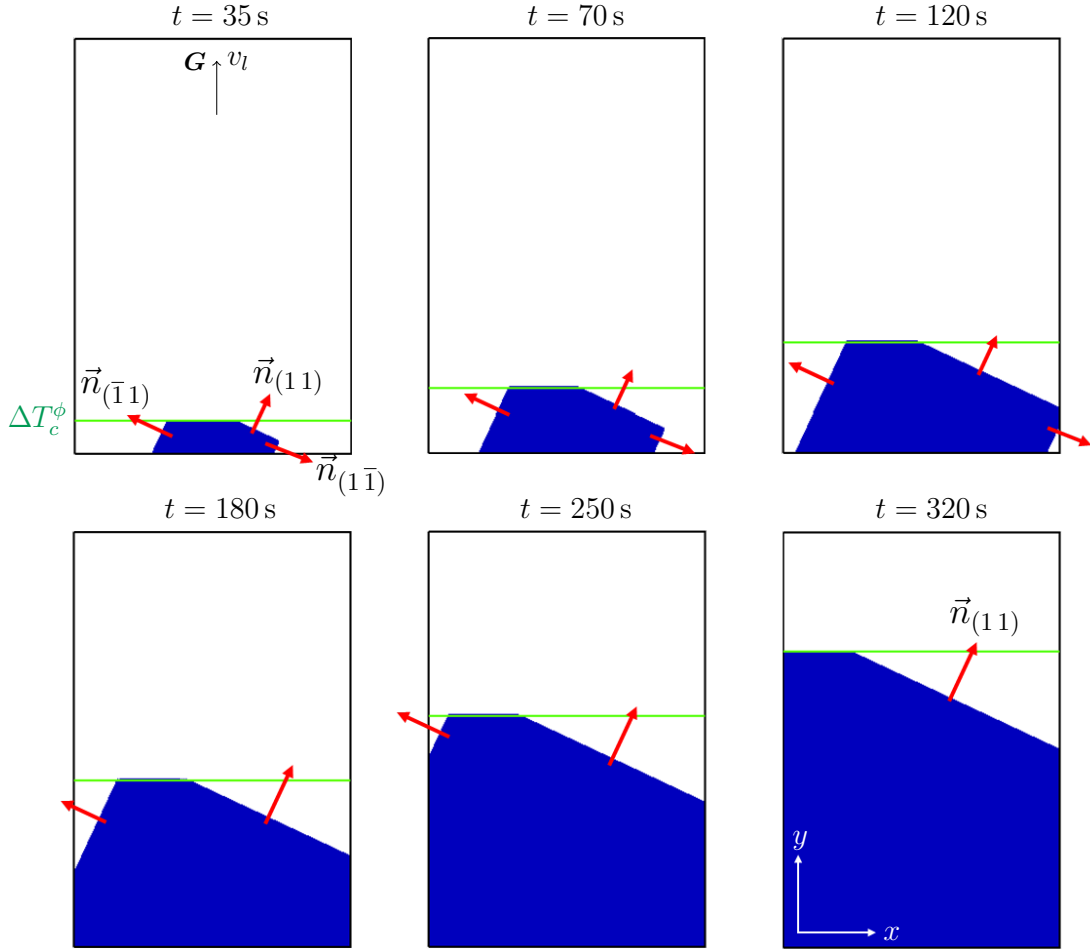


Figure IV.7 – Limite de l’approche cinétique pour la croissance des facettes. Croissance d’un monograin d’orientation cristallographique $\phi = 20^\circ$ selon une loi de croissance seuillée dont la surfusion critique est représentée par les isovaleurs vertes. Pour chaque incrément de temps, les cellules en croissance se situant en dessous de l’isovaleur ont une surfusion locale supérieure à la surfusion critique et donc une cinétique seuillée. Entre les temps $t = 35$ s et $t = 120$ s, trois facettes sont observées. Au temps $t = 180$ s la facette $(1\bar{1})$ a disparu. Entre les temps $t = 180$ s et $t = 250$ s la facette $(\bar{1}1)$ se referme et n’est plus visible au temps $t = 320$ s où seul la facette (11) est favorisée et continue de se développer.

de croissance. Cependant, les observations expérimentales montrent que la croissance d’une facette $\{11\}$ s’accompagne toujours d’une augmentation locale de la surfusion [Sta17; Rib17] en fond de facette. Pour retrouver ces observations, une approche dénotée *géométrie* a été développée.

1.2 Approche géométrique

Cette approche se base sur une description géométrique des facettes qui sont décrites, pour chaque grain, par leur équation Cartésienne de plan $\{11\}$: $a_{\{11\}}x + b_{\{11\}}y + c = 0$. Un grain possède un jeu de 4 équations qui définissent l’ensemble des plans cristallographiques $\{11\}$ du grain. Cependant, ces plans $\{11\}$ ne sont pas initialement activés et ne peuvent être représentatifs d’une croissance facettée. La première étape de l’approche géométrique consiste donc en l’activation d’une facette $\{11\}$ qui est régie par des conditions thermiques

et géométriques locales. Par souci de simplicité, les algorithmes caractéristiques de l'approche géométrique sont schématisés en deux dimensions, uniquement. De ce fait, les notations suivantes correspondent à des configurations 2D, mais peuvent naturellement être étendues en 3D.

1.2.1 Activation des facettes

À chaque équation de plan est associée une surfusion d'activation $\Delta T_{\{11\}}$ qui est choisie aléatoirement selon une loi gaussienne de valeur moyenne $\Delta T_{\{11\}}^\mu$ et d'écart type $\Delta T_{\{11\}}^\sigma$. Les surfusions d'activation sont tirées grâce à la méthode de Box-Muller [Box58] introduite dans le chapitre II :

$$\Delta T_{\{11\}} = \sqrt{-2 \ln u_1} \cos(2\pi u_2) \Delta T_{\{11\}}^\sigma + \Delta T_{\{11\}}^\mu \quad (\text{IV.9})$$

où u_1 et u_2 sont deux réels aléatoires compris entre 0 et 1. Chaque grain possède donc une liste de 4 surfusions d'activation couvrant l'ensemble des plans $\{11\}$. Pour une facette $\{11\}$ donnée, celle-ci peut être activée si la surfusion locale, ΔT , d'une cellule liquide capturée par un grain voisin est inférieure à la surfusion d'activation $\Delta T_{\{11\}}$ correspondante. Le choix et l'influence de $\Delta T_{\{11\}}^\mu$ et $\Delta T_{\{11\}}^\sigma$ sont détaillés dans le chapitre V. Néanmoins, il reste à identifier, pour une facette $\{11\}$ activée thermiquement, que celle-ci puisse effectivement se développer compte tenu des conditions de refroidissement. Cette étape est dénommée identification.

1.2.2 Identification des facettes

L'identification des facettes $\{11\}$, illustrée figure IV.8, consiste à déterminer quelle facette $\{11\}$ d'un grain est favorisée par rapport à une localisation donnée du domaine de simulation. Par exemple, pour un domaine rectangulaire 2D et un grain donné, la facette favorisée pouvant se développer avec la paroi latérale gauche du domaine n'est pas nécessairement la même que celle pouvant croître avec la paroi latérale droite (figure IV.6). De plus, afin de potentiellement former un sillon facetté/facetté, il est nécessaire de déterminer au préalable quelles sont les facettes $\{11\}$ favorisées au joint de grains, pour deux grains donnés en compétition de croissance.

Les figures IV.8 (a) et (b) montrent donc premièrement les identifications de facettes de bord d'un monograin d'orientation cristallographique $\phi = 20^\circ$. On considère une cellule liquide μ_i de centre C_{μ_i} et capturée par une enveloppe de croissance associée à une cellule voisine ν . Le modèle automate cellulaire utilisé dans ce travail se base sur un environnement de Moore. C'est-à-dire que le voisinage d'une cellule donnée est constitué d'un nombre de voisins $N = 3^d - 1$ où d est la dimension spatiale du système. Il est donc trivial de différencier les cellules présentes dans un sillon au joint de grains de celles appartenant à une frontière de domaine. Pour ces dernières, le nombre de voisins N est inférieur à $3^d - 1$ car les voisins situés à l'extérieur du domaine n'existent pas. À partir de là, il est possible de localiser les cellules dans l'espace et de les différencier.

Pour le cas montré en figure IV.8 (a), le gradient de température G étant vertical et uni-directionnel, il n'est pas utile de chercher à développer le plan $(\bar{1}\bar{1})$ (respectivement $(1\bar{1})$) avec la frontière gauche (respectivement droite) du domaine. Il est plus naturellement attendu que ce soit les plans $(\bar{1}1)$ et (11) qui se forment avec les frontières gauche et droite, respectivement. Ainsi, figure IV.8 (b), on a pour la cellule liquide μ_1 un nombre de voisins $N < 3^d - 1$. De plus, on vérifie qu'elle appartient à la frontière de gauche (localisée

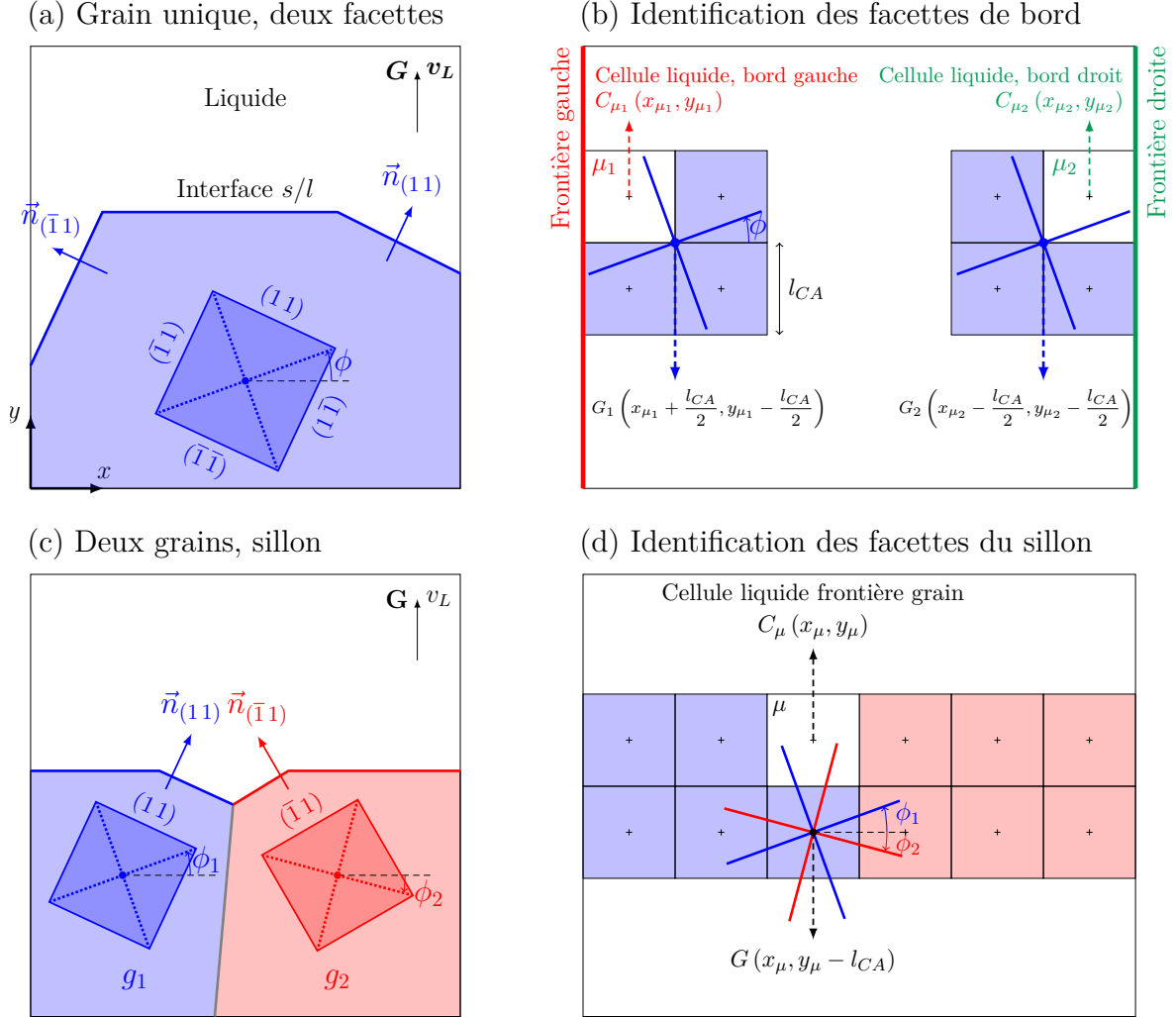


Figure IV.8 – Identification, en deux dimensions, des plans $\{11\}$ pouvant se former avec les parois du domaine, ou à l’intersection entre l’interface solide/liquide et un joint de grains. (a) Représentation d’un grain unique en croissance et développant deux facettes $\{11\}$ au contact des parois du domaine. (b) Identification de ces facettes pour une cellule liquide μ_1 appartenant à la frontière de gauche, et μ_2 appartenant à la frontière de droite. L’identification est effectuée en calculant les signes des coordonnées de μ_1 et μ_2 dans des repères dont l’origine dépend de la position spatiale de μ_1 et μ_2 . (c) Représentation de deux grains g_1 et g_2 en compétition de croissance et développant un sillon facetté/facetté. (d) Identification des deux plans $\{11\}$ d’intérêt. Les signes des coordonnées de la cellule μ sont calculés dans deux repères, de même centre G et d’orientations correspondant aux orientations cristallographiques de g_1 et g_2 , à savoir ϕ_1 et ϕ_2 , respectivement.

à la position $x = 0$) si $x_{\mu_1} < l_{CA}$. Dans le cas contraire, et toujours pour $N < d^3 - 1$, alors la cellule appartient à la frontière de droite (*i.e.* μ_2). L'orientation $\{11\}$ de la facette recherchée est déduite en calculant les signes des coordonnées $(\tilde{x}_{\mu_1}, \tilde{y}_{\mu_1})$ dans un repère associé à l'orientation cristallographique ϕ et centré en $G_1 (x_{\mu_1} + l_{CA}/2, y_{\mu_1} - l_{CA}/2)$ (en prenant pour exemple la frontière de gauche figure IV.8 (b)). Cela donne $\tilde{x}_{\mu_1} < 0$ et $\tilde{y}_{\mu_1} > 0$ correspondant ainsi aux coefficients du vecteur normal à la facette $\{11\}$ recherchée : $a_{\{11\}} = -1$ et $b_{\{11\}} = 1$. Pour la frontière de droite, un traitement identique est effectué en considérant un repère centré en $G_2 (x_{\mu_2} - l_{CA}/2, y_{\mu_2} - l_{CA}/2)$ et on obtient $\tilde{x}_{\mu_2} > 0$ et $\tilde{y}_{\mu_2} > 0$, soit $a_{\{11\}} = 1$ et $b_{\{11\}} = 1$.

Comme montré sur les figures IV.8 (c) et (d), une approche similaire est utilisée pour identifier les plans pouvant potentiellement se former au voisinage d'un sillon de joint de grains. Une cellule liquide μ présente localement dans un sillon de joints de grains est premièrement repérée, vérifiant $N = d^3 - 1$. Cette cellule doit aussi se trouver à un joint de grain, c'est-à-dire avoir dans son voisinage au moins deux grains différents¹. L'identification (figure IV.8 (d)) des plans $\{11\}$ est effectuée en considérant deux repères, de même centre G de coordonnées $(x_\mu, y_\mu - l_{CA})$. Les orientations des repères correspondent aux orientations cristallographiques des grains g_1 et g_2 , définies par ϕ_1 et ϕ_2 , respectivement. Les normales aux plans $\{11\}$ recherchées des grains g_1 et g_2 sont définies par les coefficients $a_{\{11\}}^{g_1}, b_{\{11\}}^{g_1}, a_{\{11\}}^{g_2}$ et $b_{\{11\}}^{g_2}$, respectivement. Les valeurs de ces coefficients sont déterminées en calculant les signes des coordonnées de μ dans les deux repères, à savoir $(\tilde{x}_{\mu_1}, \tilde{y}_{\mu_1})$ et $(\tilde{x}_{\mu_2}, \tilde{y}_{\mu_2})$. Cela donne pour g_1 : $\tilde{x}_{\mu_1} > 0, \tilde{y}_{\mu_1} > 0$ soit $a_{\{11\}}^{g_1} = 1, b_{\{11\}}^{g_1} = 1$, et pour g_2 : $\tilde{x}_{\mu_2} < 0, \tilde{y}_{\mu_2} > 0$ soit $a_{\{11\}}^{g_2} = -1, b_{\{11\}}^{g_2} = 1$. Les plans (11) et $(\bar{1}1)$ sont identifiés pour g_1 et g_2 respectivement. Notons que cette méthode d'identification n'est valable que pour un gradient de température et des parois de domaine verticales. Nous reviendrons sur ce point dans la conclusion générale du manuscrit.

Que ce soit pour une facette de bord, ou à un joint de grains, le plan identifié est activé uniquement si la surfusion locale de la cellule utilisée est inférieure à la surfusion d'activation du plan correspondant. Si cela est effectivement vérifié, alors la facette $\{11\}$ correspondante est caractérisée par son équation Cartésienne : $a_{\{11\}}x + b_{\{11\}}y + c = 0$ où $c = -a_{\{11\}}x_\mu - b_{\{11\}}y_\mu$.

1.2.3 Croissance des facettes

Afin de permettre la croissance d'une facette $\{11\}$ activée, l'algorithme de capture standard [Rap93 ; Car12] (figure II.8, page 38) est modifié. La capture d'une cellule liquide μ est maintenant conditionnée par la position de son centre C_μ , décrit par ses coordonnées (x_μ, y_μ) dans le repère du laboratoire. Si la cellule μ a dans son voisinage une enveloppe de croissance appartenant à une cellule solide ν et dont le grain dispose d'une facette en croissance définie par une équation de plan $\{11\}$, de coefficients $a_{\{11\}}, b_{\{11\}}$, alors la position de C_μ est évaluée par rapport à la facette. Plus précisément, si la cellule est spatialement située au dessus de la facette, c'est-à-dire : $a_{\{11\}}x_\mu + b_{\{11\}}y_\mu + c > 0$ alors la capture de μ par ν est inhibée. La cellule μ reste donc dans un état liquide ($I_\mu = 0$) bien que l'enveloppe de croissance associée à la cellule ν ait effectivement englobé son centre. Pour finalement permettre la capture, le plan $\{11\}$ propre au grain de la cellule ν est déplacé, pendant un pas de temps Δt , d'une distance $d_{\{11\}} = v_{\{11\}}^c \Delta t$. La vitesse

1. Numériquement, les numéros de grains sont comparés, chaque grain ayant un numéro unique pour toutes les partitions.

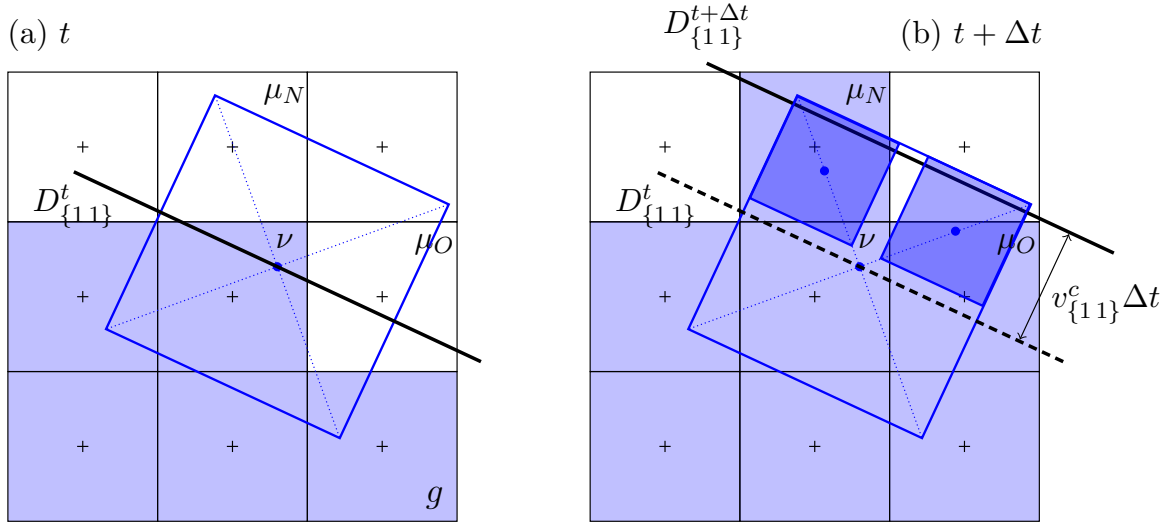


Figure IV.9 – Représentation schématisée, en deux dimensions, de l'algorithme de capture conditionnée. (a) Une enveloppe de croissance au temps t est associée à la cellule ν appartenant au grain g . Le plan dynamique d'intérêt est défini par $D_{\{11\}}^t$. L'enveloppe a englobé le centre des cellules liquides μ_N (Nord) et μ_O (Ouest), néanmoins, ces dernières restent dans un état liquide car les centres respectifs se trouvent spatialement au-dessus de $D_{\{11\}}^t$. (b) Les captures des cellules μ_N et μ_O par l'enveloppe appartenant à la cellule ν sont permises car les centres sont maintenant en dessous du plan $D_{\{11\}}^t$. Pendant un pas de temps numérique Δt , le plan a été déplacé dans l'espace d'une distance $d_{\{11\}} = v_{\{11\}}^c \Delta t$, où $v_{\{11\}}^c$ est la vitesse de croissance des facettes $\{11\}$.

des facettes $v_{\{11\}}^c$ est constante et définie par l'utilisateur. C'est un paramètre numérique du modèle dont l'influence sera précisée dans le chapitre V. Ainsi, la capture de μ par ν est retardée jusqu'à l'instant t où $a_{\{11\}}x_\mu + b_{\{11\}}y_\mu + c < 0$, autrement dit lorsque le centre C_μ se place en dessous du plan $\{11\}$ considéré. L'algorithme de capture est donc dénoté *conditionnée* et est schématisé en 2D par la figure IV.9. Par la suite l'algorithme de capture *conditionnée* sera opposé à l'algorithme de capture dit *standard*.

1.2.4 Croissance d'un grain équiaxe

Afin de mieux illustrer l'algorithme décrit ci-dessus, la figure IV.10 compare la croissance 2D d'un grain équiaxe selon la capture standard et la capture conditionnée. Le but de cet exemple est de permettre au lecteur de mieux apprécier le fonctionnement et les effets de la capture conditionnée. La cinétique de croissance des pointes dans les directions $\langle 10 \rangle$ est donnée par une loi linéaire, $v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T$, où $A = 8 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [Rib17]. Le domaine de simulation consiste en un carré de côté $l = 2 \text{ mm}$. L'origine O du repère associé au domaine a pour coordonnées $(x_O = 0, y_O = 0)$ et de ce fait, tous les points P appartenant au domaine ont des coordonnées positives (x_P, y_P) telles que $0 \leq x_P \leq l$ et $0 \leq y_P \leq l$. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 20 \mu\text{m}$ et le pas de temps Δt est égal à $0,5 \text{ s}$. Le champ de température est imposé sur tout le domaine et le refroidissement s'effectue dans la direction $\mathbf{y}$ verticale. L'évolution de la température en tout point P s'exprime donc sous la forme :

$$T(y_P, t) = T_0 + Gy_P + \dot{T}t \quad (\text{IV.10})$$

où $T_0 = T(t = 0 \text{ s})$ est la température à l'origine du domaine et au temps initial. Le grain germe au centre du domaine et a pour orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$.

Les figures IV.10 (a) et (b) montrent les résultats obtenus pour $G = 0 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = 0 \text{ K s}^{-1}$. La température initiale T_0 au temps $t = 0 \text{ s}$ est égale à 1685 K. La température de fusion du silicium étant égale à 1687 K [RSC19], cela correspond à une surfusion $\Delta T = 2 \text{ K}$. Selon la loi de cinétique utilisée, ces paramètres conduisent à un champ de température stationnaire uniforme où la cinétique de pointe dans les directions $\langle 10 \rangle$ est constante et vaut $v_{\langle 10 \rangle} = 16 \mu\text{m s}^{-1}$ et à une cinétique de croissance dans les directions $\langle 11 \rangle$ $v_{\langle 11 \rangle} = v_{\langle 10 \rangle} / \sqrt{2} = 11,3 \mu\text{m s}^{-1}$. Les plans $\{11\}$ des octaèdres en croissance se développent donc, en tout point du domaine, à une vitesse $v_{\{11\}} = 11,3 \mu\text{m s}^{-1}$. Les équations cartésiennes des 4 plans $\{11\}$ sont initialement attribuées au grain après sa germination et sont déterminées en utilisant le centre de germination, c'est-à-dire le point P de coordonnées $P(0,01; 0,01)$. Pour cet exemple précis, aucune activation selon une loi normale de surfusions d'activation n'est effectuée.

La figure IV.10 (a) donne les morphologies du grain selon l'algorithme standard (en bleu) et les morphologies selon la capture conditionnée (en rouge) définie par une vitesse des plans virtuels $v_{\{11\}}^c = 10 \mu\text{m s}^{-1}$. Les enveloppes externes sont représentées aux différents temps t macroscopiques où $t \in \{100, 200, 300, 400, 500\} \text{ s}$. Comme le champ de température est uniforme et stationnaire ($G = 0 \text{ K m}^{-1}$, $\dot{T} = 0 \text{ K s}^{-1}$), l'algorithme de capture standard conduit naturellement à des croissances de quadrilatères. Concernant la capture conditionnée, la vitesse $v_{\{11\}}^c$ est choisie telle qu'inférieure à $v_{\{11\}}$ qui, on le rappelle, est définie par la loi de croissance en $A\Delta T$ donnée précédemment. Ainsi, comme $v_{\{11\}}^c < v_{\{11\}}$, l'évolution de l'enveloppe externe du grain est contrainte en tout point du domaine par la croissance des plans $\{11\}$ virtuels. Plus précisément, cela signifie que la capture d'une cellule liquide donnée sera toujours retardée et conditionnée par l'avancée des plans virtuels.

La figure IV.10 (b) montre les morphologies du grain à un même temps $t = 500 \text{ s}$, pour l'algorithme de capture standard (en bleu) et l'algorithme de capture conditionnée (en rouge). La capture conditionnée est ici étudiée pour différentes valeurs de $v_{\{11\}}^c$ représentées par les numéros 1, 2, 3 et 4. Pour les vitesses 1, 2 et 3, la valeur de $v_{\{11\}}^c$ est inférieure à $v_{\{11\}}$. Ainsi, et comme représenté sur la figure IV.10 (a), la croissance du grain est entièrement conditionnée par l'avancée des plans $\{11\}$, ces derniers se déplaçant alors moins vite que les plans $\{11\}$ effectifs du grain. Pour le cas 4, on a $v_{\{11\}}^c > v_{\{11\}}$, et l'enveloppe externe du grain pour la capture conditionnée correspond à celle obtenue pour l'algorithme de croissance standard. Comme les plans $\{11\}$ virtuels se déplacent plus vite, aucune capture conditionnée n'est possible et les résultats obtenus avec les deux algorithmes sont identiques.

Dans le but d'observer la transition entre une interface rugueuse et une interface facettée, il est nécessaire de considérer un champ de température non uniforme, c'est-à-dire $G \neq 0 \text{ K m}^{-1}$. Les figures IV.10 (c) et (d) montrent les morphologies du grain pour des algorithmes de capture standard et conditionnée (c) à différents temps macroscopiques et (d) à un temps donné pour différentes valeurs de $v_{\{11\}}^c$. Le gradient de température et la vitesse de refroidissement sont constants : $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = -0,016 \text{ K s}^{-1}$. Le coefficient cinétique A est inchangé. La température initiale à l'origine du domaine, O , vaut 1673 K de manière à avoir, comme pour le cas précédent, une surfusion ΔT initiale de 2 K au centre du domaine lorsque le grain germe. Sur la figure IV.10 (c), les enveloppes externes des grains sont représentées aux temps $t \in \{40, 80, 120, 160, 200\} \text{ s}$. Le pas de temps Δt est lui aussi inchangé. L'algorithme de capture conditionnée est défini par $v_{\{11\}}^c = 11,3 \mu\text{m s}^{-1}$.

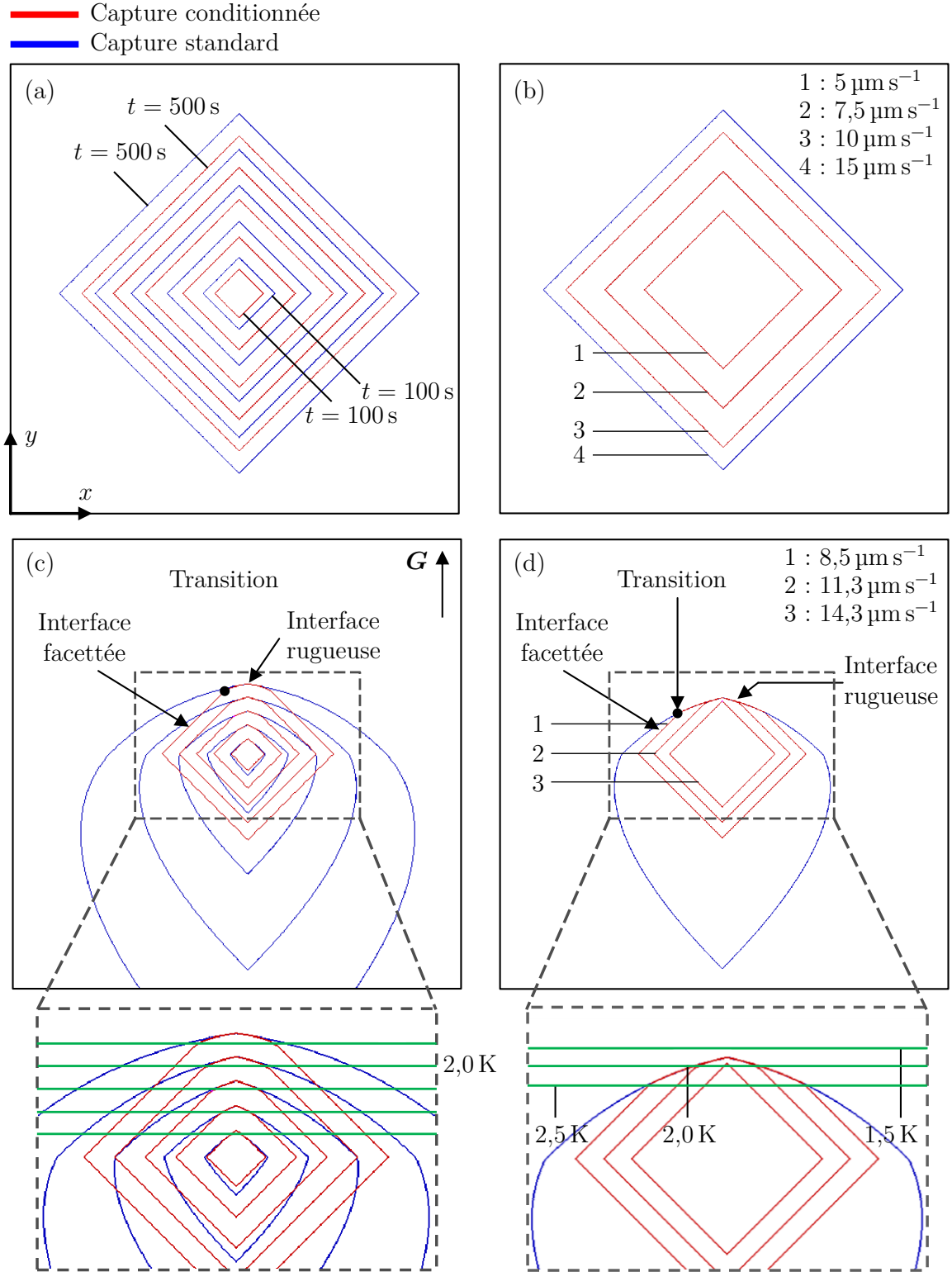


Figure IV.10 – Résultats de calculs montrant la croissance d'un monograin équiaxe d'orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$ selon l'algorithme de capture standard et conditionnée dans un champ de température uniforme et stationnaire ($G = 0 \text{ K m}^{-1}$, $\dot{T} = 0 \text{ K s}^{-1}$) (a) aux temps $t \in \{100, 200, 300, 400, 500\} \text{ s}$ et pour une vitesse de croissance des plans $\{11\}$ virtuels $v_{\{11\}}^c = 10 \mu\text{m s}^{-1}$ et (b) à un temps $t = 500 \text{ s}$ fixé et différentes valeurs de $v_{\{11\}}^c$. Croissance du monograin dans un champ de température non uniforme et non stationnaire ($G = 1200 \text{ K m}^{-1}$, $\dot{T} = -0,016 \text{ K s}^{-1}$) (c) aux temps $t \in \{40, 80, 120, 160, 200\} \text{ s}$ et pour une vitesse $v_{\{11\}}^c = 11,3 \mu\text{m s}^{-1}$, (d) temps $t = 200 \text{ s}$ fixé et différentes valeurs de $v_{\{11\}}^c$.

Cette valeur n'est pas anodine. Elle correspond à une vitesse virtuelle dans les directions $\langle 10 \rangle$ de $11,3 \times \sqrt{2}$, soit $16 \mu\text{m s}^{-1}$, et cela correspondant à une surfusion $\Delta T = 2 \text{ K}$, comme donné par la loi de cinétique ($v_{\langle 10 \rangle} = A\Delta T$).

L'application d'un champ de température non uniforme implique que la cinétique d'une cellule en croissance est fonction de la surfusion locale, comme l'indique la loi de cinétique. De ce fait, les cellules dont la surfusion locale est supérieure à 2 K auront des plans $\{11\}$ dont la cinétique de croissance $v_{\{11\}}$ sera supérieure à $v_{\{11\}}^c$. Pour ces cellules, les enveloppes de croissances associées seront donc localement contraintes par l'avancée des plans $\{11\}$ virtuels. Ainsi, la condition $v_{\{11\}} > v_{\{11\}}^c$ définit la transition rugueuse/facettée. Sur le zoom présenté en dessous de la figure IV.10 (c), les lignes vertes représentent les isovaleurs correspondant à $\Delta T = 2 \text{ K}$ pour chaque temps t . Pour un temps t donné, la croissance des enveloppes propres aux cellules situées en dessous de l'isovaleur ont une surfusion locale supérieure à 2 K , et donc l'inégalité $v_{\{11\}} > v_{\{11\}}^c$ étant respectée, la morphologie du grain est facettée. Pour les cellules situées au dessus de l'isovaleur, on a $v_{\{11\}} < v_{\{11\}}^c$ et la morphologie est donc rugueuse.

La figure IV.10 (d) montre la morphologie du grain à un temps fixé, $t = 200 \text{ s}$, résultante de captures standard (bleu) et conditionnée (rouge) et pour différentes de valeur $v_{\{11\}}^c = 8,5 \mu\text{m s}^{-1}$, $11,3 \mu\text{m s}^{-1}$, et $14,1 \mu\text{m s}^{-1}$, représentées par les chiffres 1, 2 et 3, respectivement. De plus, ces valeurs de vitesse correspondent à des surfusions égales à $\Delta T = 1,5 \text{ K}$, 2 K et $2,5 \text{ K}$, respectivement. Comme détaillé ci-dessus, la croissance des cellules dont la surfusion locale est supérieure à $1,5 \text{ K}$, 2 K ou $2,5 \text{ K}$ résulte en une enveloppe externe à morphologie facettée, rugueuse dans le cas contraire.

Finalement précisons que la croissance des plans $\{11\}$ virtuels est fixée par l'utilisateur et constante lors d'une simulation. Cette croissance est indépendante de la température et donc non influencée par le champ de température appliqué. Pour un grain donné, le développement d'interfaces facettées est donc simplement piloté par la valeur de $v_{\{11\}}^c$.

Le déplacement des plans $\{11\}$ dans le temps et l'espace est, pour le cas du monograin équiaxe décrit ci-dessus, schématisé par la figure IV.11. Sur la figure, les positions des plans $\{11\}$ virtuels du grain sont représentées pour différents temps t . Ce n'est pas l'enveloppe externe résultante du modèle CA qui est représentée ici. À un temps donné, la morphologie de cette enveloppe dépend de la position des plans virtuels. La grille automate cellulaire est schématisée. Les cellules liquides se trouvant dans les zones grisées peuvent être capturées par des enveloppes de croissances appartenant à des cellules voisines solides. La capture des cellules liquides se trouvant en dehors de cette zone est ainsi retardée, ces dernières se trouvant, pour un temps t donné, au dessus des plans virtuels $\{11\}$. Ainsi, sur la figure IV.10 (c) et (d), bien que les plans $\{11\}$ virtuels englobent des cellules liquides au dessus de l'interface rugueuse, elles ne peuvent être capturées, les cellules concernées n'ayant pas de voisine en croissance.

1.2.5 Facettes de bord

L'objectif ici est de reproduire, en utilisant l'approche géométrique, le calcul présenté figure IV.7 où nous cherchions à développer deux facettes simultanément avec les parois du domaine de simulation. Comme écrit précédemment, l'approche cinétique limite la croissance d'une facette unique. Nous souhaitons donc ici mettre en avant les avantages de l'approche géométrique vis-à-vis de l'approche cinétique. La vitesse de croissance, les conditions de refroidissement et paramètres numériques sont les mêmes que pour le calcul effectué avec l'approche cinétique. Les paramètres propres à l'approche géométrique sont la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes ($\Delta T_{\{11\}}^\mu$ et $\Delta T_{\{11\}}^\sigma$) et la

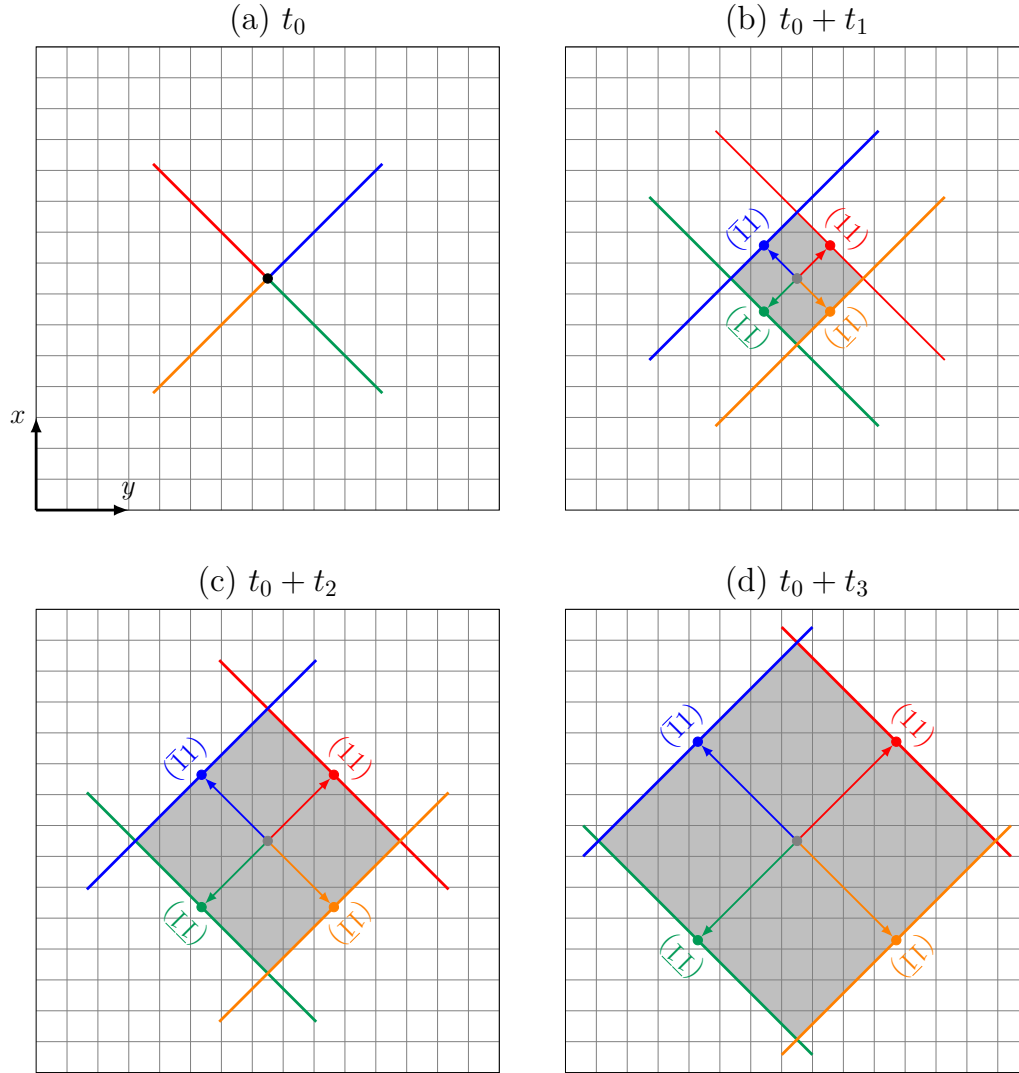


Figure IV.11 – Évolution temporelle et spatiale en 2D des plans $\{11\}$ virtuels d'un monograin équiaxe d'orientation cristallographique $\phi = 0^\circ$. (a) Les 4 plans $\{11\}$ virtuels sont initialisés au temps initial t_0 au centre du domaine de simulation, où le grain germe. Mise à jour de la position des plans aux temps (b) $t_0 + t_1$, (c) $t_0 + t_2$ et (d) $t_0 + t_3$. Pour un temps t donné, les captures des cellules liquides se trouvant dans les zones grisées sont permises, et interdites en dehors. Les flèches représentent le déplacement des plans virtuels dans les directions $\langle 11 \rangle$ normales associées.

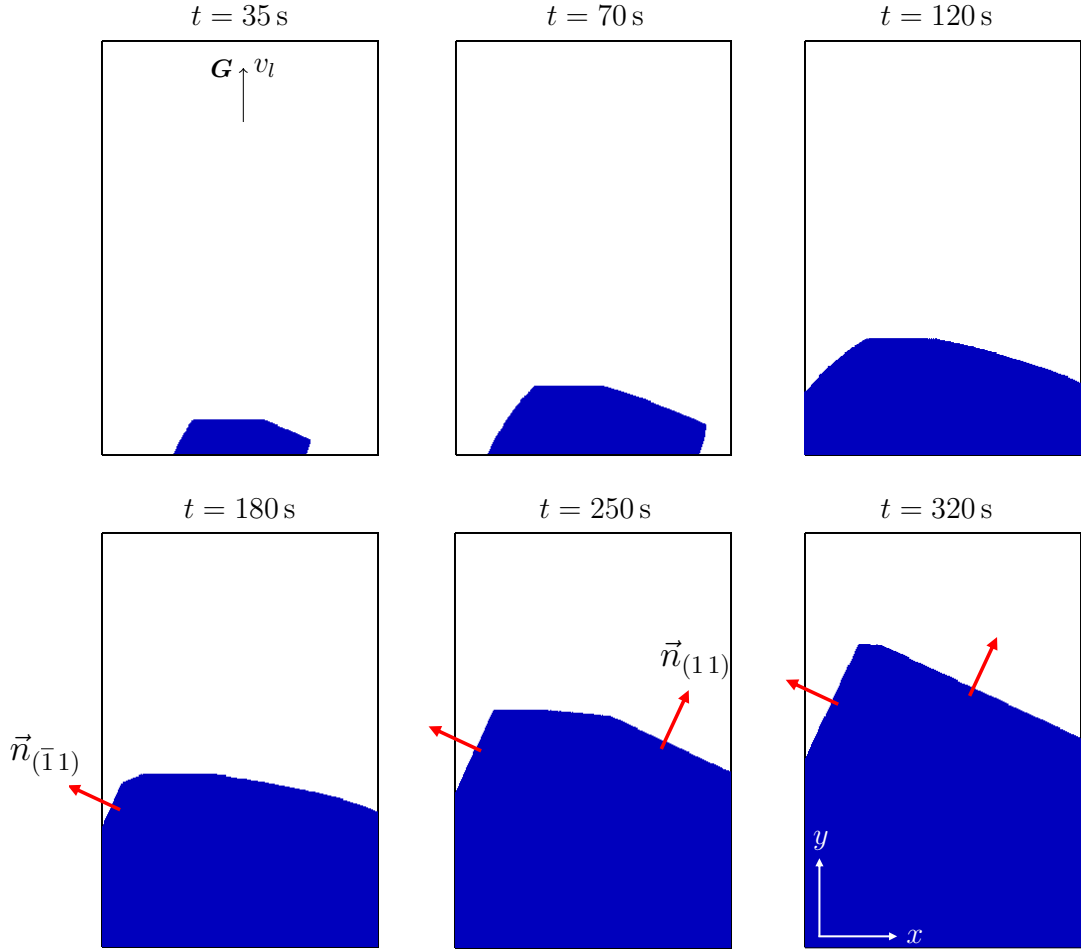


Figure IV.12 – Croissance d'un monograin d'orientation cristallographique $\phi = 20^\circ$ selon l'approche géométrique. Entre les temps $t = 35$ s et $t = 120$ s, aucune facette $\{11\}$ n'est activée. À $t = 180$ s, la facette $(\bar{1}1)$ s'est activée et se développe avec la paroi gauche. Au temps $t = 250$ s, la facette (11) s'est à son tour activée et croît avec la paroi droite. Contrairement aux résultats obtenus avec l'approche géométrique figure IV.7, la facette $(\bar{1}1)$ ne se referme pas au contact de la paroi gauche et la surfusion en son fond augmente continuellement.

vitesse $v_{\{11\}}^c$ des plans $\{11\}$ virtuels. Nous choisissons ici $\Delta T_{\{11\}}^\mu = 3$ K, $\Delta T_{\{11\}}^\sigma = 0$ K et $v_{\{11\}}^c = 8 \mu\text{m s}^{-1}$. Nous rappelons que le grain n'occupe pas initialement toute la largeur du domaine, et la largeur occupée au premier pas de temps est définie par les points d'abscisses $x_1 = 1,5$ mm et $x_2 = 2,5$ mm (la largeur totale étant égale à 4 mm). La surfusion initiale au temps $t = 0$ s et à l'ordonnée $y = 0$ mm est égale à la surfusion stationnaire du grain $\Delta T_s^\phi = 2,17$ K ($\phi = 20^\circ$).

La figure IV.12 donne les résultats obtenus. Aux temps $t = 35$ s et $t = 70$ s, le grain croît et l'interface solide/liquide est entièrement rugueuse, le grain n'étant pas encore entré en contact avec les parois, l'activation des facettes $\{11\}$ n'est possible que sur les bords ou à un joint de grains. À $t = 120$ s, le grain croît avec les parois du domaine, l'interface est toujours complètement rugueuse et les facettes ne sont pas encore activées. En d'autres termes, la surfusion locale sur les bords n'est pas encore inférieure aux surfusions d'activation des facettes $\{11\}$ pouvant se développer sur ces mêmes bords. On voit à $t = 180$ s qu'une facette décrivant un plan cristallographique $(\bar{1}1)$ se développe sur la

paroi gauche. Inversement, l'interface est toujours rugueuse sur la paroi droite. Par la suite, la facette $(1\ 1)$ s'est formée et se développe sur la paroi de droite. Entre temps, la facette $(\bar{1}\ 1)$ a poursuivi sa croissance. Finalement, à $t = 320$ s, la morphologie de l'interface solide/liquide est presque entièrement facettée et correspond à celle souhaitée, c'est-à-dire deux facettes s'étant développées simultanément, comme schématisé en figure IV.6. Bien entendu, cette dernière morphologie est hypothétique et des germinations de grains maclés pourraient s'être produites au préalable sur ces facettes. On voit donc le principal avantage de l'approche géométrique sur l'approche cinétique. L'approche géométrique permet en effet le développement simultané de deux facettes $\{1\ 1\}$ (figure IV.12, $t = 320$ s), alors que l'approche cinétique restreint la croissance d'une unique facette $\{1\ 1\}$ (figure IV.7, $t = 320$ s).

2 Germination d'un grain en relation de macle

2.1 Germination par capture

Nous présentons maintenant l'approche permettant de germer un nouveau grain en relation de macle sur une facette $\{1\ 1\}$. Le grain initial formant la facette $\{1\ 1\}$ constituant le plan de maclage est dénoté grain « mère » et le nouveau grain germé est dénoté grain « fille ». Pour déclencher un événement de maclage, une surfusion de germination $\Delta T_{N,T}$ est définie. Il est observé expérimentalement [Sta17] que la germination de grains maclés se produit à des surfusions plus importantes en fond de facette s'étant formée avec une paroi de domaine (Edge) que pour une facette présente localement au niveau d'un sillon de joint de grains (Bulk). De ce fait, on différencie un événement de germination au bord du domaine (Edge) d'un événement en fond de sillon (Bulk) par des valeurs de surfusions de germination différentes notées $\Delta T_{N,T}^E$ et $\Delta T_{N,T}^B$, respectivement. Afin de prendre en compte ces deux configurations, une surfusion de germination associée à la position spatiale des cellules est considérée lors de la résolution de l'algorithme de capture. Si la surfusion locale, ΔT , d'une cellule liquide μ est supérieure à la surfusion de germination $\Delta T_{N,T}$, où $\Delta T_{N,T}$ vaut $\Delta T_{N,T}^E$ (respectivement $\Delta T_{N,T}^B$) si la cellule se trouve sur une paroi du domaine (respectivement dans un sillon de joint de grains), et que μ est capturée par une cellule voisine solide, alors une enveloppe de croissance est associée à μ . Cependant, les orientations cristallographiques de l'enveloppe de croissance créée ne sont pas égales à celles de l'enveloppe capturante, ce qui correspond à l'algorithme standard de capture [Rap93 ; Car12]. Ces nouvelles orientations correspondent à une relation de maclage $\Sigma 3$ et consistent en une rotation de 60° autour de la normale à un plan cristallographique $\{1\ 1\ 1\}$, en 3D.

La figure IV.13 schématise, en 2D, la germination d'un grain maclé par capture pour une facette de bord de domaine et pour un sillon facetté/facetté. Ici aussi, par souci de simplicité, des notations 2D sont utilisées. Dans ce modèle, un événement de maclage se base donc sur l'algorithme de capture. Cela diffère du modèle initial où les germinations sont contrôlées par des surfusions tirées aléatoirement et associées à des sites de germination répartis sur les cellules [Rap93 ; Car12]. Dans le cadre de la modélisation d'un processus de maclage, la germination par capture présente deux avantages. Premièrement, et comme il est détaillé ci-après, afin de calculer les orientations cristallographiques du grain maclé, ou fille, il est nécessaire de connaître celles du grain mère ayant engendré la capture de la cellule liquide germante. Ces informations sont donc parfaitement connues au moment de la capture. De plus, en procédant par capture, on s'assure qu'un nouveau grain maclé

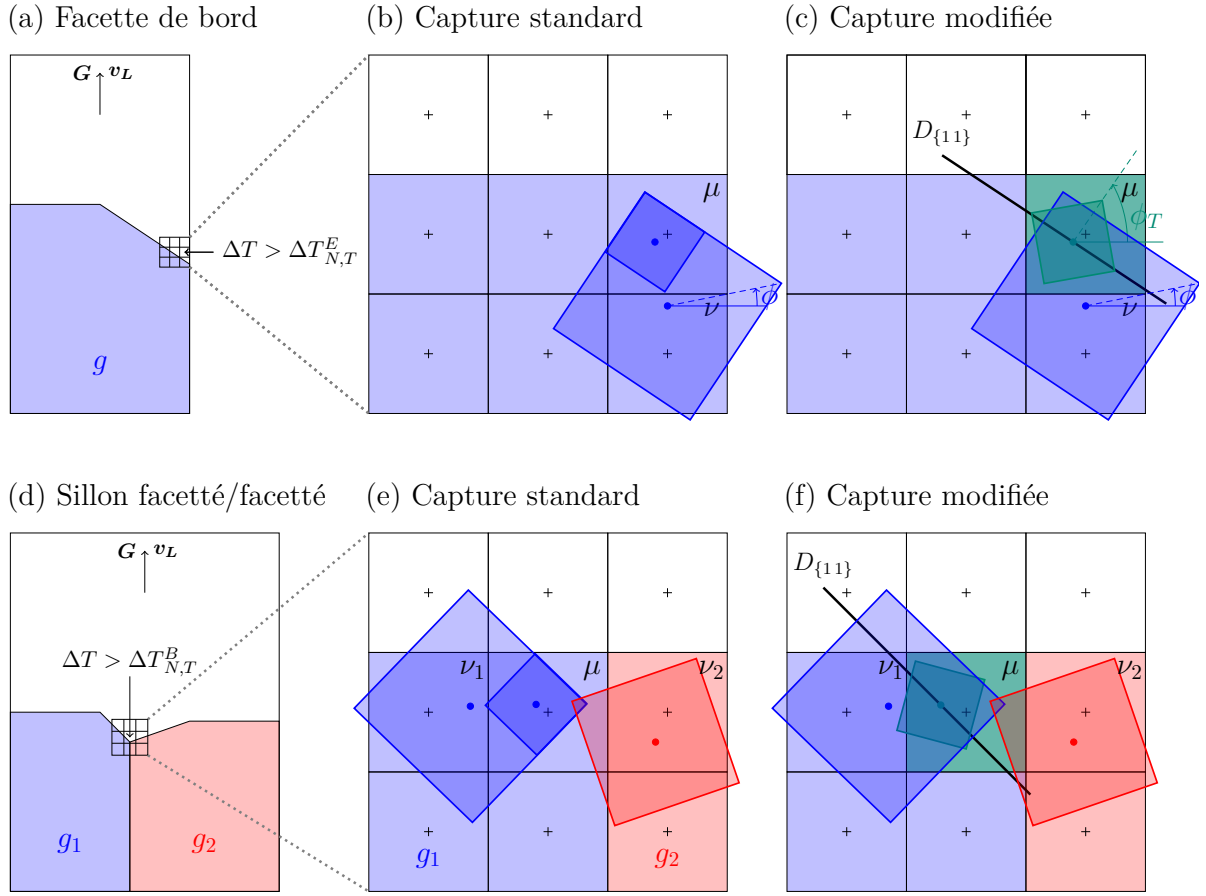


Figure IV.13 – Représentation schématique 2D du processus de germination d'un grain en relation de macle. (a-c) Germination d'un grain maclé sur une facette de bord du domaine. (a) Vue générale du domaine où un grain g développe une facette et capture une cellule liquide dont la surfusion locale, ΔT , est supérieure à la surfusion de germination aux bords du domaine, $\Delta T_{N,T}^E$. (b) Algorithme de capture standard [Rap93; Car12] où une enveloppe de croissance est associée à la cellule liquide μ capturée. L'orientation de l'enveloppe de croissance créée est identique à l'orientation ϕ de l'enveloppe capturante. (c) Algorithme de capture modifié où l'orientation ϕ^T de la nouvelle enveloppe de croissance diffère de celle de l'enveloppe capturante. (d-f) Germination d'un grain maclé au fond d'un sillon facetté/facetté. (d) Vue générale du domaine où un sillon facetté/facetté se développe entre les grains g_1 et g_2 . La surfusion d'une cellule liquide située au fond du sillon est supérieure à $\Delta T_{N,T}^B$. (e) Capture standard où la cellule solide ν_1 , du grain g_1 , capture la cellule liquide μ et l'orientation de l'enveloppe de croissance créée est égale à l'orientation de g_1 . (f) Capture modifiée où l'orientation ϕ^T de la nouvelle enveloppe de croissance diffère et correspond à celle d'un grain maclé. Pour les deux types d'événements, (a-c) et (d-f), l'orientation de la facette, représentée par $D_{\{111\}}$, sur laquelle la germination s'est produite devient une propriété commune du grain capturant et du grain maclé.

est créé au voisinage d'une interface solide. Ceci est bien entendu respecté, car la capture d'une cellule liquide ne peut s'effectuer que par une enveloppe de croissance appartenant à une cellule solide voisine. En ce sens, on s'interdit donc toute germination de type équiaxe dans le liquide. En effet, pour une résolution donnée, on peut très bien imaginer que les surfusions de germination $\Delta T_{N,T}^E$ et $\Delta T_{N,T}^B$ soient atteintes à des endroits du domaine où aucun grain ne soit en réalité présent.

Une dernière condition est nécessaire pour créer le grain maclé. La germination de macle étant favorisée sur des interfaces facettées, c'est-à-dire des plans cristallographiques $\{11\}$, il faut donc s'assurer que la capture (figure IV.13 (c) et (f)) est effectivement réalisée sur ces interfaces. Cependant, d'un point de vue informatique, les cellules ne disposent pas d'une information « facettée » ou « rugueuse » permettant alors de les distinguer. En effet, pour un grain donné, la croissance d'une facette $\{11\}$ est le résultat direct d'une succession d'événements de captures conditionnées, comme présenté précédemment (figure IV.9). Afin de vérifier que la germination d'un grain maclé est effectivement réalisée sur une facette $\{11\}$, la liste des plans $\{11\}$ dynamiques du grain capturant est parcourue, et pour chaque plan, la distance (en valeur absolue) entre celui-ci et le centre de la cellule liquide capturée est calculée. Si cette distance est au moins inférieure à la taille de cellule l_{CA} alors la germination du grain maclé est autorisée. Si plusieurs plans dynamiques du grain capturant vérifient cette condition, alors le plan $\{11\}$ correspondant à la distance minimale est retenu. Cette étape est importante dans la mesure où $\Delta T_{N,T}^E$ et $\Delta T_{N,T}^B$ peuvent être dépassées sur des interfaces rugueuses, et donc la germination d'une macle sur ces mêmes interfaces serait alors permise, ce qui n'est pas observé expérimentalement. Notons finalement qu'aucun grain n'est créé lorsque l'on considère des relations de macle de type $\Sigma 3^n$ où $n > 1$ (*i.e.* $\Sigma 9$, $\Sigma 27$, etc.). En effet, ces relations résultent directement d'une compétition de croissance entre deux grains, et ne correspondent pas à la germination d'un nouveau grain sur un plan cristallographique particulier.

Concernant la germination au fond d'un sillon facetté/facetté, au joint de grains, on voit sur la figure IV.13 (f) que c'est l'enveloppe de croissance de la cellule ν_1 , et appartenant au grain g_1 , qui a capturé la cellule liquide μ et déclenché l'événement de germination. Ainsi, le maclage s'est effectué sur un plan cristallographique $\{11\}$ du grain g_1 et le nouveau grain germé est donc en relation de macle $\Sigma 3$ avec g_1 . Cependant, il n'est pas possible de prévoir, au préalable, si la germination va s'effectuer sur un plan $\{11\}$ de g_1 , ou de g_2 . Autrement dit, on ne peut prévoir initialement à quel grain appartient l'enveloppe qui va capturer une cellule liquide germante en fond de sillon. Cette spécificité est étudiée plus en détails dans le chapitre suivant. Il sera montré que la structure de grains finale peut grandement différer en fonction du grain étant à l'origine d'un processus de maclage en fond de sillon facetté/facetté.

2.2 Orientations cristallographiques du grain maclé

En deux dimensions, l'orientation cristallographique ϕ^T du grain maclé créé est choisie arbitrairement car une rotation $\Sigma 3$ n'a pas de sens physique à cette échelle. Aucune relation ne relie ϕ^T à ϕ et numériquement, la valeur de ϕ^T est choisie aléatoirement telle que $\phi^T \in [-45^\circ; 45^\circ]$. En trois dimensions, on note $(\varphi_1^T, \phi^T, \varphi_2^T)$ les angles d'Euler du grain fille et $(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$ les angles d'Euler du grain mère. Dans le but de trouver une relation entre les angles d'Euler du grain mère et ceux du grain fille, on définit premièrement la matrice de rotation M associée aux angles d'Euler du grain mère et qui exprime les orientations

relatives des vecteurs associés au réseau du cristal dans le repère du laboratoire :

$$M = R_{\varphi_1} \cdot R_{\phi} \cdot R_{\varphi_2} \quad (\text{IV.11})$$

où :

$$R_{\varphi_1} = \begin{bmatrix} \cos \varphi_1 & -\sin \varphi_1 & 0 \\ \sin \varphi_1 & \cos \varphi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.12})$$

$$R_{\phi} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi & -\sin \phi \\ 0 & \sin \phi & \cos \phi \end{bmatrix} \quad (\text{IV.13})$$

$$R_{\varphi_2} = \begin{bmatrix} \cos \varphi_2 & -\sin \varphi_2 & 0 \\ \sin \varphi_2 & \cos \varphi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.14})$$

Notons que la matrice M est définie selon la convention de Bunge [Bun82]. On définit maintenant $R_{\Sigma 3}$ la matrice de rotation axe/angle correspondant à une rotation d'angle θ autour d'un vecteur unitaire $\mathbf{u}$:

$$R_{\Sigma 3} = \begin{bmatrix} u_x^2(1-c) + c & u_x u_y(1-c) - u_z s & u_x u_z(1-c) + u_y s \\ u_x u_y(1-c) + u_z s & u_y^2(1-c) + c & u_y u_z(1-c) - u_x s \\ u_x u_z(1-c) - u_y s & u_y u_z(1-c) + u_x s & u_z^2(1-c) + c \end{bmatrix} \quad (\text{IV.15})$$

où $c = \cos \theta$, $s = \sin \theta$, $\theta = 60^\circ$ et $\mathbf{u}$ est le vecteur normal à un plan $\{111\}$ donné et normalisé ($u_x^2 + u_y^2 + u_z^2 = 1$). Finalement, on définit M^T la matrice de rotation permettant de passer du repère associé au réseau cristallographique du grain maculé au repère du laboratoire :

$$M^T = M \cdot R_{\Sigma 3} \quad (\text{IV.16})$$

et :

$$M^T = \begin{bmatrix} M_{11}^T & M_{12}^T & M_{13}^T \\ M_{21}^T & M_{22}^T & M_{23}^T \\ M_{31}^T & M_{32}^T & M_{33}^T \end{bmatrix} \quad (\text{IV.17})$$

La matrice M^T s'exprime sous sa forme générale selon :

$$\left\{ \begin{array}{ll} M_{11}^T = \cos \varphi_1^T \cos \varphi_2^T - \cos \phi^T \sin \varphi_1^T \sin \varphi_2^T & (\text{IV.18a}) \\ M_{12}^T = -\cos \phi^T \cos \varphi_2^T \sin \varphi_1^T - \cos \varphi_1^T \sin \varphi_2^T & (\text{IV.18b}) \\ M_{13}^T = \sin \phi^T \sin \varphi_1^T & (\text{IV.18c}) \\ M_{21}^T = \cos \varphi_2^T \sin \varphi_1^T + \cos \phi^T \sin \varphi_1^T \sin \varphi_2^T & (\text{IV.18d}) \\ M_{22}^T = \cos \phi^T \cos \varphi_1^T \cos \varphi_2^T - \sin \varphi_1^T \sin \varphi_2^T & (\text{IV.18e}) \\ M_{23}^T = -\cos \varphi_1^T \sin \phi^T & (\text{IV.18f}) \\ M_{31}^T = \sin \phi^T \sin \varphi_2^T & (\text{IV.18g}) \\ M_{32}^T = \cos \varphi_2^T \sin \phi^T & (\text{IV.18h}) \\ M_{33}^T = \cos \phi^T & (\text{IV.18i}) \end{array} \right.$$

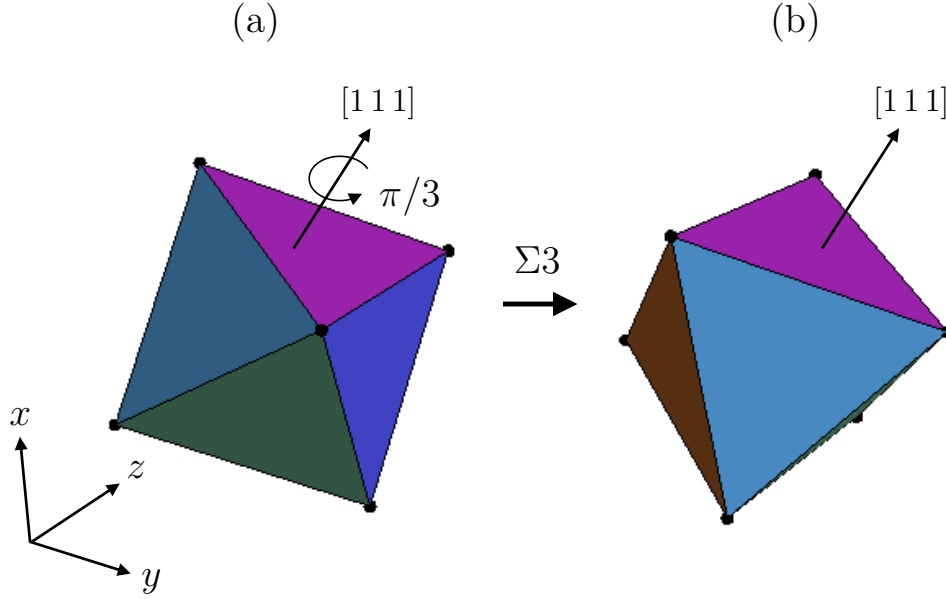


Figure IV.14 – Exemple de deux grains en relation de macle $\Sigma 3$. (a) Grain ayant pour angles d'Euler $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (0^\circ, 30^\circ, 45^\circ)$. Le repère schématisé est associé au laboratoire. Une rotation de $\pi/3$ autour de la normale à son plan $(1\ 1\ 1)$ donne (b) le grain maculé dont les angles d'Euler sont égaux à $(\varphi_1^T, \phi^T, \varphi_2^T) = (-79,5^\circ, -45,9^\circ, 75,3^\circ)$ et calculés selon les équations (IV.19a), (IV.19b) et (IV.19c), respectivement.

Par identification, on a donc :

$$\begin{cases} \phi_1^T = \text{atan2}(M_{13}^T, -M_{23}^T) & \text{(IV.19a)} \\ \phi^T = \cos^{-1}(M_{33}^T) & \text{(IV.19b)} \\ \phi_2^T = \text{atan2}(M_{31}^T, M_{32}^T) & \text{(IV.19c)} \end{cases}$$

où $\text{atan2}(y, x)$ est une variante de la fonction arc tangente, et pour x et y non nuls, est définie comme l'angle en radians entre la partie positive de l'axe des x d'un plan et le point de ce plan de coordonnées (x, y) . Cet angle est donc positif dans le sens trigonométrique, négatif dans le sens inverse.

La figure IV.14 donne un exemple de deux grains en relation de macle $\Sigma 3$. Le grain montré en (a) a pour angles d'Euler $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (0^\circ, 30^\circ, 45^\circ)$. Une rotation d'angle $\pi/3$ autour de la normale au plan $(1\ 1\ 1)$ résulte en un grain, montré en (b), dont les angles d'Euler sont directement calculés selon la méthode donnée précédemment et on a donc : $(\varphi_1^T, \phi^T, \varphi_2^T) = (-79,5^\circ, -45,9^\circ, 75,3^\circ)$. Dans la matrice (IV.15), le vecteur $\mathbf{u}$ définit la normale au plan $\{1\ 1\ 1\}$ de maillage. Lors de l'étape de germination du grain maculé, l'équation définissant le plan de maillage est déterminée en utilisant les coefficients du vecteur $\mathbf{u}$ et les coordonnées de la cellule capturée ayant déclenché l'évènement de maillage. Cette équation de plan devient une propriété commune du grain fille et du grain mère. Ce plan de maillage est défini comme *statique* et, contrairement aux plans *dynamiques* présentés dans la section précédente, ces plans $\{1\ 1\ 1\}$ *statiques* ne sont pas déplacés dans le temps et l'espace. Cette donnée va alors être exploitée pour permettre le maintien du plan de macle comme joint de grains entre le grain mère et le grain fille.

3 Croissance de deux grains en relation de macle

Il a été observé expérimentalement [Tan13a ; Tan13b] que le grain maclé, après germination au fond de la facette du grain mère, croît rapidement afin de rattraper l'interface solide/liquide. Lorsque le grain maclé rejoint l'interface, l'orientation $\{111\}$ du plan de maclage est conservée et définit alors le joint de grains. Cette frontière particulière n'est pas prédite, de base, par l'approche automate cellulaire. Afin de modéliser ce phénomène, une approche de type *cinétique* et une approche de type *géométrique* sont à nouveau proposées. Pour ces deux approches, il est nécessaire de caractériser numériquement l'interface entre le grain mère et son grain fille. En d'autres termes, les cellules définissant le joint de grain de macle doivent être distinguées des autres cellules. Lors de la germination du grain fille, on lui attribue comme information le numéro de son grain mère. À chaque pas de temps numérique, le voisinage d'une cellule en croissance appartenant au grain fille est parcouru. Si, pour une cellule donnée du voisinage, le numéro du grain mère de la cellule centrale considérée est effectivement trouvé, alors la cellule centrale est identifiée comme cellule de joint de grain maclé.

3.1 Approche cinétique

L'approche cinétique se base sur les résultats de la limite géométrique présentée en sous-section 2.2 du chapitre III, et a donc été uniquement développée en deux dimensions. Afin de maintenir l'orientation $\{11\}$ de la facette, il est nécessaire d'obtenir une compétition de croissance stationnaire entre le grain mère et son grain fille où l'angle de frontière θ résultant reste donc égal à l'orientation $\{11\}$ du plan de maclage, c'est-à-dire $\theta = \phi_1 \pm 45^\circ$ (où ϕ_1 est l'orientation cristallographique du grain mère). Cependant, ceci est problématique car, vis-à-vis de l'approche CA, la figure III.5, page 55, montre qu'aucun couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) ne donne un angle θ supérieur à 45° , ou inférieur à -45° , pour deux grains en compétition. Cependant, ces résultats ont été obtenus pour des cinétiques de pointes égales pour les deux grains en compétition. L'approche cinétique consiste donc à étudier la compétition de croissance entre deux grains, ayant des cinétiques de croissance différentes, dans le but de bloquer la frontière de grains à la direction θ souhaitée et représentative d'un joint de grains maclé.

Les deux grains sont notés g_1 et g_2 et leurs orientations cristallographiques ϕ_1 et ϕ_2 , respectivement. Les conditions de refroidissement sont identiques $(G, \dot{T})$ à celles données dans la sous-section 1.1. La cinétique de croissance appliquée à g_1 est fixée et est donnée par une loi linéaire $v_{\langle 10 \rangle}^{g_1} = A\Delta T$ où $A = 6,5 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$. Le grain g_2 a une cinétique de croissance $v_{\langle 10 \rangle}^{g_2}$ telle que $v_{\langle 10 \rangle}^{g_2} = k_v \times A\Delta T$ où le coefficient k_v est un réel supérieur ou égal à 1 et caractérisant donc le rapport $v_{\langle 10 \rangle}^{g_2}/v_{\langle 10 \rangle}^{g_1}$. L'objectif est donc d'étudier l'évolution de l'angle θ de joint de grains selon k_v , et de trouver, si elle existe, une valeur de k_v donnant une compétition de croissance stationnaire où θ soit égal à l'orientation de la facette de maclage attendue.

Premièrement, le critère de limite géométrique, résumé par l'équation (III.14), est réécrit en introduisant le coefficient k_v (calculs non détaillés) :

$$\theta_{LG}(\phi_1, \phi_2, k_v) = \left\{ \begin{array}{ll} \text{(C1) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_1 + \cos \phi_1 - k_v^{-1} \sec \phi_2}{\cos \phi_1 - \sin \phi_1} \right) & \text{si } (\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ \text{ et } \phi_1 < \phi_2 \\ \text{(C2) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + k_v \sec \phi_1}{\cos \phi_2 + \sin \phi_2} \right) & \text{si } (\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ \text{ et } \phi_1 < \phi_2 \\ \text{(D) :} & \\ \tan^{-1} \left(\frac{\sin \phi_2 - \cos \phi_2 + k_v (\cos \phi_1 + \sin \phi_1)}{\sin \phi_2 + \cos \phi_2 - k_v (\sin \phi_1 + \cos \phi_1)} \right) & \text{si } \phi_1 > \phi_2 \end{array} \right. \quad \text{(IV.20)}$$

où (C1), (C2) et (D) font références aux domaines représentés figure III.4, page 54.

3.1.1 Configuration divergente, $\phi_1 > \phi_2$

Le premier cas étudié correspond à $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = -25^\circ$, définissant alors un système divergent ($\phi_1 > \phi_2$). Le grain g_1 (respectivement g_2), d'orientation ϕ_1 (respectivement ϕ_2) est ici le grain mère (respectivement le grain fille et maclé). Pour ce cas précis, l'orientation du grain maclé est imposée et non choisie aléatoirement. Pour un système divergent, l'évolution analytique de θ en fonction de k_v est régie par l'expression (D) de l'équation (IV.20).

Les résultats obtenus avec l'approche CA sont donnés figure IV.15. On voit donc que pour des faibles valeurs de k_v , θ évolue effectivement selon l'expression (D) de l'équation (IV.20), représentée en bleu (θ_1). Cependant, à partir d'une certaine valeur de k_v , notée k_v^{crit} , l'expression θ_1 n'est plus valable et θ évolue selon une autre loi notée θ_2 et représentée en vert. Afin de déterminer cette nouvelle formulation, il faut considérer que, pour $k_v > k_v^{\text{crit}}$, la cinétique du grain g_2 est telle que le grain g_1 ne peut plus, au joint de grains, développer des branches secondaires et la configuration de divergence rappelée figure IV.16 (a) n'est donc plus valable. Ainsi, pour $k_v > k_v^{\text{crit}}$, seul le grain g_2 développe au joint de grains des branches primaires et secondaires donnant alors lieu à une configuration, non plus divergente, mais convergente de type (C2), et représentée figure IV.16 (b). De ce fait, l'évolution de θ pour $k_v > k_v^{\text{crit}}$ est maintenant régie par l'expression (C2) de l'équation (IV.20) donnant l'expression de θ lorsque le grain g_1 développe des branches primaires et le grain g_2 des branches primaires et secondaires. Nous inversons donc cette relation afin d'établir une expression de k_v en fonction de l'angle θ :

$$k_v = [\sin \phi_2 (\tan \theta - 1) + \cos \phi_2 (\tan \theta + 1)] \times \cos \phi_1 \quad \text{(IV.21)}$$

Ainsi, pour la configuration étudiée, le grain mère g_1 d'orientation cristallographique $\phi_1 = 10^\circ$ forme une facette dont l'angle entre la normale à celle-ci et la direction verticale du gradient de température est égale à $\phi_1 + 45^\circ$. Si un grain maclé g_2 , d'orientation cristallographique $\phi_2 = -25^\circ$, germe au fond de cette facette, et que l'on souhaite conserver l'orientation de cette facette, il suffit d'appliquer à g_2 une valeur de k_v donnée par l'équation (IV.21) où l'on remplace θ par $\phi_1 + 45^\circ$.

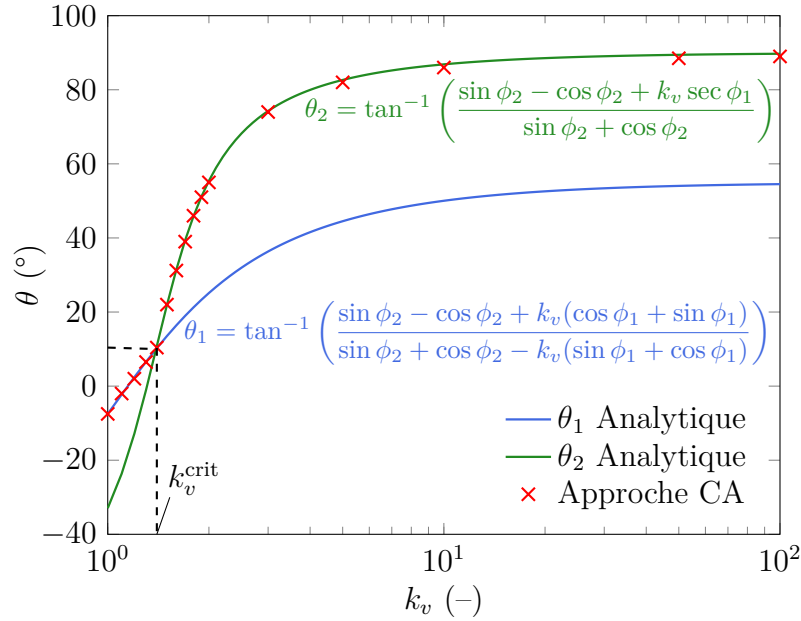


Figure IV.15 – Évolution de l'angle de joint de grains θ en fonction de k_v résultant de la compétition entre deux grains g_1 et g_2 d'orientations cristallographiques $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = -25^\circ$, respectivement, selon deux lois analytiques $\theta_1 = f_1(k_v)$ (—) et $\theta_2 = f_2(k_v)$ (—) ainsi que les résultats obtenus avec l'approche CA (x).

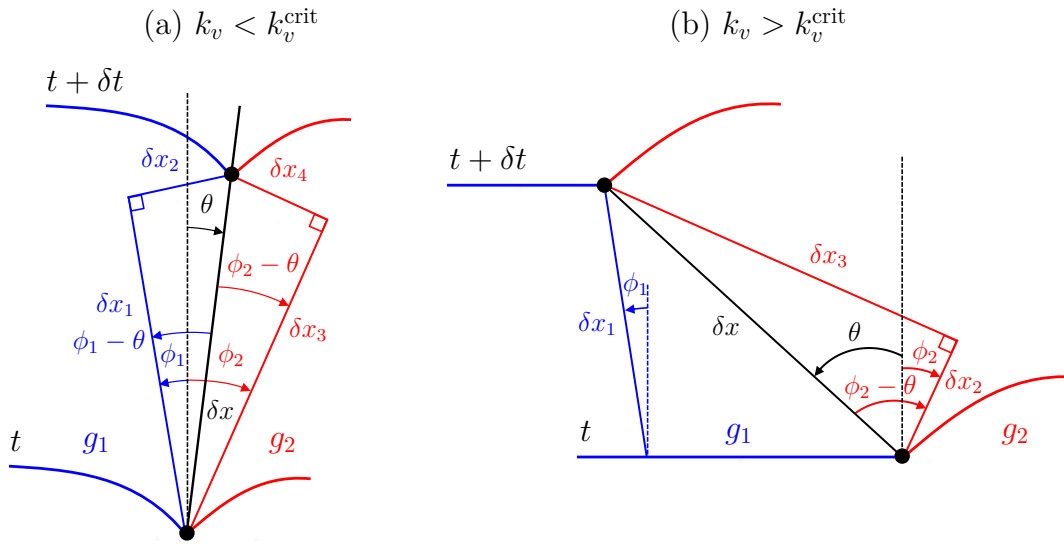


Figure IV.16 – Alternance des branchements primaires et secondaires pour les grains g_1 et g_2 selon la valeur du coefficient k_v . (a) $k < k_v^{\text{crit}}$: configuration divergente où $\phi_1 > \phi_2$. Les deux grains développent des branches primaires et secondaires au joint de grains. (b) $k > k_v^{\text{crit}}$: la cinétique du grain g_2 est telle que le grain g_1 ne peut croître des branches secondaires au joint de grains. La configuration devient alors convergente, bien que $\phi_1 > \phi_2$.

3.1.2 Configuration convergente, $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$

Le deuxième cas étudié est une compétition de croissance convergente où $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$. Les orientations cristallographiques de g_1 et g_2 sont égales à $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = 25^\circ$, respectivement. Ici aussi, la valeur de ϕ_2 est imposée. L'évolution analytique de θ selon k_v est alors régie par l'expression (C1) de l'équation (IV.20). Cette évolution et les résultats obtenus avec l'automate cellulaire sont présentés figure IV.17.

Ici aussi, pour de très faibles valeurs de k_v , les résultats CA suivent effectivement l'évolution donnée par l'expression (C1) de l'équation (IV.20). Cependant, une discontinuité est également observée traduisant une alternance dans le développement des branchements. Pour $k_v < k_v^{\text{crit}}$ seul le grain g_1 présente des branches primaires et secondaires, comme montré figure IV.18 (a). Pour $k_v > k_v^{\text{crit}}$, le grain g_1 ne peut alors développer que des branches primaires et le grain g_2 présente alors, à son tour, au joint de grains, des branches primaires et secondaires tel que schématisé figure IV.18 (b). L'évolution analytique de θ est maintenant donnée par l'expression (C2) de l'équation (IV.20). Pour toutes valeurs de k_v , un système convergent est toujours obtenu. La différence réside dans le basculement du grain qui croît des branches primaires et secondaires (g_1 pour $k_v < k_v^{\text{crit}}$ et g_2 pour $k_v > k_v^{\text{crit}}$). Finalement, l'expression de k_v pour cette configuration est donnée selon :

$$k_v = [\sin \phi_2 (\tan \theta - 1) + \cos \phi_2 (\tan \theta + 1)] \times \cos \phi_1 \quad (\text{IV.22})$$

Pour ce cas aussi, si nous considérons que le grain g_1 est le grain mère et que le grain g_2 est le grain maclé germant sur une facette de g_1 , alors pour préserver l'orientation du joint de grains maclé lors de la croissance de g_1 et g_2 , il suffit d'appliquer à g_2 une cinétique $v_{\langle 10 \rangle}^{g_2} = kA\Delta T$ où k_v est donné par l'équation (IV.22) dans laquelle θ vaut $\phi_1 + 45^\circ$.

3.1.3 Configuration convergente, $(\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$

Le dernier cas possible est un système convergent où $(\phi_1 + \phi_2) < 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$. Nous prenons ici $\phi_1 = -25^\circ$ et $\phi_2 = 10^\circ$. L'évolution analytique de θ en fonction de k_v est donc donnée par l'expression (C2) de l'équation (IV.20) et les résultats obtenus avec l'automate cellulaire sont présentés figure IV.19. Aucun changement de régime n'est observé ici. Initialement ($k = 1$), le grain g_1 développe des branches primaires et le grain g_2 des branches primaires et secondaires comme schématisé par la figure IV.20. Cette configuration est donc préservée quand k_v augmente, c'est-à-dire lorsque la cinétique de g_2 augmente. Ainsi, dans ce cas précis, l'évolution de θ selon k_v est donnée par l'expression (C2) (IV.20) pour $k_v \in [1, +\infty[$.

3.1.4 Résumé de l'approche cinétique

Nous résumons l'approche cinétique dans sa globalité. Afin de modéliser le développement d'une interface facettée, l'approche de seuillage (décrite en sous-section 1.1) est utilisée. Cette méthode limite néanmoins le développement d'une unique facette de bord pour un grain donné. Pour simuler la germination du grain maclé, une surfusion de germination est définie. Une fois cette surfusion atteinte, on associe aux cellules respectant cette condition, via l'algorithme de capture, une enveloppe de croissance d'orientation cristallographique différente (figure IV.13). En deux dimensions, cette orientation est arbitrairement choisie. Pour que le grain maclé rattrape rapidement l'interface solide/liquide, comme observé expérimentalement, une cinétique importante est associée aux cellules de frontière de macle. Par la suite, pour que le grain maclé entre en compétition avec le

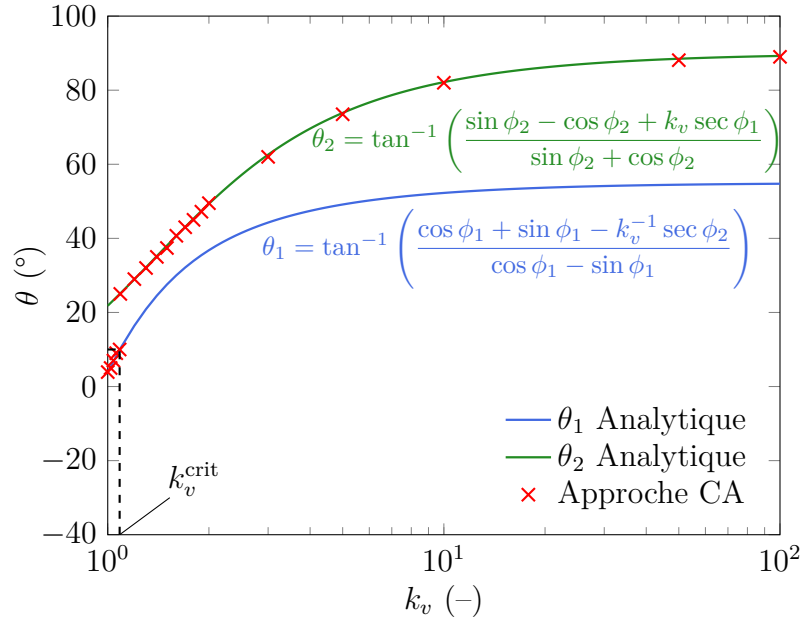


Figure IV.17 – Évolution de l'angle de joint de grains θ en fonction de k_v résultant de la compétition entre deux grains g_1 et g_2 d'orientations cristallographiques $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = 25^\circ$ selon deux lois analytiques $\theta_1 = f_1(k_v)$ (—) et $\theta_2 = f_2(k_v)$ (—) ainsi que les résultats obtenus avec l'approche CA (x).

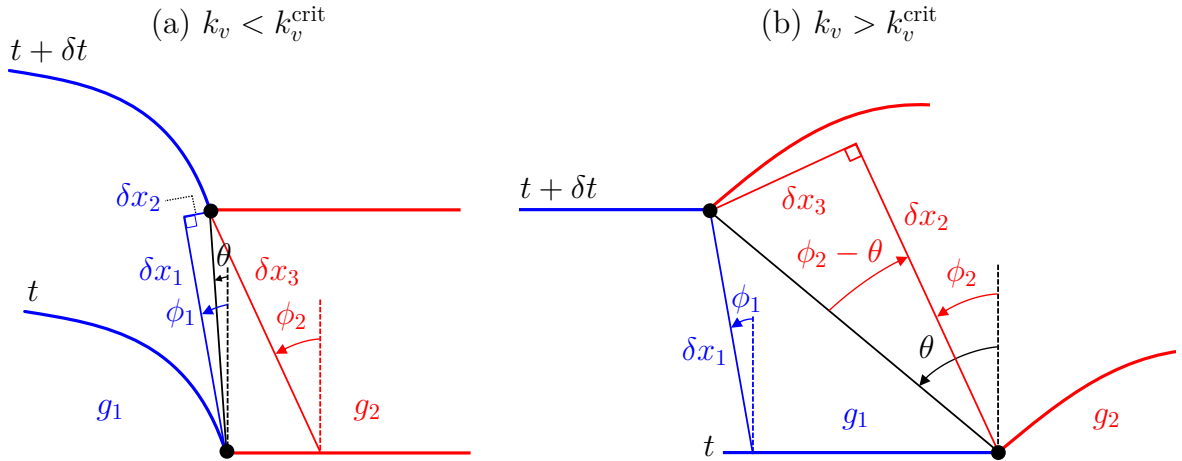


Figure IV.18 – Alternance des branchements primaires et secondaires pour les grains g_1 et g_2 selon la valeur du coefficient k_v . (a) $k_v < k_v^{\text{crit}}$: configuration convergente où $|\phi_1| < |\phi_2|$. Seul le grain g_1 développe des branches primaires et secondaires au joint de grains. (b) $k_v > k_v^{\text{crit}}$: la cinétique du grain g_2 est telle que le grain g_1 ne peut croître des branches secondaires au joint de grains et g_2 peut alors croître des branches primaires et secondaires. La configuration reste convergente.

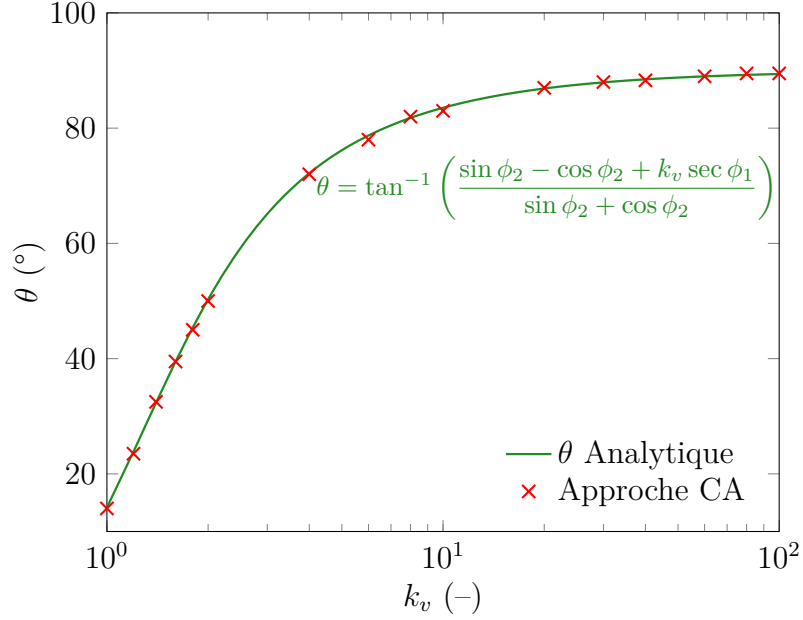


Figure IV.19 – Évolution de l'angle de joint de grains θ en fonction de k_v résultant de la compétition entre deux grains g_1 et g_2 d'orientations cristallographiques $\phi_1 = -25^\circ$ et $\alpha_2 = 10^\circ$ selon une loi analytique $\theta = f(k_v)$ (—) et les résultats obtenus avec l'approche CA (×).

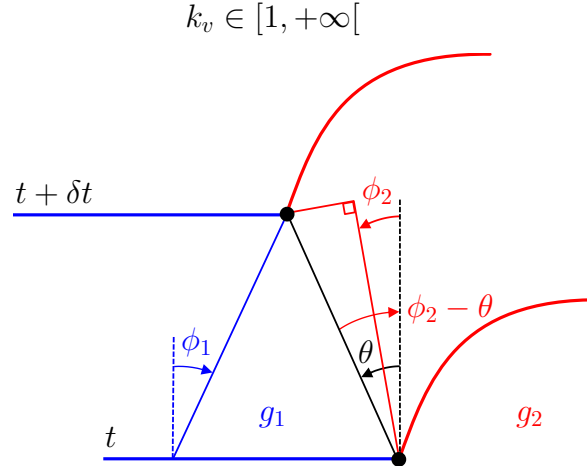


Figure IV.20 – Configuration convergente où $|\phi_1| > |\phi_2|$. Le grain g_1 développe des branches primaires et le grain g_2 des branches primaires et secondaires au joint de grains. Cette configuration est valable pour toute valeur de $k_v > 1$.

grain mère et que l'orientation de la facette soit préservée, une cinétique caractérisée par le coefficient k_v explicité précédemment est appliquée aux cellules de frontière du grain maculé (ou fille).

3.1.5 Application

Cette application a pour but de modéliser la croissance d'un grain initial occupant toute la longueur du domaine, et que ce grain développe une facette $\{11\}$ avec l'une des parois du domaine, puis de déclencher des événements de germinations successifs ($g_1 \rightarrow g_2 \rightarrow g_1$). Les paramètres matériau, procédé et numériques sont donnés tableau IV.1. Notons, dans ce tableau, que les coefficients cinétiques permettant de maintenir les relations de maillage sont notés, par exemple, $k_v^{\phi_2 \rightarrow \phi_1}$. Pour ce cas, cela donne la valeur du coefficient à appliquer à la cinétique du grain g_2 , ayant germé sur une facette du grain g_1 , dans le but d'avoir un angle de joint de grains θ correspondant à l'orientation de la facette de g_1 . Le grain initial est noté g_1 et a pour orientation cristallographique $\phi_1 = 10^\circ$. Le grain germant sur une facette de g_1 est noté g_2 , d'orientation cristallographique $\phi_2 = 25^\circ$. Le grain germant sur une facette de g_2 est aussi noté g_1 et a pour orientation $\phi_1 = 10^\circ$. La température initiale en $y = 0$ et au temps $t = 0$ s vaut $T_0 = 1685$ K, soit une surfusion $\Delta T = 2$ K, et choisie telle que légèrement inférieure à la surfusion stationnaire de g_1 ($\Delta T_s^{\phi_1} = 2,08$ K). Pour ce même grain, la surfusion critique de seuillage est choisie telle que légèrement supérieure à $\Delta T_s^{\phi_1}$, soit $\Delta T_c^{\phi_1} = 2,15$ K. De ce fait, la surfusion de certaines cellules dépasse rapidement la surfusion critique et permet la croissance de la facette. Les cellules restantes ne vérifiant pas cette condition (*i.e.* $\Delta T < \Delta T_c^{\phi_1}$) rendent compte de la croissance du front plan en régime stationnaire.

La figure IV.21 montre les résultats obtenus. Aux temps $t = 35$ s et $t = 70$ s le grain initial g_1 croît et développe une facette avec la paroi droite du domaine. Cette facette correspond plus précisément au plan (11) de g_1 . À $t = 120$ s le grain g_2 germe et croît rapidement sur la facette. L'orientation du plan de macle est préservée durant cette croissance rapide. Comme $\phi_1 = 10^\circ$ et $\phi_2 = 25^\circ$, le système associé est de type convergent où $(\phi_1 + \phi_2) \geq 0^\circ$ et $\phi_1 < \phi_2$. Pour maintenir la relation de maillage entre g_1 et g_2 , le coefficient cinétique $k_v^{\phi_2 \rightarrow \phi_1}$ est donc calculé en utilisant l'équation (IV.22) où $\theta = \phi_1 + 45^\circ$. Pendant sa croissance, à $t = 180$ s, le grain g_2 développe à son tour une facette caractérisant aussi un plan (11) , spécifique de l'orientation cristallographique ϕ_2 . On voit donc ici qu'un phénomène de maillage en deux dimensions n'a pas vraiment de sens, les grains g_1 et g_2 ne partageant pas de plan cristallographique $\{11\}$ commun². Par la suite, à $t = 250$ s, un grain g_1 germe sur la facette de g_2 lorsque la surfusion de germination $\Delta T_{N,T}^E$ est de nouveau atteinte. Le système en croissance est maintenant de type divergent. Pour maintenir l'orientation de plan de macle, à savoir un joint de grains d'orientation $\phi_2 + 45^\circ$, le coefficient cinétique $k_v^{\phi_1 \rightarrow \phi_2}$ est ici calculé selon l'équation (IV.21) où $\theta = \phi_2 + 45^\circ$. Finalement, au temps $t = 320$ s, le grain g_1 développe une nouvelle facette (11) et un nouveau grain g_2 pourra germer ultérieurement sur celle-ci (non montré).

L'approche cinétique permettant la croissance de deux grains maculés présente néanmoins deux sérieuses limites. Cette méthodologie se base sur la limite géométrique qui a été développée uniquement en deux dimensions. En trois dimensions, pour deux grains g_1 et g_2 d'orientations cristallographiques caractérisées par les angles d'Euler $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1})$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2})$, respectivement, aucune prédiction du joint de grains n'est disponible. Par ailleurs, ce même joint de grains est en trois dimensions une surface quelconque et il est

2. Uniquement vérifié lorsque $\phi_1 = \phi_2$.

Tableau IV.1 – Propriétés matériaux, paramètres procédé et numériques pour l'application de l'approche cinétique à une séquence de maclages successifs.

	Symbole	Valeur	Unité	Réf.
Propriétés matériau				
Température de fusion	T_f	1687	K	[RSC19]
Loi cinétique linéaire $v = A\Delta T$	A	$6,5 \times 10^{-6}$	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-1}$	[Tan13b]
Orientations cristallographiques	ϕ_1 (grain g_1)	10	°	
	ϕ_2 (grain g_2)	25	°	
Surfusions stationnaires	$\Delta T_s^{\phi_1}$	2,08	K	
	$\Delta T_s^{\phi_2}$	2,26	K	
Surfusions divergentes	$\Delta T_{div}^{\phi_1}$	2,37	K	
	$\Delta T_{div}^{\phi_2}$	2,71	K	
Paramètres procédé				
Gradient thermique	G	1200	K m^{-1}	[Tan13b]
Vitesse de refroidissement	$\dot{T}$	-0,016	K s^{-1}	[Tan13b]
Vitesse des isothermes	v_L	$13,3 \times 10^{-6}$	m s^{-1}	[Tan13b]
Température initiale	T_0	1685	K	
Paramètres numériques				
Taille de cellule	l_{CA}	15×10^{-6}	m	
Dimensions du domaine	h	6×10^{-3}	m	
	L	2×10^{-3}	m	
Pas de temps macroscopique	Δt	0,1	s	
Surfusion de germination (bord)	$\Delta T_{N,T}^E$	2,3	K	
Surfusions critiques	$\Delta T_c^{\phi_1}$	2,15	K	
	$\Delta T_c^{\phi_2}$	2,34	K	
Coefficients cinétiques	$k_v^{\phi_1 \rightarrow \phi_2}$	3,61	-	
	$k_v^{\phi_2 \rightarrow \phi_1}$	2,34	-	

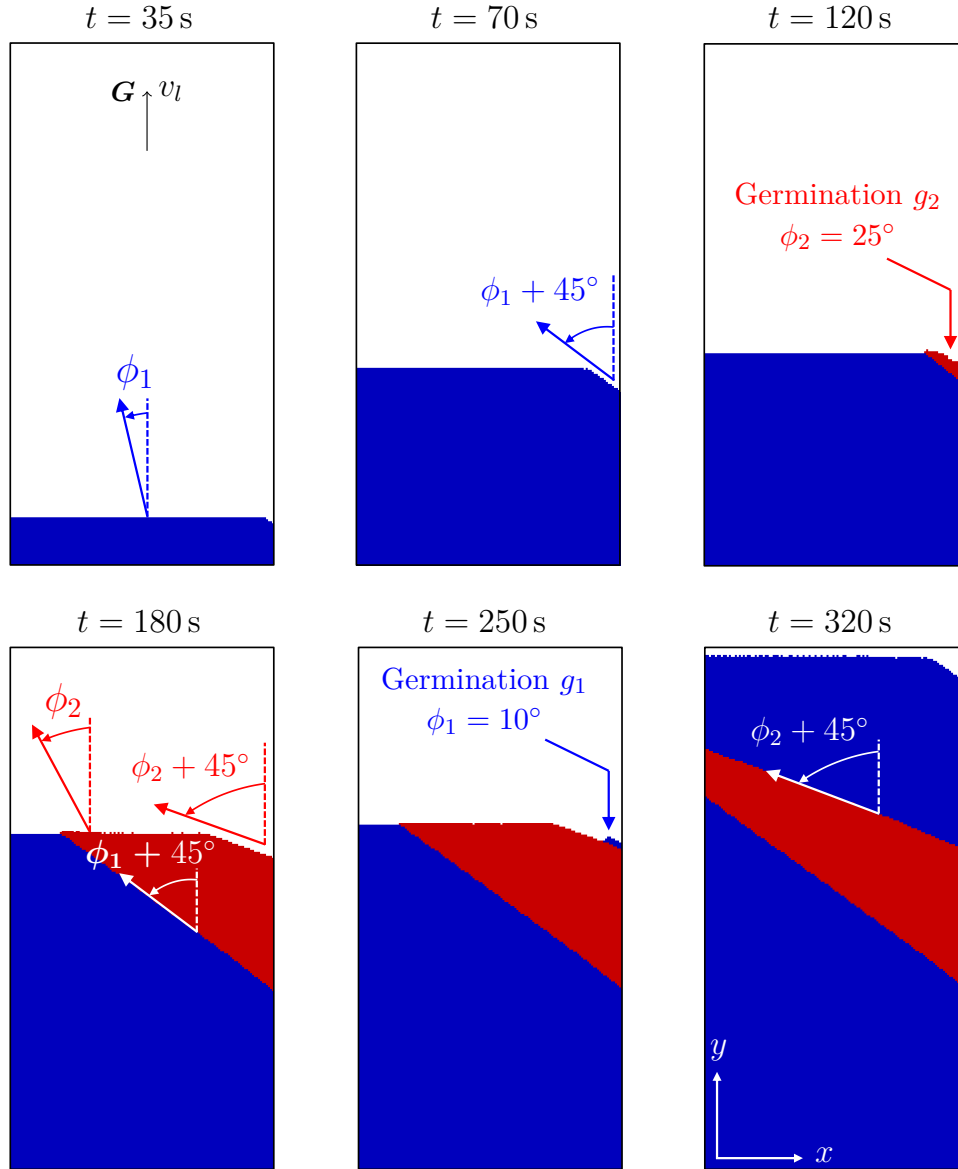


Figure IV.21 – Application 2D de l’approche cinétique à une séquence de maclages successifs ($g_1 \rightarrow g_2 \rightarrow g_1$). Le grain initial a pour orientation cristallographique $\phi_1 = 10^\circ$. Entre les temps $t = 35$ s et $t = 70$ s, ce grain développe une facette avec la paroi droite du domaine grâce à l’utilisation d’une cinétique de croissance seuillée. À $t = 120$ s, un grain g_2 a germé et s’est rapidement développé sur la facette. L’orientation cristallographique de g_2 vaut $\phi_2 = 25^\circ$. La configuration (g_1, g_2) est de type convergente où $|\phi_1| < |\phi_2|$ et afin de maintenir l’orientation de la facette de maclage, le coefficient de cinétique propre à g_2 et noté $k^{\phi_2 \rightarrow \phi_1}$ est calculé selon l’équation (IV.22). Le grain g_2 développe lui aussi une nouvelle facette. Au temps $t = 250$ s, un nouveau grain g_1 germe puis croît aussi selon une cinétique où son coefficient $k^{\phi_1 \rightarrow \phi_2}$ est donné par l’équation (IV.21). La configuration (g_2, g_1) est divergente.

alors loin d’être trivial, à la fois de le décrire et d’en développer une prédiction complète. Le second problème vient du fait que la limite géométrique est valable uniquement pour des cellules de petite taille, comme explicité dans le chapitre III. Or, nous visons dans ce travail à effectuer des calculs de solidification du silicium avec maclage sur un domaine

de dimensions centimétriques. Pour une telle configuration, utiliser une grille automate cellulaire fine peut alors rapidement devenir problématique en termes de temps de calcul. L'approche cinétique pour le maintien du joint de grain maclé a donc été abandonnée au profit d'une approche de type géométrique qui est maintenant présentée.

3.2 Approche géométrique

Le maintien du joint de grains maclé par l'approche géométrique se base sur l'algorithme de capture conditionnée présenté en section 1.2. Pour deux grains g_1 et g_2 en croissance et ayant une relation de macle de type $\Sigma 3$, la capture d'une cellule liquide μ donnée est conditionnée par la position de son centre, vis-à-vis du plan de maclage $\{111\}$ propre à g_1 et g_2 . Comme précisé en section 2, le plan de maclage est décrit par son équation Cartésienne et est une propriété des grains g_1 et g_2 . On vérifie donc aisément si le centre de la cellule μ est situé au dessus ou en dessous du plan de maclage. Cette étape est schématisée, en deux dimensions, par la figure IV.22.

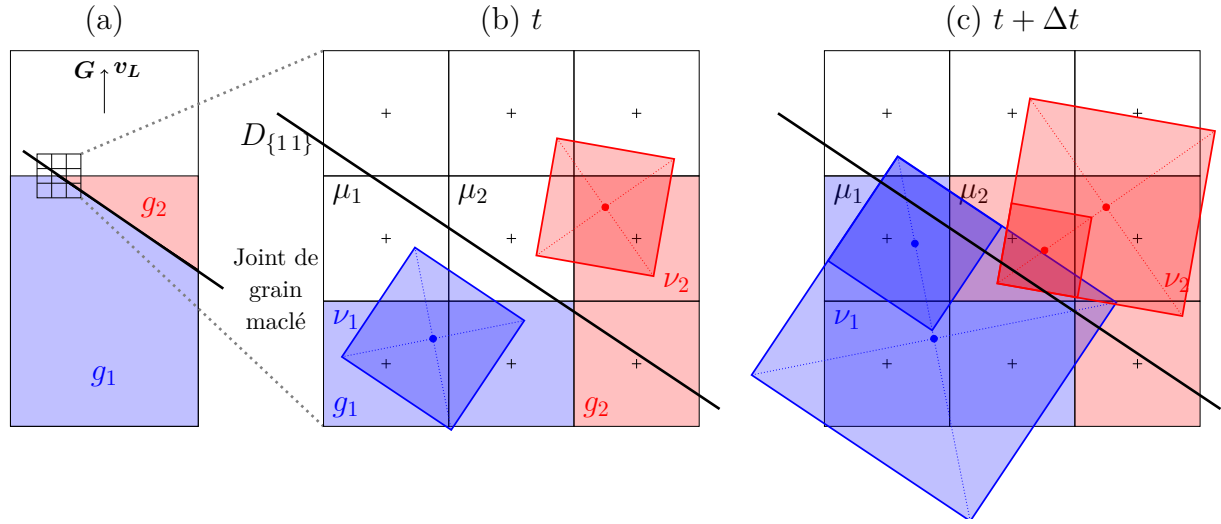


Figure IV.22 – Représentation schématique en deux dimensions du maintien d'un joint de grains maclé basé sur l'algorithme de capture conditionnée. (a) Vue globale du domaine où les grains g_1 et g_2 croissent avec une relation de macle $\Sigma 3$. (b) Zoom sur la grille automate cellulaire au niveau du joint de grains maclé au temps t . Cette frontière est définie par $D_{\{111\}}$. (c) Au temps $t + \Delta t$, l'enveloppe de croissance (en bleu) associée au grain g_1 a englobé le centre de la cellule liquide μ_2 , mais la capture résultante est interdite car le centre de μ_2 se trouve au dessus de $D_{\{111\}}$. C'est donc la forme de croissance (en rouge) associée au grain g_2 qui pourra capturer μ_2 . Réciproquement, seule une enveloppe de croissance du grain g_1 pourra capturer la cellule liquide μ_1 , cette dernière se trouvant en dessous de $D_{\{111\}}$.

Le centre de la cellule liquide μ_1 est situé au dessus du plan de macle et ne pourra donc être capturé uniquement par une enveloppe de croissance appartenant au grain g_2 . À l'inverse, la cellule liquide μ_2 sera uniquement capturée par une enveloppe de croissance de g_1 . Ainsi, au temps $t + \Delta t$, les enveloppes de croissance associées aux cellules ν_1 et ν_2 ont englobé le centre de μ_2 . Comme l'enveloppe de croissance de ν_2 est moins développée que celle de ν_1 , c'est, selon l'algorithme de capture standard [Rap93; Car12], effectivement cette dernière qui devrait capturer μ_2 . Cependant, comme μ_2 se trouve au dessus du plan

de macle, sa capture par ν_1 est interdite. C'est donc l'enveloppe de ν_2 qui pourra capturer μ_2 . Réciproquement, la capture de la cellule liquide μ_1 sera uniquement effectuée par une enveloppe de croissance appartenant au grain g_1 , même si une enveloppe de g_2 avait précédemment englobé son centre.

3.2.1 Application

L'application globale de l'approche géométrique vise à produire un calcul similaire à celui présenté figure IV.21, mais en trois dimensions. La cinétique de pointe est donnée par $v_{\langle 100 \rangle} = A\Delta T$ où $A = 8 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [Rib17]. Le domaine de simulation a une hauteur de 6 mm, une largeur de 2 mm et une épaisseur de 1 mm. Le grain initial, représenté figure IV.23, a pour angles d'Euler $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (0^\circ, 10^\circ, 45^\circ)$. Ce choix d'angles permet d'avoir la direction $[100]$ contenue dans un plan (xy) . Cette configuration peut être considérée comme pseudo 2D pouvant être comparée avec le calcul mené, en 2D, avec l'approche cinétique (figure IV.21). On impose qu'une unique facette puisse se développer avec les parois du domaine, à savoir une facette (111) en croissance avec la paroi droite (schématisée en vert, figure IV.23). La surfusion initiale sur la surface inférieure du domaine ($x = 0$) et au temps $t = 0$ s est fixée à la surfusion stationnaire du grain, égale à 1,69 K. La loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ est telle que $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0$ K et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0$ K. Comme l'écart type est nul, les surfusions d'activation de toutes les facettes $\{111\}$ sont égales à 2 K. Au premier pas de temps, le grain occupe un volume correspondant à la surface inférieure et de hauteur l_{CA} . La surfusion initiale étant égale à la surfusion stationnaire, et inférieure à $\Delta T_{\{111\}}^\mu$, cela signifie que la facette (111) est alors immédiatement activée. La vitesse des plans $\{111\}$ virtuels vaut $v_{\{111\}}^c = 9 \text{ } \mu\text{m s}^{-1}$ et la surfusion de germination sur les facettes de bord vaut $\Delta T_{N,T}^E = 2,3$ K.

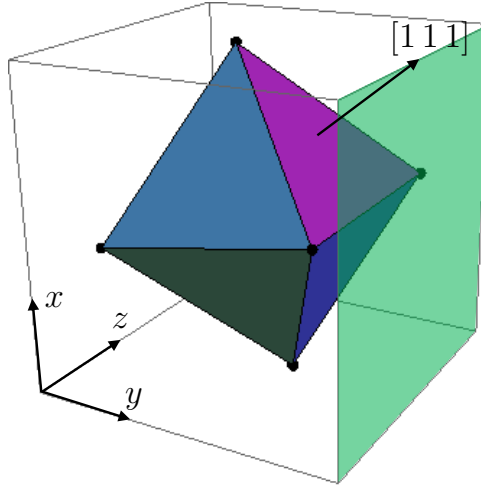


Figure IV.23 – Représentation schématisique du grain initial pour l'application de l'approche géométrique à une séquence de maclages successifs. Le grain a pour angles d'Euler $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (0^\circ, 10^\circ, 45^\circ)$. Le but est qu'il développe une facette (111) avec la paroi droite du domaine, représentée en vert.

La figure IV.24 montre les résultats obtenus. Les grains sont différenciés selon leurs orientations cristallographiques, et les couleurs associées diffèrent de celles utilisées précédemment afin de mieux mettre en évidence la facette (111) . Entre les temps $t = 30$ s

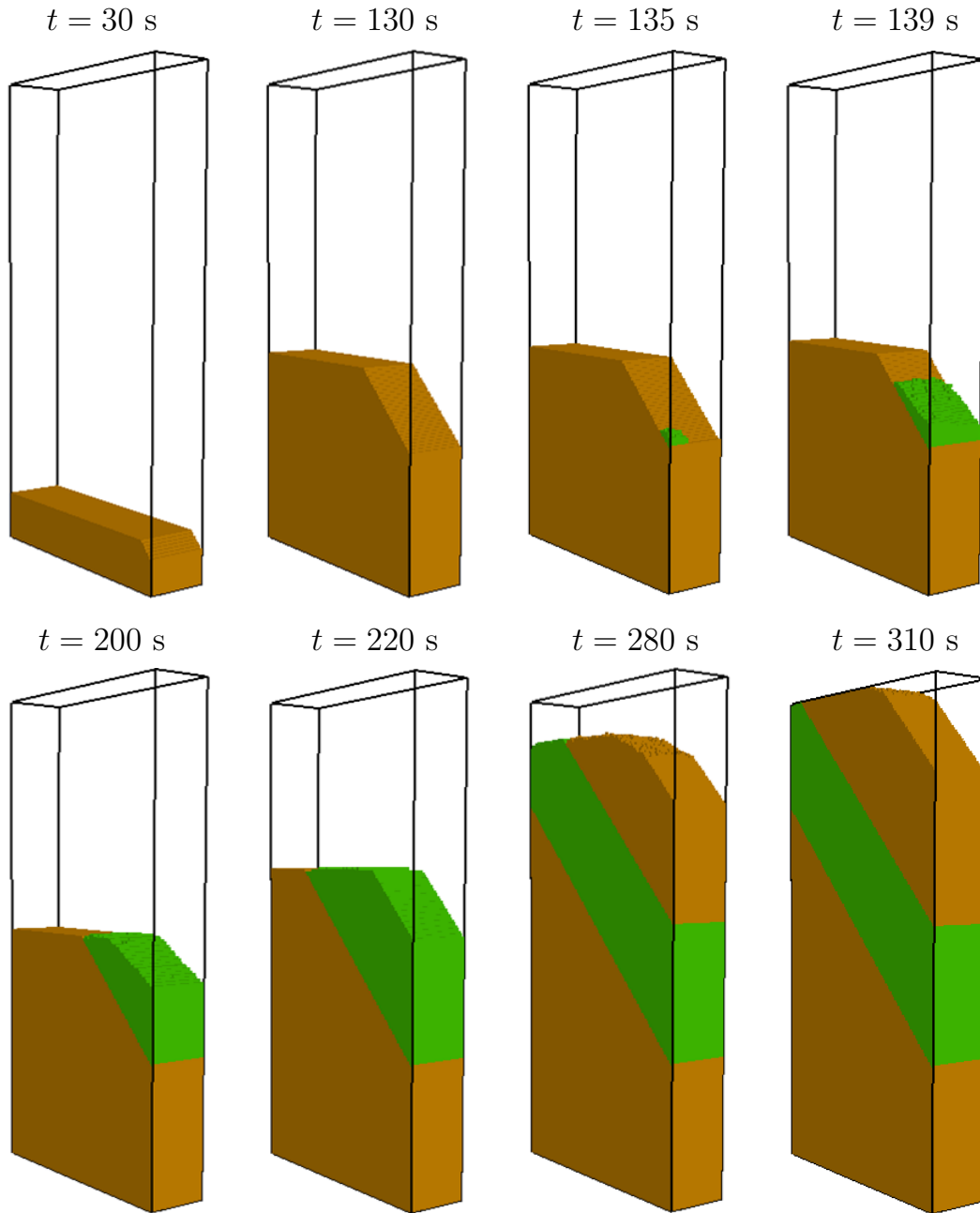


Figure IV.24 – Application 3D de l’approche géométrique à une séquence de maclages successifs. Entre les temps $t = 30$ s et $t = 130$ s, le grain initial développe une facette (111) avec le bord droit du domaine. Au temps $t = 135$ s, un grain germe en relation de maclage sur la facette (111) du grain initial, puis croît rapidement sur celle-ci ($t = 139$ s). Le maintien de l’orientation du plan de maclage est obtenu selon la méthodologie décrite figure IV.22. Le grain maclé développe aussi la facette (111) ($t = 220$ s) commune et permet la germination d’un nouveau grain maclé dont les directions $\langle 100 \rangle$ sont strictement équivalentes à celles du grain initial. Entre les temps $t = 280$ s et $t = 310$ s, ce dernier grain forme lui aussi une facette (111).

et $t = 130$ s, la facette (111) se développe et la surfusion en son fond augmente continuellement. À $t = 135$ s, un grain en relation de macle a germé puis croît rapidement sur celle-ci ($t = 139$ s). Au temps $t = 200$ s, le grain maculé a rattrapé l'interface solide/liquide et l'approche géométrique permet le maintien de la relation de maclage entre les deux grains. À cet instant, néanmoins, la nouvelle facette (111) commune ne s'est pas encore développée. Cette facette s'est finalement formée par la suite et croît, comme montré au temps $t = 220$ s. Un nouveau grain en relation de macle a germé sur la nouvelle facette (111) , ce grain ayant des directions $\langle 100 \rangle$ strictement équivalentes au grain initial. Ce dernier grain forme à son tour le plan de macle commun et on remarque, au temps $t = 280$ s que l'interface solide/liquide comporte une transition rugueuse/facettée. Finalement, au temps $t = 310$ s, la facette poursuit sa croissance et un troisième événement de maclage pourra se produire sur celle-ci (non montré).

4 Conclusions

La modélisation de la croissance du silicium se divise donc en trois étapes successives : la formation et développement d'interfaces facettées, la germination d'un nouveau grain en relation de macle $\Sigma 3$ sur ces interfaces et la croissance simultanée des deux grains. Pour permettre la croissance de facettes, deux approches ont été développées dans ce travail, à savoir une approche de type cinétique et une de type géométrique. L'approche cinétique se base sur un seuillage de la vitesse de croissance conditionné par une surfusion critique. Pour une cellule en croissance donnée, si la surfusion locale de cette cellule est supérieure à la surfusion critique, alors sa cinétique devient constante, permettant progressivement le développement d'une facette. Cette méthodologie a été appliquée avec succès à un monograin pour former une facette avec les parois du domaine (figure IV.2 (d)), et à deux grains formant un sillon facetté/facetté (figure IV.5 (d)). L'approche cinétique montre néanmoins sa limite en ne permettant la croissance que d'une unique facette (figure IV.7).

L'approche géométrique permet de palier ce problème en se basant sur les équations cartésiennes de plans (respectivement de droites, en 2D) décrivant les plans $\{111\}$ cristallographiques d'un grain donné. À chacun de ces plans est attribuée une surfusion d'activation. Durant la solidification, si la surfusion locale d'une cellule située en bord de domaine, ou à un joint de grains, est inférieure à la surfusion d'activation d'un plan $\{111\}$, et que ce plan est favorablement orienté vis-a-vis des isothermes (figure IV.8), alors la facette $\{111\}$ correspondante est activée. Pour permettre la croissance de la facette, un algorithme de capture conditionnée est utilisé : si une cellule liquide a dans son voisinage un grain en croissance et que cette cellule se trouve géométriquement au dessus d'un des plans $\{111\}$ du grain, alors sa capture est inhibée. Pour activer la capture, les plans du grain sont déplacés dans l'espace à chaque pas de temps. Il a été montré que l'approche géométrique permet effectivement la croissance, avec les parois du domaine, de plusieurs facettes simultanément (figure IV.12).

La germination d'un grain maculé est gérée par l'algorithme de capture. Lorsque la surfusion locale d'une cellule liquide, se trouvant en bord de domaine (respectivement à un joint de grains), est supérieure à la surfusion de germination de bord (respectivement joint de grains), alors un nouveau grain est créé ainsi qu'une enveloppe de croissance dont les orientations cristallographiques diffèrent de l'enveloppe capturante (figure IV.13). En 3D, les nouvelles orientations cristallographiques correspondent à une rotation de type $\Sigma 3$, c'est-à-dire une rotation de 60° par rapport à la normale du plan $\{111\}$ de macle (figure IV.14). Ce processus ne pouvant être représenté en 2D, l'orientation est alors choisie

arbitrairement et comprise entre -45° et 45° .

Pour la croissance de deux grains maclés $\Sigma 3$ des approches cinétique et géométrique sont également proposées. L'approche cinétique se base sur l'utilisation d'un coefficient k_v , et qui, appliqué à un nouveau grain maclé, permet d'obtenir une compétition de croissance où l'angle de joint de grains correspond à l'orientation de la facette $\{11\}$ ayant déclenché le maclage. Cette méthode a été validée en deux dimensions uniquement (figure IV.21). L'approche cinétique se basant sur la limite géométrique (développée seulement en 2D) et n'étant valable que pour une grille automate cellulaire fine, l'approche géométrique lui est donc préférée. Cette dernière se base sur l'algorithme de capture conditionnée et a été validée en 3D (figure IV.24). Nous proposons maintenant d'appliquer le modèle numérique à des configurations expérimentales.

Chapitre V

Applications et comparaisons expérimentales

Le modèle numérique présenté au chapitre précédent est maintenant appliqué et comparé à des observations expérimentales. Plusieurs configurations sont étudiées. Premièrement, la morphologie de l'interface solide/liquide est modélisée pour des configurations de types sillon facetté/facetté et sillon facetté/rugueux. Puis, deux cas de croissance d'un monogermes donnant lieu à de multiples systèmes de maclage sont modélisés. Ces deux cas diffèrent principalement par l'orientation cristallographique du germe initial. Pour ces deux configurations, des comparaisons qualitatives et quantitatives sont proposées. L'influence des paramètres numériques est étudiée pour le premier cas. Finalement, le modèle est appliqué à un cube aux dimensions centimétriques.

Sommaire

1	Dispositif expérimental	129
2	Interface solide/liquide	129
2.1	Sillon rugueux/facetté	130
2.2	Sillon facetté/facetté	131
3	Monogermes et structure complète	133
3.1	Monogermes S1	133
3.2	Influence des paramètres numériques	146
3.3	Monogermes S2	155
4	Calculs à l'échelle macroscopique	161
4.1	Mise en données des calculs	161
4.2	Calcul sans facettes $\{111\}$ ni germinations	162
4.3	Calcul avec facettes $\{111\}$ sans germinations	164
4.4	Calcul avec facettes $\{111\}$ et germinations	166
5	Conclusions	170

1 Dispositif expérimental

Expérimentalement [Tan12 ; Rib15 ; Tso16 ; Sta17], afin d'observer la morphologie de l'interface solide/liquide et la structure de grains finale, un échantillon rectangulaire de silicium monocristallin est placé entre deux éléments chauffants comme schématisé par la figure V.1. L'échantillon est premièrement partiellement fondu, les températures imposées

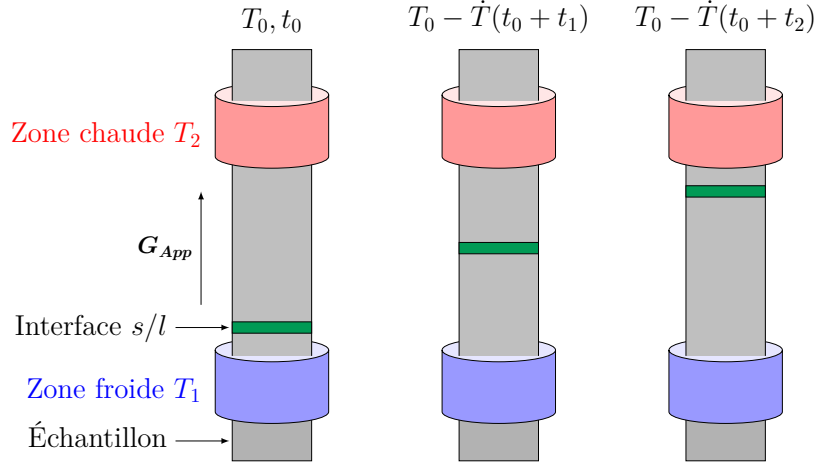


Figure V.1 – Dispositif expérimental pour la solidification du silicium. L'échantillon est placé entre deux parties chauffantes, créant un gradient de température noté G_{App} . La température des parties chauffantes est abaissée temporellement afin de promouvoir la solidification et le déplacement de l'interface solide/liquide.

aux éléments inférieur et supérieur étant égales à T_1 et T_2 , respectivement. Cette différence de température crée alors un gradient de température unidirectionnel vertical noté G_{App} . Après l'étape de fusion partielle, une vitesse de refroidissement $\dot{T}$ est appliquée aux deux éléments chauffants afin de déclencher la solidification de l'échantillon et le déplacement vertical de l'interface solide/liquide. Durant la solidification, l'échantillon est analysé par rayons X et deux modes d'imagerie peuvent être exploités. La radiographie X est basée sur les différences de densité entre les phases solide et liquide du silicium pur, et permet de produire des images contrastées révélant ainsi l'interface solide/liquide. L'imagerie par diffraction des rayons X permet, elle, de révéler la structure solide complète. À cause des différents échanges thermiques entre les éléments du système, le gradient de température local G présent dans l'échantillon est différent du gradient G_{App} appliqué. Celui-ci est indirectement déterminé en mesurant la vitesse v^* de l'interface solide/liquide à partir des clichés obtenus en radiographie X. La vitesse de refroidissement des éléments chauffants étant constante, le gradient G est calculé selon :

$$G = \frac{|\dot{T}|}{v^*} \quad (V.1)$$

2 Interface solide/liquide

Il a été présenté en section 3 du chapitre I, que la formation d'un sillon au joint de grains s'effectue à l'intersection de l'interface solide/liquide avec un joint de grains. Le sillon ainsi formé peut adopter une morphologie de type rugueux/rugueux, facetté/rugueux

ou facetté/facetté [Nad12; Nad14]. Nous présentons ici des résultats de calculs CA visant à modéliser des observations expérimentales d'un sillon facetté/rugueux, et facetté/facetté. Les sillons rugueux/rugueux n'ont pas été observés expérimentalement.

2.1 Sillon rugueux/facetté

La configuration rugueuse/facettée a été initialement mise en évidence en radiographie X par Tandjaoui *et al.* [Tan13b] et plus récemment par Tsoutsouva *et al.* [Tso16]. Dans [Tso16], le gradient de température appliqué résultant vaut $G_{App} = 3000 \text{ K m}^{-1}$, et la vitesse de refroidissement $\dot{T}$ est égale à $-0,2 \text{ K s}^{-1}$. Le gradient de température local G mesuré, déterminé selon l'équation (V.1) à partir des clichés radiographie X vaut $G = 2200 \text{ K m}^{-1}$. On considère ici que G est constant durant la solidification.

La figure V.2 montre un grossissement au niveau de l'interface solide/liquide présentant un sillon facetté/rugueux à deux temps t différents. À l'échelle de l'échantillon, et comme présenté dans [Tso16], de multiples systèmes de maclages sont créés durant la solidification. La structure complète n'est pas montrée ici car nous nous intéressons uniquement à une morphologie d'intérêt au niveau de l'interface solide/liquide. Le sillon s'est formé au joint des grains g_1 et g_2 , ayant pour angles d'Euler $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (223,8^\circ, 28,3^\circ, 15,3^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (95,1^\circ, 48,3^\circ, 62,1^\circ)$, respectivement.

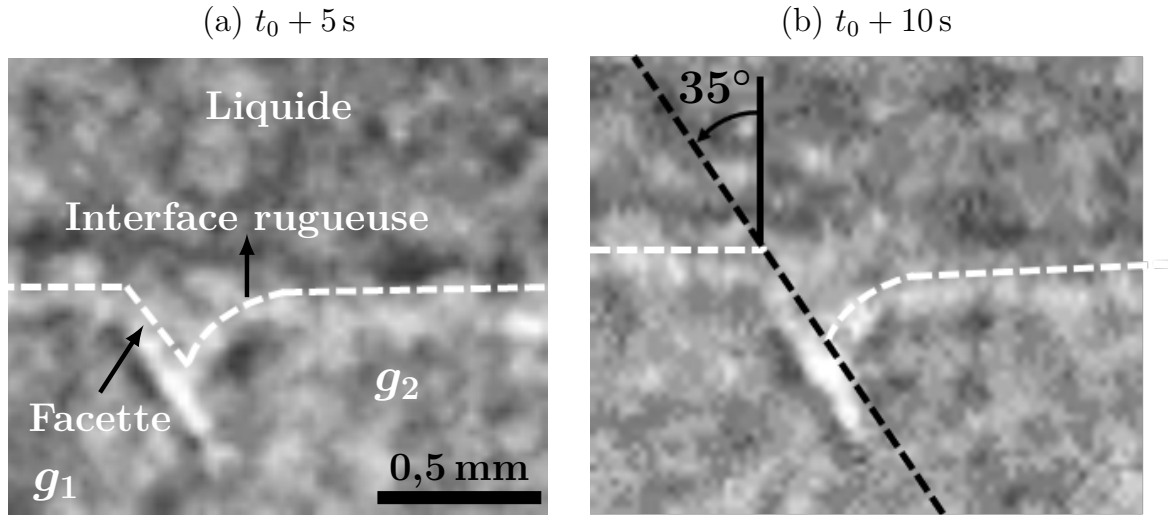


Figure V.2 – Clichés de radiographie X montrant un sillon facetté/rugueux, pour deux grains notés g_1 et g_2 , aux temps (a) $t_0 + 5 \text{ s}$ et (b) $t_0 + 10 \text{ s}$. $G_{App} = 3000 \text{ K m}^{-1}$, $G = 2200 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = -0,2 \text{ K m}^{-1}$. Figure adaptée de [Tso16].

La figure V.3 montre le résultat du calcul CA 3D visant à reproduire l'observation expérimentale dans les mêmes conditions de refroidissement. Le calcul est mené sur un domaine de hauteur 4 mm, de largeur 4 mm et d'épaisseur $300 \mu\text{m}$. La cinétique de pointe dans les directions $\langle 100 \rangle$ est donnée par une loi linéaire : $v_{\langle 100 \rangle} = A\Delta T$, où $A = 8 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [Rib17]. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$ et le pas de temps macroscopique est égal à $\Delta t = 1 \text{ s}$. La température initiale est fixée à 1 K. Pour le grain g_1 , la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ est donnée par $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$. De ce fait, compte tenu de la température initiale, le grain g_1 active nécessairement une facette au joint de grains. En revanche, pour le grain g_2 , on a : $\Delta T_{\{111\}}^\mu = -1 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$. Ainsi, les surfusions d'activation négatives ne seront

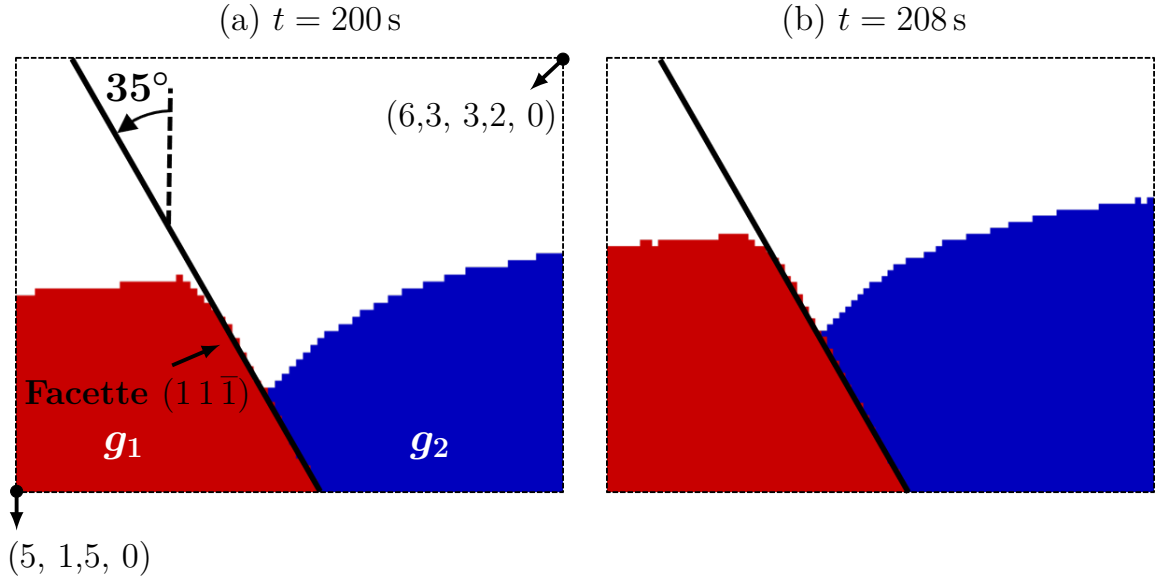


Figure V.3 – Calcul CA 3D modélisant un sillon de joint de grains facetté/rugueux, spécifique aux grains g_1 et g_2 , aux temps (a) $t = 200$ s et (b) $t = 208$ s. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$, le pas de temps Δt est égal à 1 s et les conditions de refroidissement sont telles que $G = 2200 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = -0,2 \text{ K s}^{-1}$. Pour g_1 , on a : $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2 \text{ K}$, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$, et pour g_2 : $\Delta T_{\{111\}}^\mu = -1 \text{ K}$, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$. Seul le grain g_1 a développé une facette correspondant à un plan cristallographique $(1\ 1\ \bar{1})$.

jamais atteintes et g_2 ne pourra alors pas former de facette $\{1\ 1\ 1\}$. Un agrandissement est effectué au niveau de l'interface solide/liquide et décrit par les coordonnées (données en mm) des points inférieur gauche et extérieur droit, figure V.2 (a).

La morphologie facettée/rugueuse montre donc que seul le grain g_1 a activé une facette $\{1\ 1\ 1\}$ au joint de grains. Cette facette correspond à un plan cristallographique $(1\ 1\ \bar{1})$ du grain g_1 . Notons que les temps auxquels sont réalisées ces observations ne correspondent pas à ceux de l'expérience (figure V.2). Dans la simulation, deux grains ont simplement été mis en compétition de croissance, tandis qu'expérimentalement, l'historique de solidification est différent et la zone d'observation montrée figure V.2 consiste en une partie très restreinte de l'échantillon complet.

L'angle mesuré entre l'orientation de la facette et la direction verticale est très proche de celui mesuré sur les observations expérimentales. Ceci démontre que l'algorithme d'identification des plans $\{1\ 1\ 1\}$ prédit bien le plan correct, compte tenu de la configuration de croissance. De plus, comme proposé théoriquement par Nadri et Duffar [Nad14] et observé expérimentalement, le joint de grain évolue bien selon l'orientation de la facette $(1\ 1\ \bar{1})$. Pour ce cas étudié, le modèle permet naturellement les configurations suivantes : sillon facetté/facetté, ou sillon rugueux/facetté. Dans ce dernier cas, le grain g_2 développe alors une facette et non le grain g_1 . L'obtention de ces configurations, non montrées ici, dépend uniquement des surfusions d'activation des plans $\{1\ 1\ 1\}$ tirées et propres aux deux grains.

2.2 Sillon facetté/facetté

Le sillon facetté/facetté montré en figure V.4 a été observé par Stamelou *et al.* [Sta17]. Le dispositif expérimental présenté précédemment est aussi utilisé ici. Le gradient appliqué

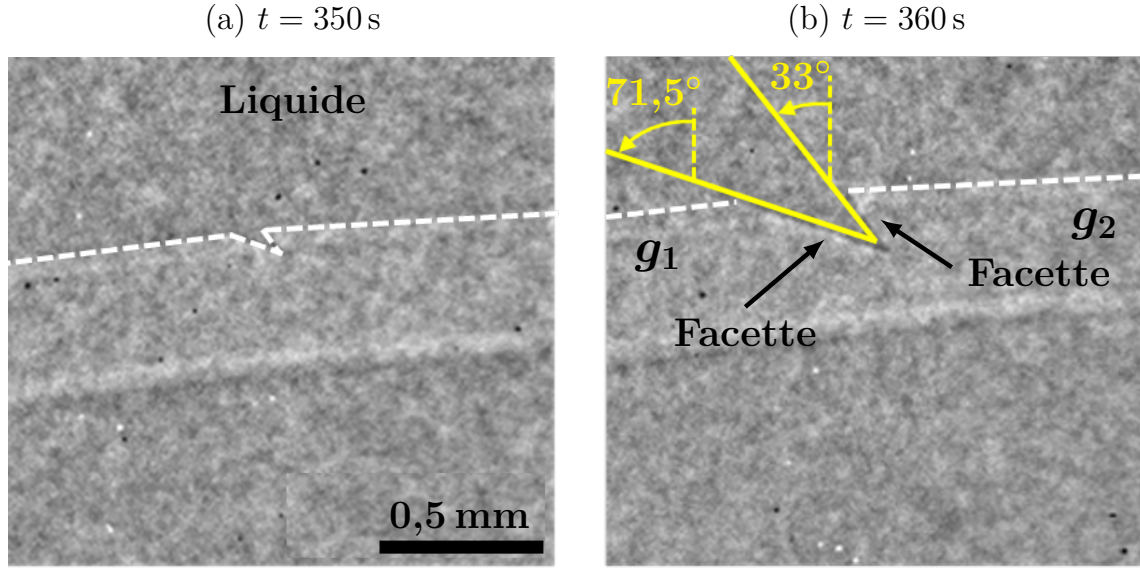


Figure V.4 – Cliché de radiographie X montrant un sillon facetté/facetté, pour deux grains g_1 et g_2 , aux temps (a) $t_0 + 350$ s et (b) $t_0 + 360$ s. $G_{App} = 3750 \text{ K m}^{-1}$, $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = -0,016 \text{ K s}^{-1}$. Figure adaptée de [Sta17].

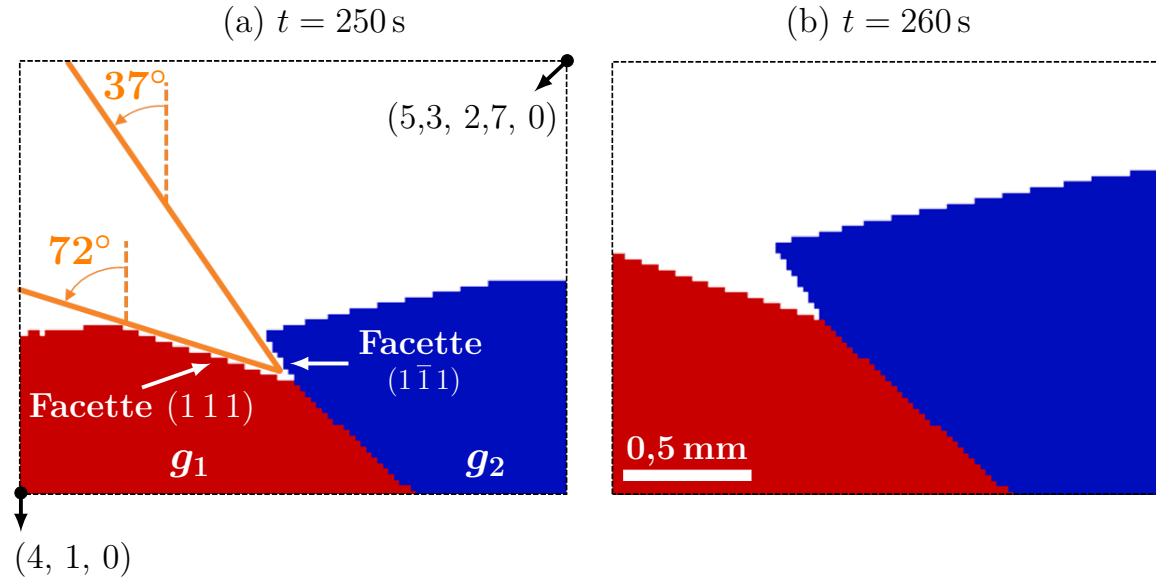


Figure V.5 – Calcul CA 3D modélisant un sillon de joint de grains facetté/facetté, spécifique aux grains g_1 et g_2 , aux temps (a) $t = 250$ s et (b) $t = 260$ s. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 25 \mu\text{m}$, le pas de temps Δt est égal à 1 s et les conditions de refroidissement sont telles que $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$ et $\dot{T} = -0,016 \text{ K s}^{-1}$. Les grains g_1 et g_2 ont développé des facettes spécifiques aux plans cristallographiques (111) et $(1\bar{1}1)$, respectivement, et propres aux deux grains.

entre les deux éléments chauffants vaut $G_{App} = 3750 \text{ K m}^{-1}$, et la vitesse de refroidissement est égale à $\dot{T} = -0,016 \text{ K m}^{-1}$. Le gradient thermique local mesuré au niveau de l'interface solide/liquide vaut $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$. Les grains g_1 et g_2 formant le sillon facetté/facetté ont pour angles d'Euler $(\varphi_1^{g_1}, \phi^{g_1}, \varphi_2^{g_1}) = (280^\circ, 44,7^\circ, 4,4^\circ)$ et $(\varphi_1^{g_2}, \phi^{g_2}, \varphi_2^{g_2}) = (66,5^\circ, 43,6^\circ, 86,1^\circ)$, respectivement.

Afin de modéliser cette configuration avec le modèle CA, la loi cinétique et les paramètres numériques, à l'exception des lois de surfusions d'activation des facettes $\{111\}$, sont identiques à ceux utilisés précédemment, sous-section 2.1. On a pour g_1 et g_2 : $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$. La figure V.5 montre les résultats obtenus. Les orientations des deux plans $\{111\}$ formant le sillon sont correctement prédites par l'algorithme d'identification et sont en accord avec celles observées expérimentalement. De ce fait, l'angle d'ouverture est aussi très proche de celui mesuré expérimentalement. Cet angle est conservé pendant la croissance.

3 Monogermes et structure complète

Cette section est dédiée à la modélisation de la structure complète de deux expériences de solidification dirigée partant d'un monogermes de silicium pur. Ces expériences, dénotées S1 et S2, se distinguent uniquement par les orientations cristallographiques du germe initial. Pour ces deux configurations, une description des principaux grains maclés est proposée. La solidification de l'échantillon est effectuée avec le dispositif expérimental donné figure V.1. Le but ici est de, premièrement, mener une étude qualitative en comparant directement la structure de grains obtenue avec le modèle numérique à celle de l'expérience. Pour ce faire, les données EBSD et CSL sont exploitées. Puis, des comparaisons quantitatives sont effectuées. On étudie les fractions surfaciques des différents grains maclés, leurs nombres, ainsi que les largeurs moyennes des bandes de maclage. Cette donnée correspond à la distance, selon la direction normale à un plan $\{111\}$ de macle, entre deux événements de germination successifs. L'influence des paramètres numériques, c'est-à-dire la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$, $\Delta T_{\{111\}}^\mu$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$, et la vitesse de croissances, des plans $\{111\}$ virtuels, $v_{\{111\}}^c$, est étudiée uniquement pour la configuration S1.

3.1 Monogermes S1

3.1.1 Structure de grains expérimentale

Les observations expérimentales sont premièrement décrites et montrées figure V.6. La zone d'observation est rectangulaire, de hauteur 7,2 mm, de largeur 4 mm et d'épaisseur 300 μm . Cette zone ne représente pas l'intégralité de l'échantillon. Les cartes EBSD sont représentées selon (a) la direction de croissance, (b) la direction transverse à la surface de l'échantillon et (c) la direction perpendiculaire à cette même surface. La figure V.6 (d) donne la carte CSL révélant les types de joint de grains.

La majorité de ces joints de grains sont de type $\Sigma 3$, correspondant donc à des rotations successives de 60° autour de la normale à une facette $\{111\}$ donnée. Les joints de grains de type $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$ résultent directement de la compétition de croissance. Les différents grains maclés sont différenciés par leurs orientations cristallographiques¹ dénotées par les

1. Notons que, par exemple, deux grains A donnés n'ont pas nécessairement les mêmes angles d'Euler. En revanche, ils ont des directions $\langle 100 \rangle$ strictement équivalentes.

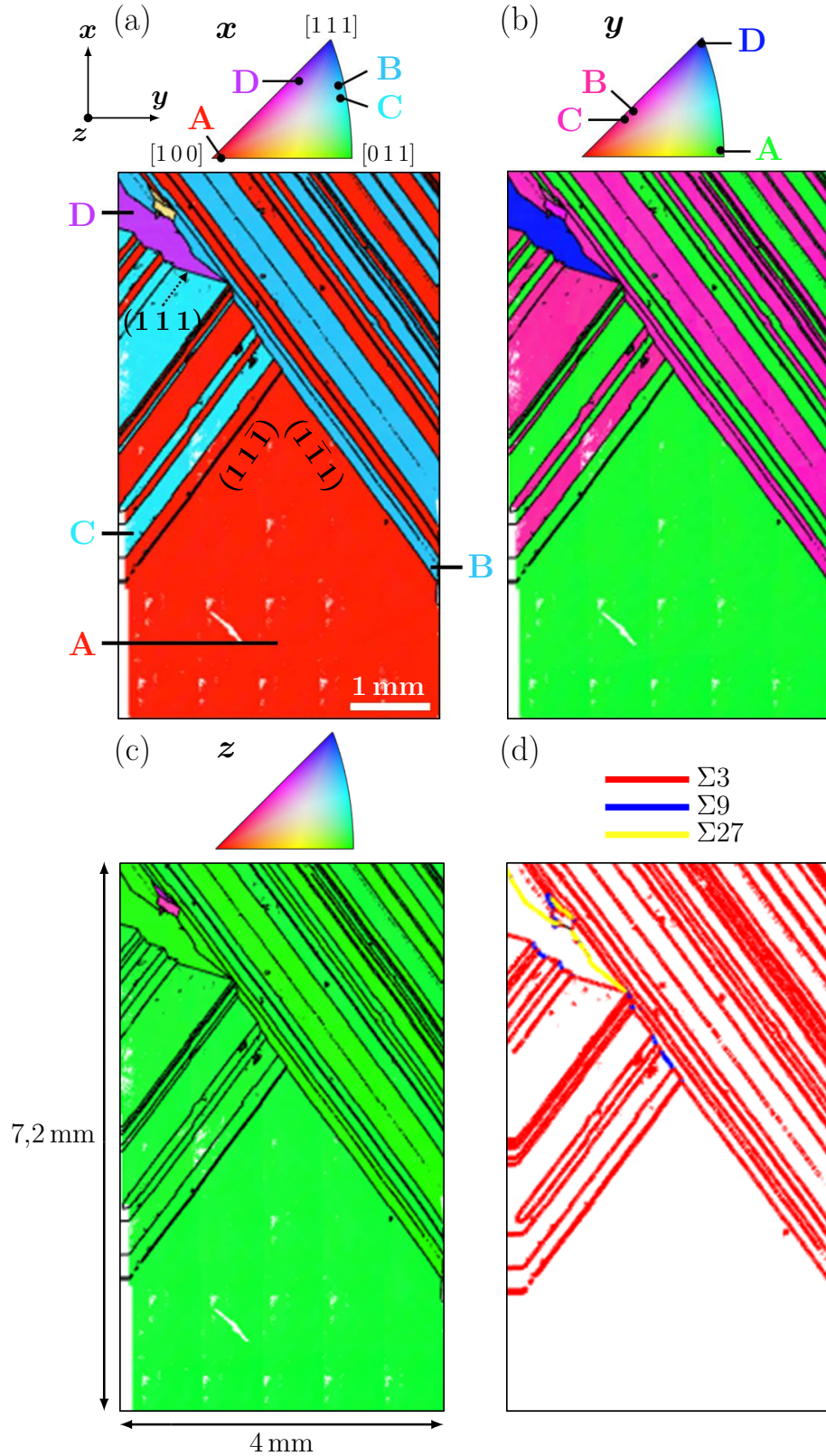


Figure V.6 – Structure de grains expérimentale pour le monoggerme dénoté S1. (a-c) Cartes IPF selon (a) la direction x de croissance, (b) la direction y transverse à la surface de l'échantillon et (c) la direction z perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Les orientations cristallographiques des différents grains maclés sont dénotées par les lettres A, B, C et D. (d) Carte CSL mettant en évidence les trois principaux types de joints de grains maclés, à savoir $\Sigma 3$, $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$. Figure adaptée de [Rib17].

lettres A, B, C, et D. Par exemple, figure V.6 (a), tous les grains rouges sont de type A. Notons, figure V.6, (a) que le grain jaune, proche du grain violet D, n'est pas considéré. Bien qu'il ait, en effet, germé sur un plan de macle $\{111\}$, ce grain étant unique et sa fraction surfacique faible, il n'a pas fait l'objet d'une étude approfondie.

3.1.2 Mise en donnée du calcul

Les propriétés matériau, les paramètres procédé et numériques sont donnés tableau V.1. Pour un grain donné, on note α la désorientation correspondant à l'angle minimal entre toutes les directions $\langle 100 \rangle$ et le gradient de température G . Avec une vitesse des isothermes $v_L = 13,3 \mu\text{m s}^{-1}$, la croissance stationnaire d'un grain dont les directions $\langle 100 \rangle$ sont parfaitement alignées avec G , *i.e.* $\alpha = 0^\circ$ (par exemple, $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (0^\circ, 0^\circ, 0^\circ)$) résulte en une vitesse de croissance stationnaire $v_s^{0^\circ} = v_L$ et une surfusion stationnaire $\Delta T_s^{0^\circ} = v_L/A = 1,67 \text{ K}$ selon la valeur de A donnée tableau V.1. Un grain dont les directions $\langle 100 \rangle$ sont désorientées par rapport à G (*i.e.* $\alpha \neq 0^\circ$) doit alors croître plus rapidement afin de maintenir une croissance stationnaire. Pour $\alpha \neq 0^\circ$, on a $v_s^\alpha = v_L/\cos \alpha$ et donc $\Delta T_s^\alpha = \Delta T_s^{0^\circ}/\cos \alpha$.

Pour le monogermes S1, différents clichés obtenus par diffraction de rayons X montrent que le front rugueux de l'échantillon de croissance stationnaire est globalement plan. Un exemple à un temps donné est montré figure V.7. Cela signifie que la croissance

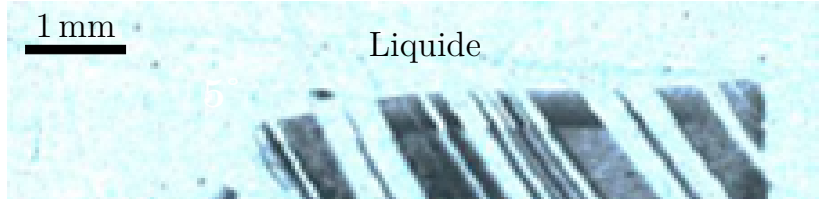


Figure V.7 – Cliché en diffraction de rayons X montrant le front de solidification de l'expérience S1. Le front est globalement plan et les différents grains sont donc en croissance à des surfusions stationnaires très similaires [Rib17].

stationnaire des interfaces rugueuses de chaque grain s'effectue à des surfusions très similaires. Cependant, comme décrit ci-dessus, la surfusion stationnaire est fonction de la désorientation, α , d'un grain. Pour palier ces différences, et s'affranchir de la dépendance entre la surfusion stationnaire et les orientations cristallographiques, il est nécessaire d'adapter le coefficient cinétique A en fonction de la désorientation d'un grain selon : $A_\alpha = A/\cos \alpha$. Pour une valeur quelconque de α , la surfusion stationnaire associée est donc égale à $v_L/A = 1,67 \text{ K}$ et indépendante de α .

Expérimentalement, il est fréquemment observé que les grains maclés germent à des surfusions plus basses, au niveau des sillons de joint de grains ($\Delta T_{N,T}^B$), que au fond des facettes $\{111\}$ de bord ($\Delta T_{N,T}^E$). Pour le monogermes S1, les mesures effectuées sur des clichés de radiographie X [Sta17] ont conduit aux valeurs suivantes : $\Delta T_{N,T}^E = 2,1 \text{ K}$ et $\Delta T_{N,T}^B = 1,8 \text{ K}$.

Le domaine de simulation correspond à la zone d'observation expérimentale et est caractérisé par sa hauteur H , sa largeur L et son épaisseur l . Le point inférieur gauche définit l'origine O du domaine tel que $(x_O, y_O, z_O) = (0, 0, 0)$. Les coordonnées de tous les points P du domaine sont donc positives telles que (x_P, y_P, z_P) avec $0 \leq x_P \leq H, 0 \leq y_P \leq L$ et $0 \leq z_P \leq l$.

Tableau V.1 – Propriétés matériau, paramètres procédé et numériques pour la modélisation de l'expérience du monogermes S1.

	Symbole	Valeur	Unité	Réf.
Propriétés matériau				
Température de fusion	T_f	1687	K	[RSC19]
Loi cinétique linéaire $v = A\Delta T$	A	8×10^{-6}	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-1}$	[Rib17]
Angles d'Euler (germe initial)	$(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$	(354, 44, 3)	°	[Rib17]
Surfusion stationnaire du front	ΔT_s	1,67	K	
Surfusion de germination bord	$\Delta T_{N,T}^E$	2,1	K	[Rib17]
Surfusion de germination bulk	$\Delta T_{N,T}^B$	1,8	K	[Rib17]
Paramètres procédé				
Gradient thermique appliqué	G_{App}	3750	K m^{-1}	[Rib17]
Gradient thermique mesuré	G	1200	K m^{-1}	[Rib17]
Vitesse de refroidissement	$\dot{T}$	-0,016	K s^{-1}	[Rib17]
Vitesse des isothermes	v_L	$13,3 \times 10^{-6}$	m s^{-1}	
Température initiale	T_0	1686	K	
Paramètres numériques				
Taille de cellule	l_{CA}	25×10^{-6}	m	
Dimensions du domaine	H	$7,2 \times 10^{-3}$	m	
	L	4×10^{-3}	m	
	l	$0,3 \times 10^{-3}$	m	
Pas de temps macroscopique	Δt	1	s	
Temps final macroscopique	t_f	700	s	
Vitesse des plans virtuels	$v_{\{111\}}^c$	9×10^{-6}	m s^{-1}	[Sta17]
Surfusion moyenne d'activation	$\Delta T_{\{111\}}^\mu$	2,0	K	
Écart type	$\Delta T_{\{111\}}^\sigma$	0,1	K	

Le champ de température est imposé sur tout le domaine. Comme le montre la figure V.8, les observations expérimentales indiquent que le gradient thermique est légèrement désorienté selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance, conduisant alors à des isothermes non parfaitement planes. L'angle d'inclinaison, β , des isothermes a été mesuré égal à $\beta = 5^\circ$. La température en un point P et à un temps t est donc directement calculée selon l'expression analytique suivante :

$$T(x, t) = T_0 + G \begin{pmatrix} \cos \beta \\ \sin \beta \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ 0 \end{pmatrix} + \dot{T}t \quad (\text{V.2})$$

où $T_0 = T(t = 0, \mathbf{x} = 0)$ est la température à l'origine du domaine et au temps initial.

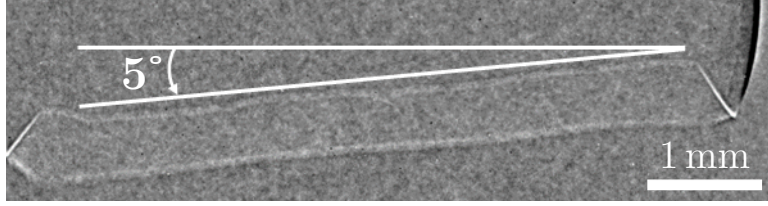


Figure V.8 – Cliché de radiographie X montrant l'inclinaison du front de croissance de l'expérience S1. L'angle d'inclinaison β a été mesuré égal à 5° . Figure adaptée de [Rib17].

La grille automate cellulaire recouvre l'intégralité du domaine et représente 552 960 cellules au total. Le pas de temps Δt est choisi tel que $\Delta t < l_{CA}/v_L = 1,89$ s. Cela permet de s'assurer que la croissance maximale des enveloppes au cours d'un pas de temps soit inférieure à l_{CA} . Le temps de calcul nécessaire pour modéliser la structure entièrement solidifiée ne dépasse pas 35 minutes sur un unique CPU. Ce faible temps de calcul montre ici l'un des avantages majeur de la méthode automate cellulaire comparé aux autres méthodes numériques proposées dans la littérature [Poh10 ; Jha19 ; Qi19] et appliquées à la solidification du silicium polycristallin. Afin de recréer numériquement les cartes EBSD (IPF et CSL), pour chaque face externe du domaine, la position des cellules appartenant à ces faces est enregistrée, ainsi que les 3 angles d'Euler du grain d'appartenance de la cellule. Les fichiers résultants sont ensuite traités avec la toolbox MATLAB MTEX [Hie08].

Finalement, le choix des paramètres de la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ (*i.e.* $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0$ K et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1$ K) est détaillé ultérieurement, lors de l'étude de l'influence de ces mêmes paramètres sur les résultats obtenus numériquement.

3.1.3 Comparaisons qualitatives

Les résultats obtenus avec l'approche CA en 3D sont présentés figure V.9. Cette première simulation est dénotée « I ». Comme il sera détaillé ci-après, plusieurs calculs ont été effectués pour le monogermes S1, visant à être comparés entre eux, et avec l'expérience. Identiquement à la figure V.6, les cartes numériques IPF et CSL sont représentées. L'accord entre les résultats numériques et expérimentaux est globalement bon. On dénombre quatre types de grains différents, aussi dénotés A, B, C et D.

Le grain initial A a simultanément développé des facettes $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$ qui ont elles même, durant leur croissance, permis la germination des grains maclés B et C, respectivement. Ces deux grains ont à leur tour développé les facettes $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$ communes, permettant des germinations de grains A décrivant alors le phénomène de

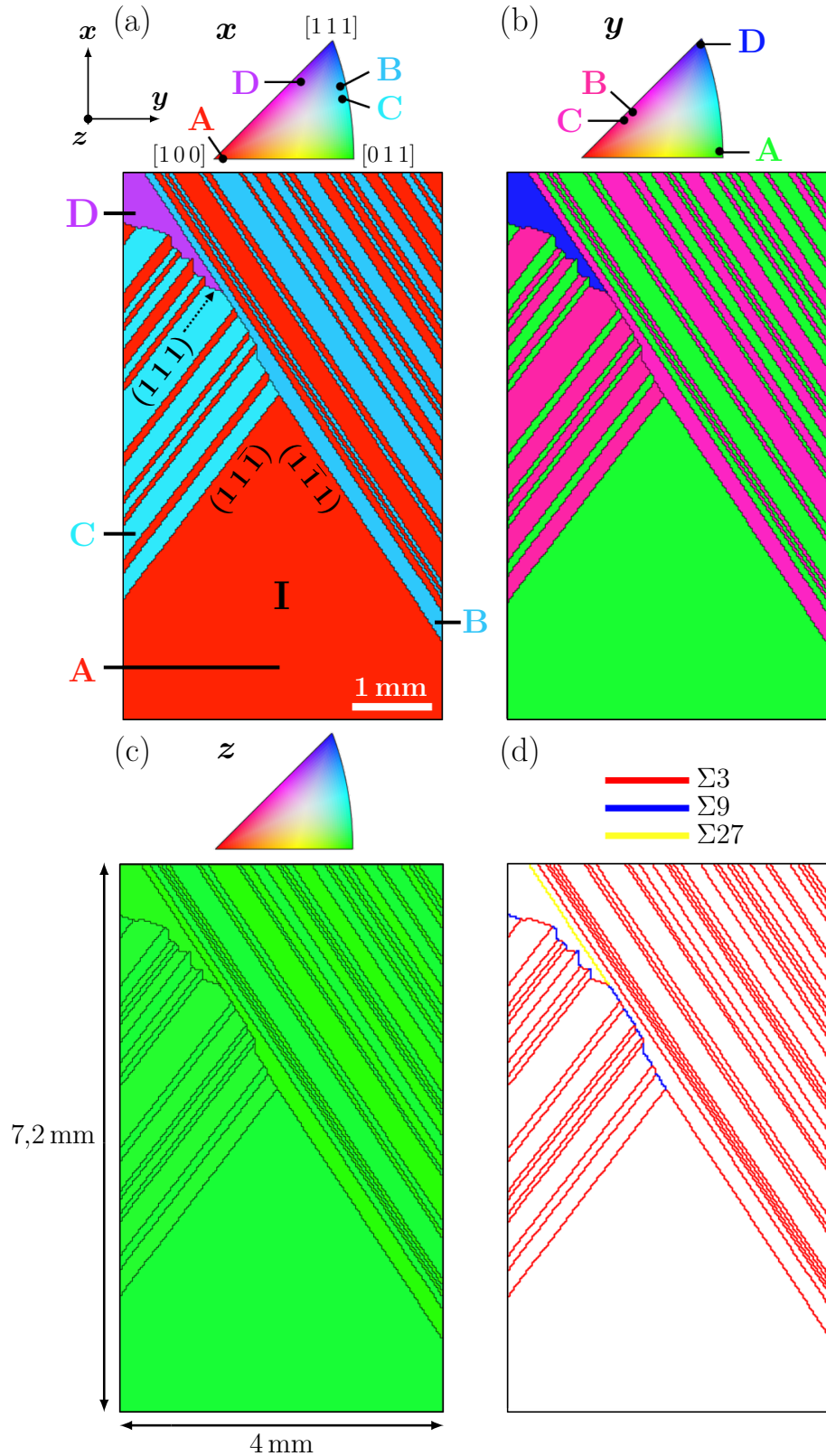


Figure V.9 – Structure de grains simulée en 3D par l’approche CA pour le monogemme S1. Cette simulation est notée « I ». Les propriétés matériau, paramètres procédé et numériques sont listés tableau V.1. (a-c) Cartes IPF selon (a) la direction x de croissance, (b) la direction y transverse à la surface de l’échantillon et (c) la direction z perpendiculaire à la surface de l’échantillon. (d) Carte CSL.

maclage successif. Le grain D a germé sur la facette $\{111\}$ du grain C, comme observé expérimentalement. Les joints de grains maclés sont essentiellement de type $\Sigma 3$ et sont la conséquence de la croissance de deux grains partageant un plan $\{111\}$ commun de maclage, c'est-à-dire les grains A / B, A / C et D / C. Les joints de grains $\Sigma 9$ sont dus quand à eux à la compétition de croissance des grains B / C ou A / D. De manière similaire, l'unique joint de grains $\Sigma 27$ provient de la compétition de croissance des grains D et B.

On note, figure V.9, qu'un unique grain D a germé en relation de macle dans un sillon formé entre un grain C et B. De manière générale, la germination d'un grain maclé peut s'effectuer dans un sillon facetté/rugueux, ou facetté/facetté, en croissance à un joint de grains. La présence d'au moins une facette $\{111\}$ est nécessaire pour déclencher une germination dans le sillon. De plus, figure V.9, avant la germination du grain D, on voit que de multiples grains sont entrés en contact et ont donc pu potentiellement créer un sillon de joint de grains présentant au moins une facette $\{111\}$ active. Néanmoins aucune germination dans un sillon au joint de grains n'est observée. Deux raisons expliquent cette observation. Premièrement, et comme explicité ci-dessus, la présence d'une facette $\{111\}$ en croissance est nécessaire. Si deux grains entrent en compétition de croissance, mais que leur liste respective de surfusions d'activation de plans $\{111\}$ ne permet pas la formation d'une facette, un sillon de type rugueux/rugueux se forme. Aucun grain maclé ne pourra germer au fond de ce sillon. Deuxièmement, si une facette $\{111\}$ est effectivement présente dans le sillon, il faut que la surfusion de germination dans un sillon, $\Delta T_{N,T}^B$, soit effectivement atteinte. En d'autres termes, il est nécessaire que le sillon se « creuse » assez afin que la surfusion locale d'une cellule liquide capturée soit supérieure à $\Delta T_{N,T}^B$ pour déclencher l'évènement de germination. Ce phénomène a d'ailleurs été observé expérimentalement, comme le montre la figure V.10 : les grains B et C sont entrés en contact et ont formé un sillon facetté/facetté. Ces mêmes grains ont aussi permis la germination de deux grains A (figure V.10 (a)), s'étant formés sur des facettes de bord du domaine. La croissance simultanée de ces deux grains A a empêché le développement du sillon facetté/facetté. Aucune germination n'est donc observée dans ce sillon, celui-ci n'ayant pu se développer suffisamment pour déclencher un évènement de maclage sur l'une des deux facettes $\{111\}$ le constituant. Précisons qu'il est difficile, à partir des clichés radiographie X présentés figure V.10 (b-d), d'identifier le sillon comme étant réellement de type facetté/facetté. Les auteurs [Sta17] ont effectivement montré qu'il s'agit d'un sillon facetté/facetté à partir des figures de pôles des plans $\{111\}$ des grains B et C. Finalement, la figure V.11 montre les résultats de la simulation présentée figure V.9 à différents temps macroscopiques.

Numériquement, les listes des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ sont différentes pour chaque grain et sont générées pour une valeur de germe² donnée. De ce fait, si ce germe est identique d'un calcul à un autre, les résultats obtenus le seront tout autant. Il est important de noter que les différences de largeurs des bandes de maclage sont uniquement dues aux surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ qui diffèrent de grains en grains. Ceci est plus précisément détaillé dans l'étude paramétrique qui suit. Les évènements de germination aux bords du domaine et dans un sillon de joint de grains se produisent systématiquement à des valeurs de surfusions égales à $\Delta T_{N,T}^E$ et $\Delta T_{N,T}^B$, respectivement. Nous présentons maintenant des résultats de simulations effectuées pour différentes valeurs

2. Dans ce travail, la fonction `rand()` de la librairie standard C++ est utilisée pour générer des nombres pseudo-aléatoires. L'algorithme sortant ces nombres se base sur un germe de départ. Pour un germe donné, la fonction `rand()` renverra systématiquement les mêmes nombres à chaque exécution du programme.

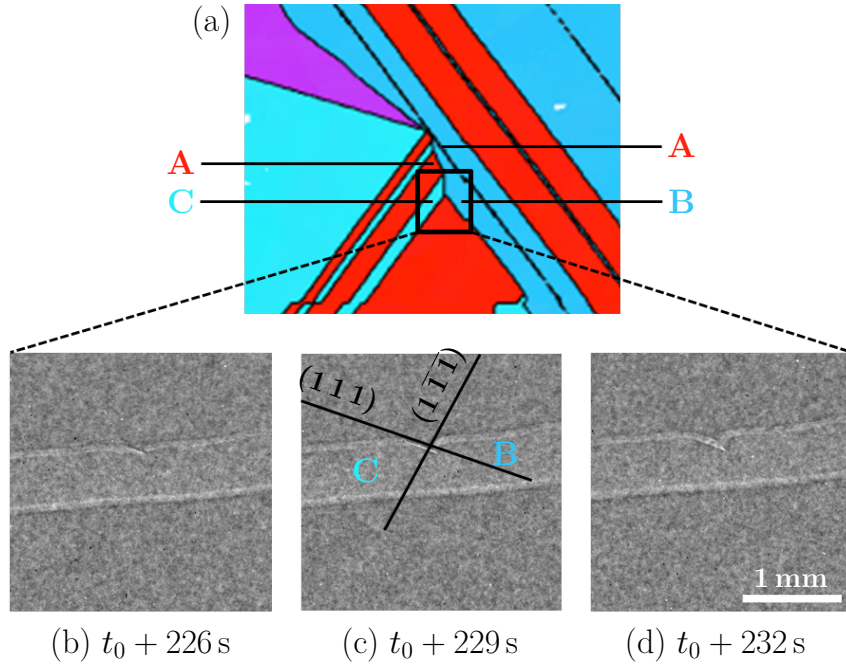


Figure V.10 – Observations expérimentales montrant la croissance d'un sillon facetté/facetté propre aux grains B et C. La croissance de grains voisins entraîne la disparition du sillon. (a) Zoom sur la carte IPF expérimentale selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance. Le rectangle dessiné en noir représente la zone d'intérêt, là où les grains B et C sont entrés en compétition de croissance et ont formé un sillon facetté (111) /facetté $(1\bar{1}\bar{1})$. Clichés radiographie X montrant la croissance du sillon facetté/facetté aux temps (b) $t_0 + 226$ s, (c) $t_0 + 229$ s et (d) $t_0 + 232$ s, respectivement. Figure adaptée de [Sta17].

de germe pour le tirage aléatoire des surfusions d'activation. La figure V.12 montre donc trois résultats de calculs différents, dénotés II, III et IV, où sont représentées, pour chaque calcul, les cartes IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance, uniquement, et les cartes CSL. Les résultats obtenus sont globalement en moins bon accord avec l'expérience (figure V.6), mais les structures obtenues sont dues à des événements autorisés par le modèle numérique.

Les résultats de la simulation II montrés figure V.12 (a-b) sont proches des observations expérimentales et des résultats de la simulation I. Un unique grain D a aussi germé sur une facette (111) du grain C, elle même faisant partie d'un sillon entre les grains C et B. On note, comparé à l'expérience et à la simulation I, que la germination du grain D s'est produite plus tôt. Aussi, le grain B n'a pas survécu à la croissance du grain D, ce dernier étant entré en compétition de croissance avec un grain A créant alors un large joint de grain de type $\Sigma 9$. Dans l'expérience et la simulation I (figure V.6 et figure V.9, respectivement), le grain D a également germé en relation de macles sur un plan (111) d'un grain C au niveau d'un sillon entre ce grain C et un grain B. Ce dernier grain B n'a pas été affecté par la croissance du grain D, leur compétition de croissance ayant résulté en un joint de grains $\Sigma 27$.

Les résultats de la simulation III (figure V.12 (c-d)) montrent qu'aucun grain D n'a germé. Comme détaillé précédemment, pour deux grains donnés, leurs surfusions d'activation de facettes $\{111\}$ n'ont probablement pas permis la création d'un sillon ayant au moins une facette active. Également, un sillon avec une, ou deux facettes $\{111\}$ a pu potentiellement se former, mais celui-ci n'a pas pu survivre assez longtemps afin de

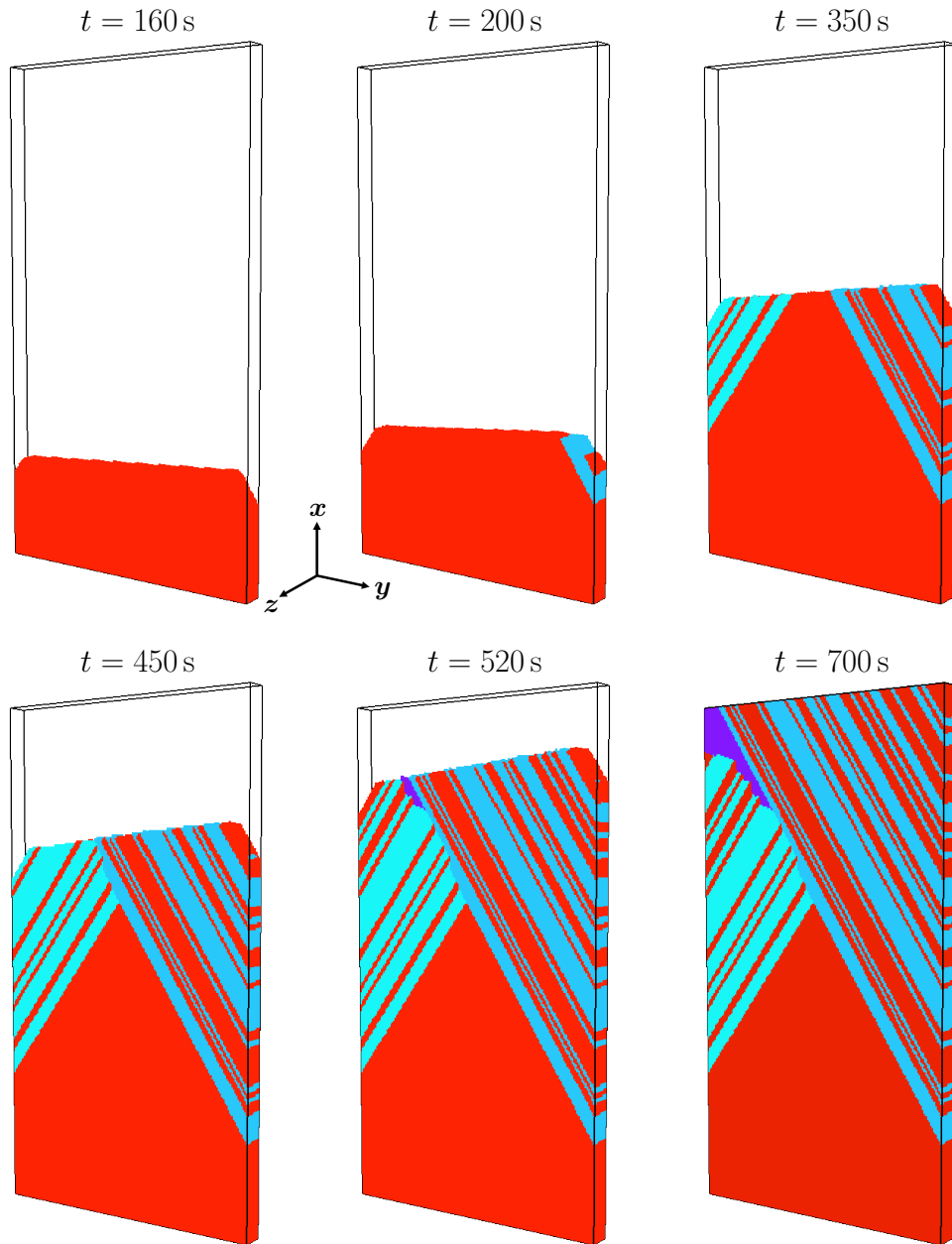


Figure V.11 – Vues 3D de la simulation I à différents temps t de solidification. Les grains sont différenciés utilisant le code couleur associé à la carte IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance.

permettre un évènement de germination, comme détaillé avant et montré expérimentalement figure V.10. Les joints de grains sont donc uniquement de type $\Sigma 3$, pour deux grains en relation de macles (*i.e.* A / B et A / C), et de type $\Sigma 9$ pour deux grains B / C en compétition de croissance. Notons que les résultats de la simulation III ne sont pas fréquemment obtenus et au moins un évènement de germination dans un sillon de joint de grains est usuellement observé.

Dernièrement, la figure V.12 (c) montre une configuration où deux germinations de grains E dans un sillon se sont produites. Par rapport à la direction $\mathbf{x}$ de croissance, la désorientation d'un grain E est très proche de celle d'un grain D. Il convient néanmoins de les différencier. Ces deux germinations ont eu lieu sur un plan de maillage (1 1 1) d'un

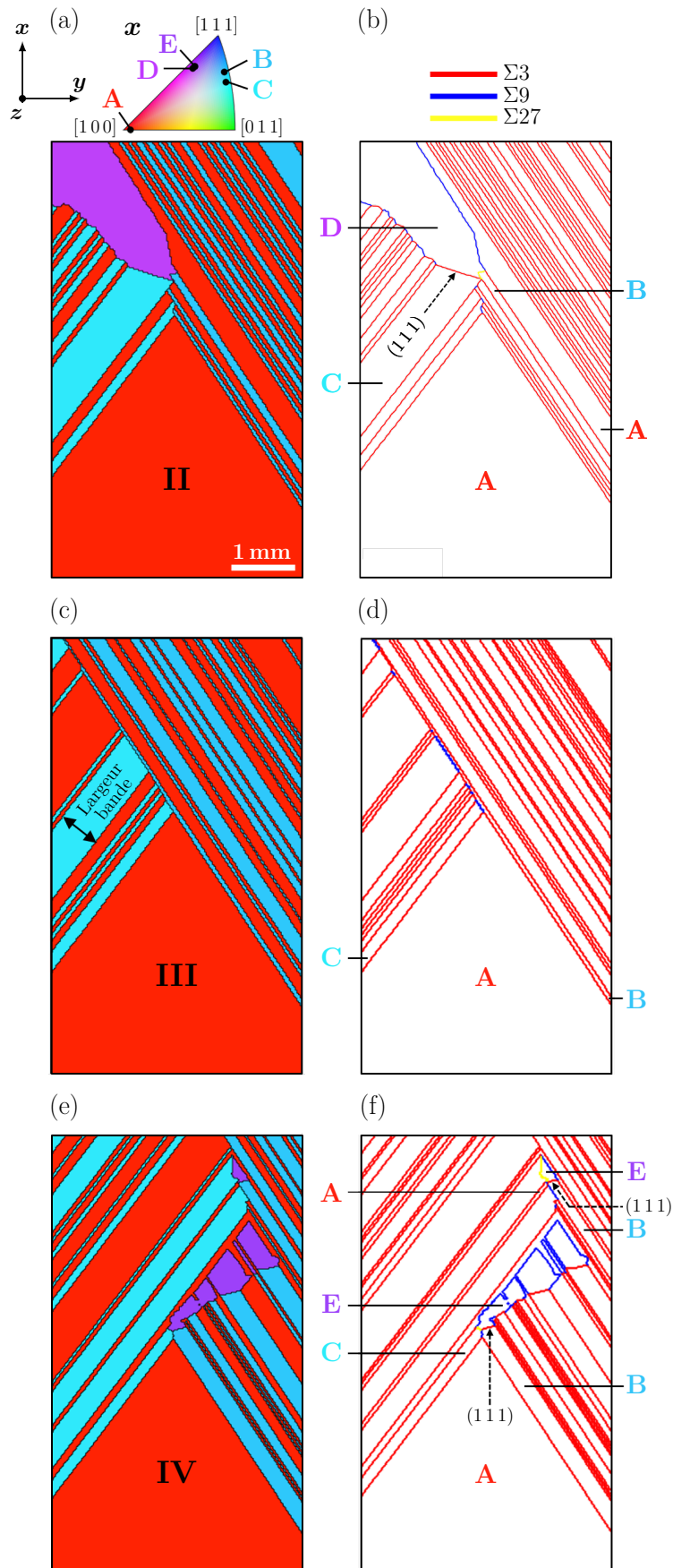


Figure V.12 – Cartes numériques IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance et CSL pour les simulations (a,b) II, (c,d) III et (e,f) IV.

grain B. Le premier évènement s'est produit au fond d'un sillon formé entre des grains B et C, le deuxième dans un sillon entre des grains B et A. Ces deux sillons sont de types facetté/facetté. Cela n'est évidemment pas observable sur la structure entièrement solidifiée, mais a été vérifié durant le processus. Ces résultats ne sont donc pas en accord avec les observations expérimentales (figure V.6), où un grain D a germé sur un plan $\{111\}$ d'un grain C, et non B. Cependant, et comme explicité dans la section 2 du chapitre précédent, on ne peut prévoir au préalable si le maclage s'effectue sur un plan $\{111\}$ du grain B ou C. Autrement dit, pour une cellule liquide donnée de surfusion locale ΔT se situant en fond de sillon facetté/facetté, et respectant la condition $\Delta T > \Delta T_{N,T}^B$, il n'est pas possible de prédire le grain d'appartenance de l'enveloppe de croissance qui va effectivement capturer la cellule liquide.

3.1.4 Comparaisons quantitatives

Des comparaisons quantitatives entre les résultats de la simulation I et l'expérience sont maintenant effectuées et présentées figure V.13. La simulation I est préférée aux simulations II, III et IV car elle montre le meilleur accord avec les observations expérimentales. On étudie les fractions surfaciques des grains A, B, C et D, leur nombre et les largeurs de bandes de maclage (pour les grains A, B et C uniquement). Pour un grain donné, une largeur de bande correspond à la distance, dans la direction normale au plan $\{111\}$ de maclage entre deux évènements de germination. Un exemple pour un grain C est montré figure V.12 (c). La fraction surfacique du germe initial (grain de type A) n'est pas prise en compte car nous nous intéressons ici uniquement aux grains ayant germés avec une relation de macle. De plus, les calculs des largeurs moyennes de bande ont été effectués seulement pour les germinations aux bords du domaine, et donc seulement pour des relations de maclage $\Sigma 3$.

On note ainsi un bon accord entre la simulation et l'expérience. Les fractions surfaciques de grains A sont proches : 41,3 % pour la simulation et 39,8 % pour l'expérience. Le nombre de grains maclés A est légèrement plus important dans la simulation (24) que pour l'expérience (22). Dans cette dernière, la largeur de bande moyenne de grains A est légèrement plus faible (0,10 mm) que dans la simulation (0,11 mm). Autrement dit, dans la simulation les grains A sont plus nombreux et la surface comprise entre les bandes de maclage est plus grande. La combinaison de la largeur moyenne et du nombre de grains explique la légère différence de fraction surfacique. Pour le grain B, la fraction surfacique obtenue par la simulation (33,4 %) est 4,7 % plus faible que dans l'expérience (38,1 %). Le nombre de grains B est identique. La largeur de bandes moyenne expérimentale est néanmoins plus importante (0,12 mm) que celle simulée (0,1 mm), ceci expliquant donc la fraction surfacique expérimentale de grains B plus grande que celle simulée. Un raisonnement similaire peut être appliqué pour expliquer la différence de fraction surfacique observée pour les grains C. Finalement, un unique grain D est présent dans la simulation et l'expérience. Pour les deux cas, le grain a germé à une position verticale très similaire. Ils ont eu des croissances très semblables résultant donc en des fractions surfaciques très proches entre la simulation (2,9 %) et l'expérience (3,2 %).

Le tableau V.2 résume les données quantitatives pour l'expérience et toutes les simulations (I–IV). Les résultats de la simulation II sont très similaires à ceux de la simulation I. Comme décrit précédemment, dans les deux configurations, le grain D a germé dans un sillon de joint de grains, sur une facette $\{111\}$ d'un grain C. Cependant, dans la simulation II, cette germination s'est produite plus tôt lors de la solidification ce qui explique une fraction surfacique du grain D plus importante (13,8 %) comparé à la simulation I (2,9 %).

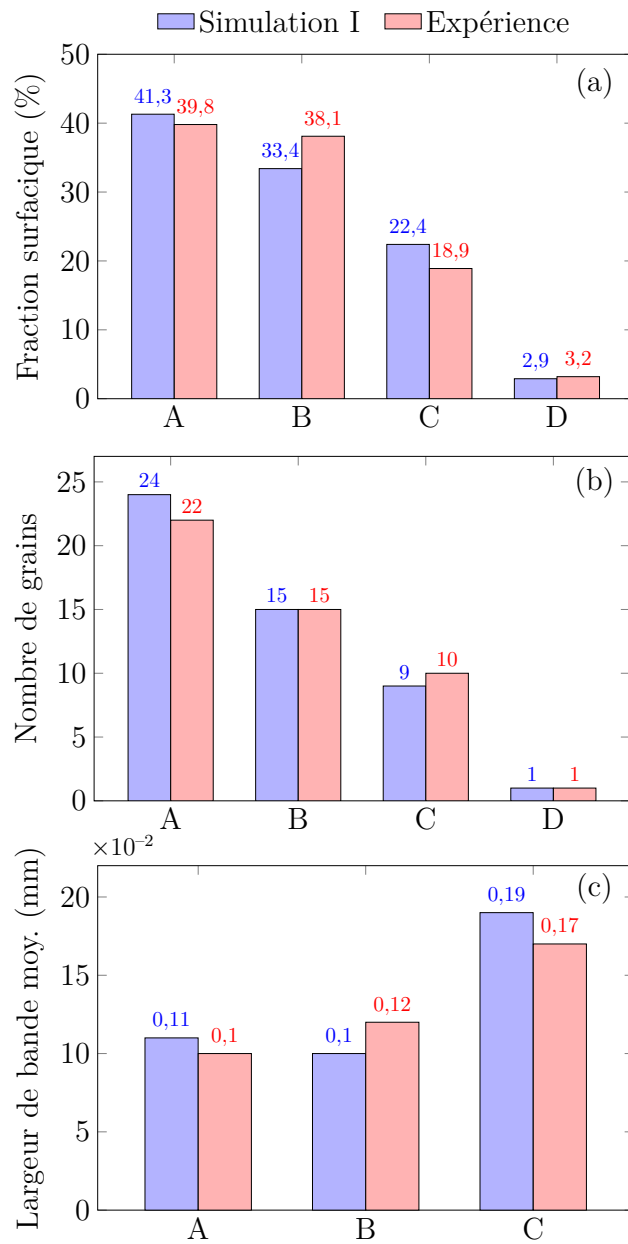


Figure V.13 – Comparaisons quantitatives effectuées entre les observations expérimentales (figure V.6) et les résultats de la simulation I (figure V.9). (a) Fractions surfaciques des grains A, B, C et D. (b) Nombre total des grains. (c) Largeurs moyennes des bandes de maillage, pour les grains A, B et C uniquement. Un exemple de largeur de bande est montré figure V.12 (c). Pour l'expérience, notons que la somme des fractions surfaciques des grain A, B, C et D n'est pas égale à 100 %. Ceci est du au grain jaune situé au voisinage du grain violet, figure V.6 (a), le grain jaune n'étant pas de type A, B, C ou D.

Tableau V.2 – Fractions surfaciques, nombre de grains et largeurs moyennes des bandes de maillage pour l'expérience S1 et toutes les simulations (I–IV).

	Grain	Expérience	Sim. I	Sim. II	Sim. III	Sim. IV
Fraction surfacique (%)	A	39,8	41,3	43,4	52,4	44,3
	B	38,1	33,4	23,5	31,1	22,2
	C	18,9	22,4	18,9	16,5	29,1
	D	3,2	2,9	13,8	0	0
	E	0	0	0	0	4,5
Nombre de grains	A	22	24	24	21	26
	B	14	15	16	14	16
	C	10	9	9	7	11
	D	1	1	1	0	0
	E	0	0	0	0	2
Largeur moyenne de bande (mm)	A	0,10	0,11	0,15	0,12	0,13
	B	0,12	0,10	0,09	0,13	0,13
	C	0,17	0,19	0,16	0,15	0,18

Pour la simulation II, on note une valeur de fraction surfacique de grains C (18,9 %) plus faible, en comparaison avec la simulation I (22,4 %). Comme le grain D a, dans la simulation II, germé à une position verticale moins importante, celui-ci a davantage bloqué la croissance des grains C. De manière similaire, on peut logiquement penser que la fraction surfacique de grains A soit moins importante dans la simulation II que dans la simulation I. Ce n'est cependant pas le cas : 43,4 % pour la simulation II, et 41,3 % pour la I. Ceci s'explique par la largeur de bande moyenne plus importante de grains A dans la simulation II.

Concernant la simulation III, aucune germination dans un sillon de joint de grains n'est observée. Les événements de maillage se sont produits uniquement sur les frontières du domaine. De ce fait, en comparaison avec les simulations I, II et IV, une importante fraction surfacique de grains A est obtenue (52,4 %), la croissance de ces derniers n'étant pas affectée par une ou plusieurs germinations dans des sillons. Peu de grains C (7) ont germé dans la simulation III, de plus la largeur moyenne de bande est relativement faible (0,15 mm). De ce fait, la fraction surfacique de grain C reste inférieure à celles des simulations I et II, bien que dans la simulation III, aucune germination dans un sillon n'ait bloqué la croissance des grains C germés sur les parois.

Finalement, les résultats de la simulation IV sont similaires à ceux des simulations I et II, dans la mesure où des germinations dans des sillons aux joints de grains se sont produites. Ce sont cependant des grains de type E et non D qui ont germé. La croissance des deux grains E s'est effectuée vers la partie droite du domaine, ces derniers ayant germés sur des facettes (1 1 1) de grains B. Ainsi la croissance des grains C n'a pas été gênée par

celle des grains E. De ce fait, en comparaison avec les autres simulations et l'expérience, la fraction surfacique et le nombre de grains C sont les plus importants (29,1 % et 11, respectivement). La fraction surfacique de grains A pour cette dernière simulation est, elle, logiquement la plus basse (22,2 %), la croissance des grains E bloquant celle des grains A.

3.2 Influence des paramètres numériques

On présente maintenant l'influence des différents paramètres numériques, à savoir la surfusion moyenne d'activation des facettes $\{111\}$, $\Delta T_{\{111\}}^\mu$, l'écart type associé, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$, et la vitesse des plans virtuels $v_{\{111\}}^c$. L'influence de ces paramètres est étudiée de manière séparée. On décrit donc la structure finale de grains, les fractions surfaciques des différents grains maclés, ainsi que leur nombre et les largeurs moyennes des bandes. Les propriétés du matériau, les paramètres procédé et numériques utilisés sont les mêmes que précédemment (tableau V.1), à l'exception, donc, de l'unique paramètre numérique étudié. Les différentes structures de grains obtenues sont représentées par des cartes IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance verticale, uniquement. L'expérience S1 et la simulation I font office de référence pour cette étude.

3.2.1 Surfusions moyenne d'activation des facettes

Trois calculs CA sont présentés pour différentes valeurs de $\Delta T_{\{111\}}^\mu$, à savoir 1,7 K, 2,0 K et 2,3 K. L'écart type est fixe et vaut $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1$ K. Le cas $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0$ K correspond aux résultats présentés précédemment, figure V.9 (simulation I). La figure V.14 montrent les structures de grains obtenues selon les différentes valeurs de $\Delta T_{\{111\}}^\mu$. Les différences observées sont notables. Pour $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 1,7$ K, le nombre total de grains est très faible, et les bandes de maclages sont très larges. L'inverse est observé pour $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,3$ K : beaucoup de germinations se sont produites, et les bandes sont globalement très fines.

Afin d'expliquer ces tendances, il convient de rappeler que le gradient de température G et la vitesse de refroidissement $\dot{T}$ sont constants durant la simulation. Les isothermes se déplacent donc à une vitesse constante égale à $v_L = |\dot{T}|/G = 13,3 \mu\text{m s}^{-1}$. Cela résulte en un front de solidification rugueux dont la croissance en régime stationnaire s'effectue à la surfusion $\Delta T_s = v_L/A = 1,67$ K. De plus, nous rappelons le critère d'activation d'une facette $\{111\}$ donnée pour un grain en croissance. La facette s'activera si le grain capture une cellule liquide, située sur une paroi du domaine (respectivement à un joint de grains), et dont la surfusion locale est *inférieure* à la surfusion d'activation de la facette pouvant effectivement se développer sur cette paroi (respectivement au niveau du joint de grains). De plus, tous les événements de germination de grains maclés sur les bords du domaine se produisent systématiquement lorsque la surfusion locale d'une cellule liquide de bord devient supérieure à $\Delta T_{N,T}^E = 2,1$ K. Pour le cas montré figure V.14 (a), la surfusion moyenne d'activation des facettes $\{111\}$ est égale à 1,7 K, soit proche de ΔT_s . Pour un grain et une facette $\{111\}$ donnés, si la surfusion d'activation correspondante, tirée aléatoirement, est telle que $\Delta T_{\{111\}} < \Delta T_s$, alors la facette ne pourra s'activer. En d'autres termes, la surfusion d'activation ne sera jamais atteinte car le front rugueux de croissance du grain va naturellement se stabiliser à la surfusion stationnaire ΔT_s . C'est effectivement le cas du grain 1, figure V.14 (a), où la surfusion d'activation de la facette $(1\bar{1}1)$ commune (partie droite du domaine) vaut 1,61 K. Le grain 1 ne pourra donc jamais capturer une cellule liquide dont la surfusion locale est inférieure à 1,61 K.

De manière similaire, la surfusion d'activation de la facette $(11\bar{1})$ (partie gauche du

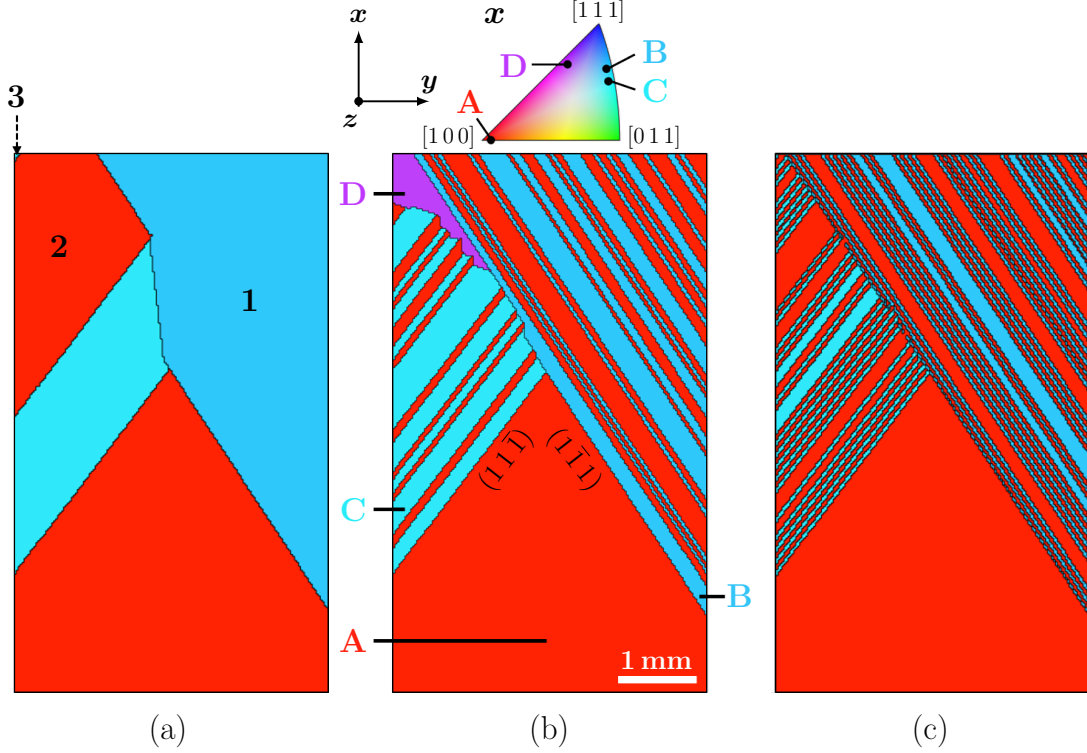


Figure V.14 – Cartes IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance pour différentes valeurs de surfusion moyenne d'activation des facettes $\{111\}$, $\Delta T_{\{111\}}^\mu$. (a) $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 1,7$ K, (b) $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0$ K et (c) $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,3$ K. Pour ces trois cas, l'écart type vaut $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1$ K et la vitesse des plans $\{111\}$ virtuels $v_{\{111\}}^c = 9 \mu\text{m s}^{-1}$.

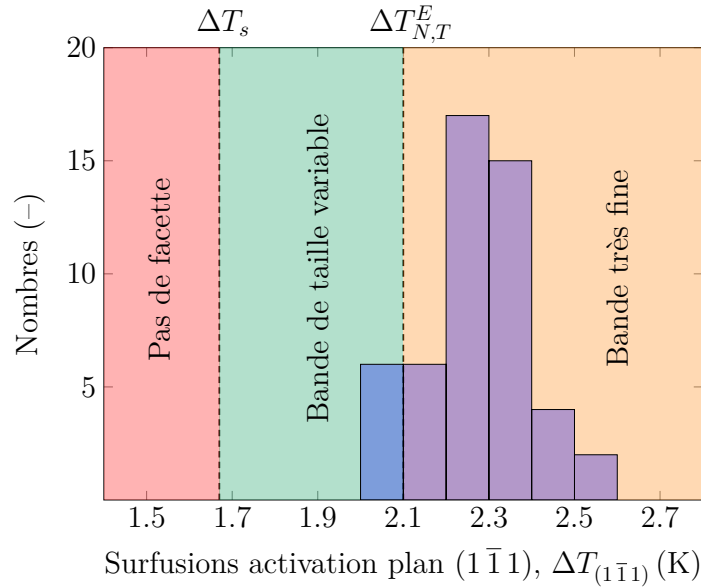


Figure V.15 – Distribution des surfusions d'activation des facettes $(1\bar{1}1)$, $\Delta T_{(1\bar{1}1)}$, obtenues pour $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,3$ K et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1$ K. Les résultats de la simulation pour cette loi de distribution sont montrés figure V.14 (c). La distribution est donc spécifique aux grains ayant germés sur la paroi droite du domaine (succession de plans $(1\bar{1}1)$ de maillage).

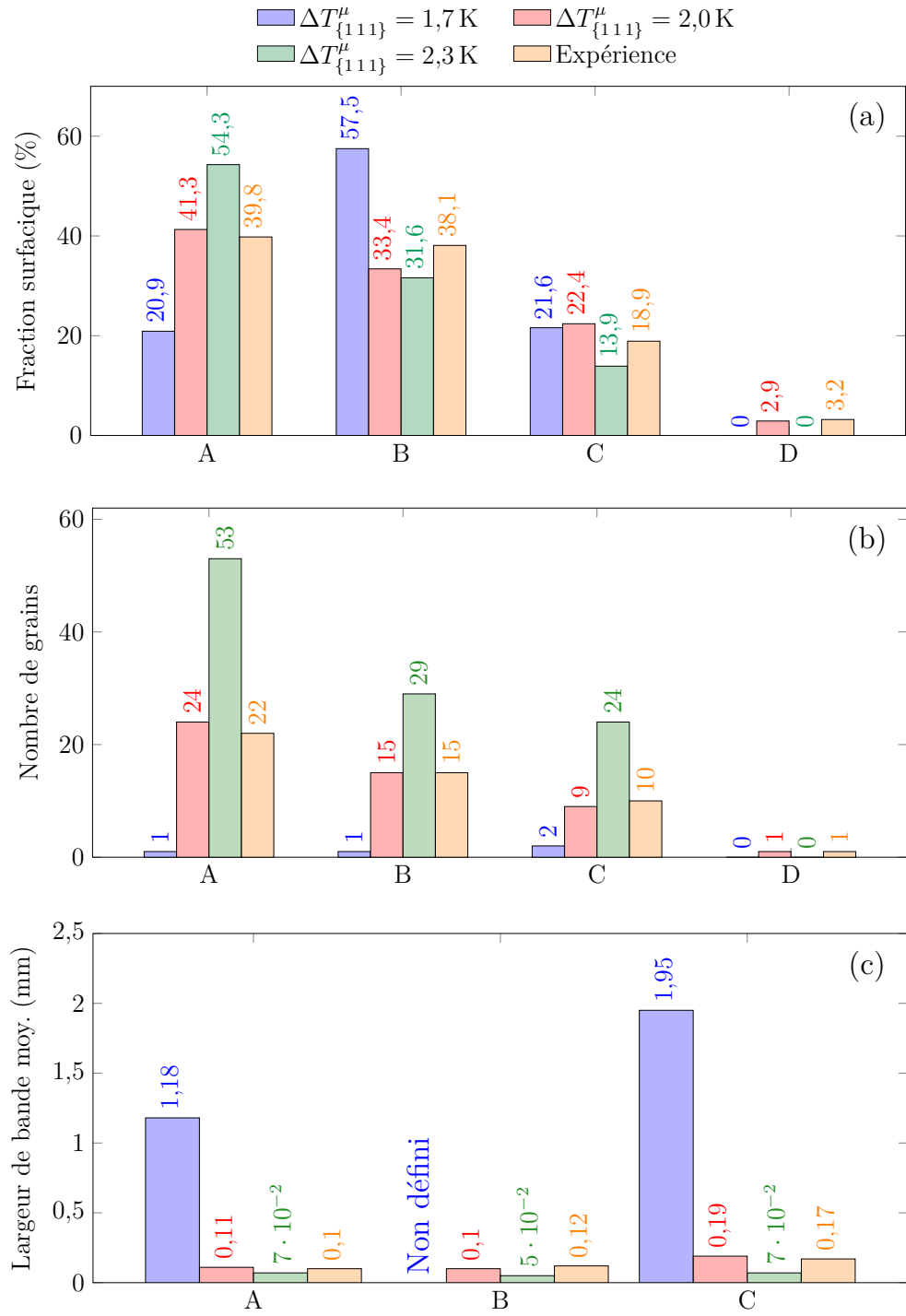


Figure V.16 – Comparaisons quantitatives effectuées pour l'expérience et différentes valeurs de surfusions moyennes d'activation des facettes $\{1\ 1\ 1\}$, $\Delta T_{\{111\}}^\mu$. (a) Fractions surfaciques des grains A, B, C et D. (b) Nombre total des grains. (c) Largeur moyenne des bandes de maillage, pour les grains A, B et C uniquement.

domaine) du grain 2 vaut 1,75 K, soit une surfusion supérieure à ΔT_s . Néanmoins, comme le grain 2 a germé à une surfusion égale à 2,1 K, un certain temps est nécessaire pour que celui-ci capture une cellule liquide de surfusion inférieure à 1,75 K, et puisse activer la facette commune de maclage. Ainsi, le grain 2 a permis tardivement la germination du grain 3, montré tout en haut à gauche de la figure V.14 (a), et une bande de maclage très large est donc obtenue.

Les résultats montrés figure V.14 (c) constituent en fait un cas extrême et opposé au cas (a). On a ici, $\Delta T_{\{111\}}^\mu > \Delta T_{N,T}^E$. De ce fait, quand un nouveau grain maclé germe, la probabilité pour que celui-ci active une nouvelle facette $\{111\}$ commune est très grande et un nouvel événement de germination se produit alors très rapidement sur cette facette, résultant donc en une bande de maclage très fine. La figure V.15 montre la distribution des surfusions d'activation tirées pour le plan $(1\bar{1}1)$ et correspondant aux grains maclés ayant germé sur la paroi droite du domaine (figure V.14 (c)). Trois zones sont représentées : aucune facette $(1\bar{1}1)$ possible pour $\Delta T_{(1\bar{1}1)} < \Delta T_s$, des bandes de tailles variables pour $\Delta T_{(1\bar{1}1)} \in [\Delta T_s, \Delta T_{N,T}^E]$ et des bandes très fines pour $\Delta T_{(1\bar{1}1)} > \Delta T_{N,T}^E$. La majorité des surfusions tirées se situent dans la zone où $\Delta T_{(1\bar{1}1)} > \Delta T_{N,T}^E$, ce qui explique donc les largeurs de bandes observées figure V.14 (c). Ce cas est néanmoins problématique car les bandes étant très fines, il est très peu probable qu'un sillon facetté/facetté se creuse assez afin de permettre une germination au fond de celui-ci, son développement étant alors gêné par la croissance des grains adjacents ayant rapidement germés. Il est en effet observé figure V.14 qu'aucune germination dans un sillon de joint de grains ne s'est produite.

Enfin, la figure V.16 donne les fractions surfaciques, nombres de grains et largeurs de bande moyennes pour les différents cas présentés figure V.14, et l'expérience. Plus la surfusion moyenne d'activation est faible, et plus le nombre de grain est faible. En revanche, les bandes de maclage sont très larges, voire même non définies, comme c'est le cas du grain B, figure V.16 (c). Les fractions surfaciques des différents grains peuvent être très variables. Pour le cas $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 1,7$ K, le grain 1 (de type B) figure V.14 (a) n'a pas formé de facette et a pu croître librement, sa fraction surfacique résultante est donc importante (57,5 %). Inversement, plus la surfusion moyenne d'activation est importante, et plus le nombre de grains germés est grand, avec des bandes de maclage globalement très fines, comme décrit par le cas $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,3$ K.

Dans tous les calculs présentés jusqu'ici, l'écart type choisi ($\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1$ K) est assez faible. On voit qu'il peut être potentiellement « dangereux » d'utiliser un écart type plus grand. Le cas échéant, on pourrait tirer une surfusion d'activation située dans la zone rouge figure V.15, bien que la surfusion moyenne $\Delta T_{\{111\}}^\mu$ soit supérieure à ΔT_s . Le grain concerné ne pourrait alors reformer la facette commune et déclencher ultérieurement un événement de germination. L'influence de l'écart type est donc maintenant abordé.

3.2.2 Écart type

On fixe ici $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0$ K. Trois valeurs d'écart type $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$ sont étudiées : 0,03 K, 0,1 K et 0,3 K. Les structures de grains obtenues sont présentées figures V.17. Pour le cas (a), l'écart type est très faible, (*i.e.* $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,03$ K) et comme attendu, les largeurs de bande sont homogènes. On note par ailleurs qu'un événement de germination dans un sillon au joint de grains s'est produit, mais le grain D résultant n'a pas survécu à la croissance des grains adjacents. Identiquement à ce qu'illustre la figure V.15, La figure V.18 montre la distribution des surfusions d'activation tirées pour les plans $(1\bar{1}1)$ de chaque grain ayant germé sur la paroi droite du domaine. On voit donc, naturellement,

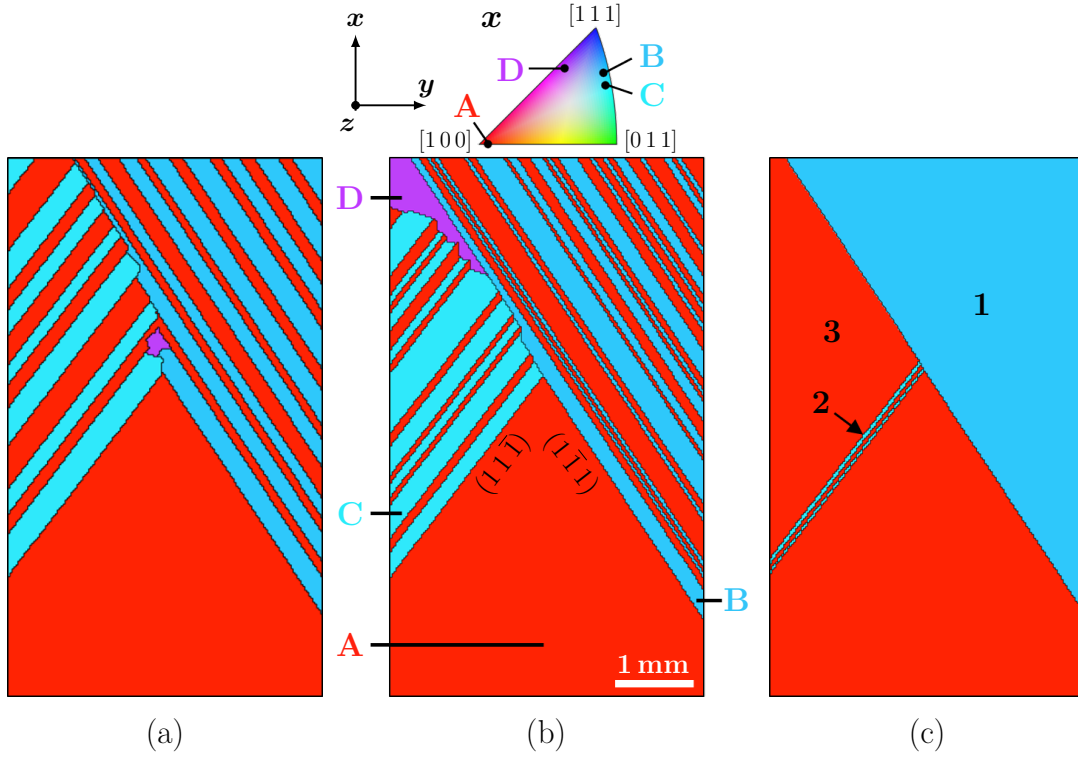


Figure V.17 – Cartes IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance pour différents écarts types, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$. (a) $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0.03$ K, (b) $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0.1$ K et (c) $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0.3$ K. Pour ces trois cas, la surfusion moyenne d'activation vaut $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2.0$ K et la vitesse des plans $\{111\}$ virtuels $v_{\{111\}}^c = 9 \mu\text{m s}^{-1}$.

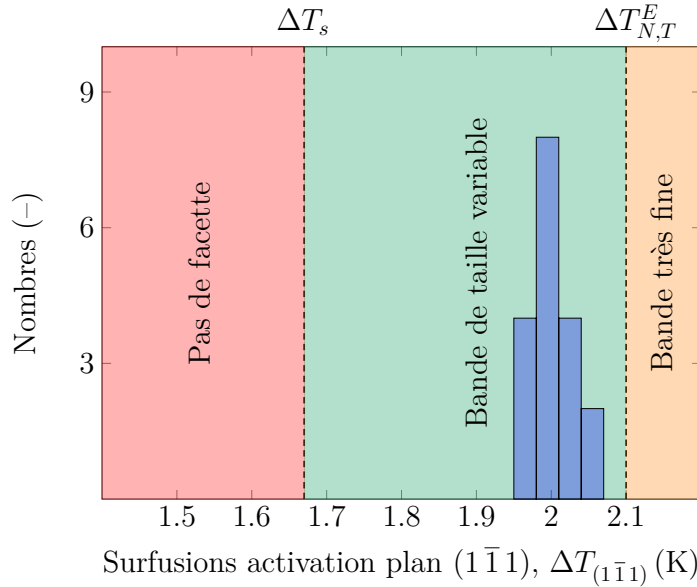


Figure V.18 – Distribution des surfusions d'activation des facettes $(1\bar{1}1)$, $\Delta T_{(1\bar{1}1)}$, obtenues pour $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2.0$ K et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0.03$ K. Les résultats de la simulation pour cette loi de distribution sont montrés figure V.17 (a).

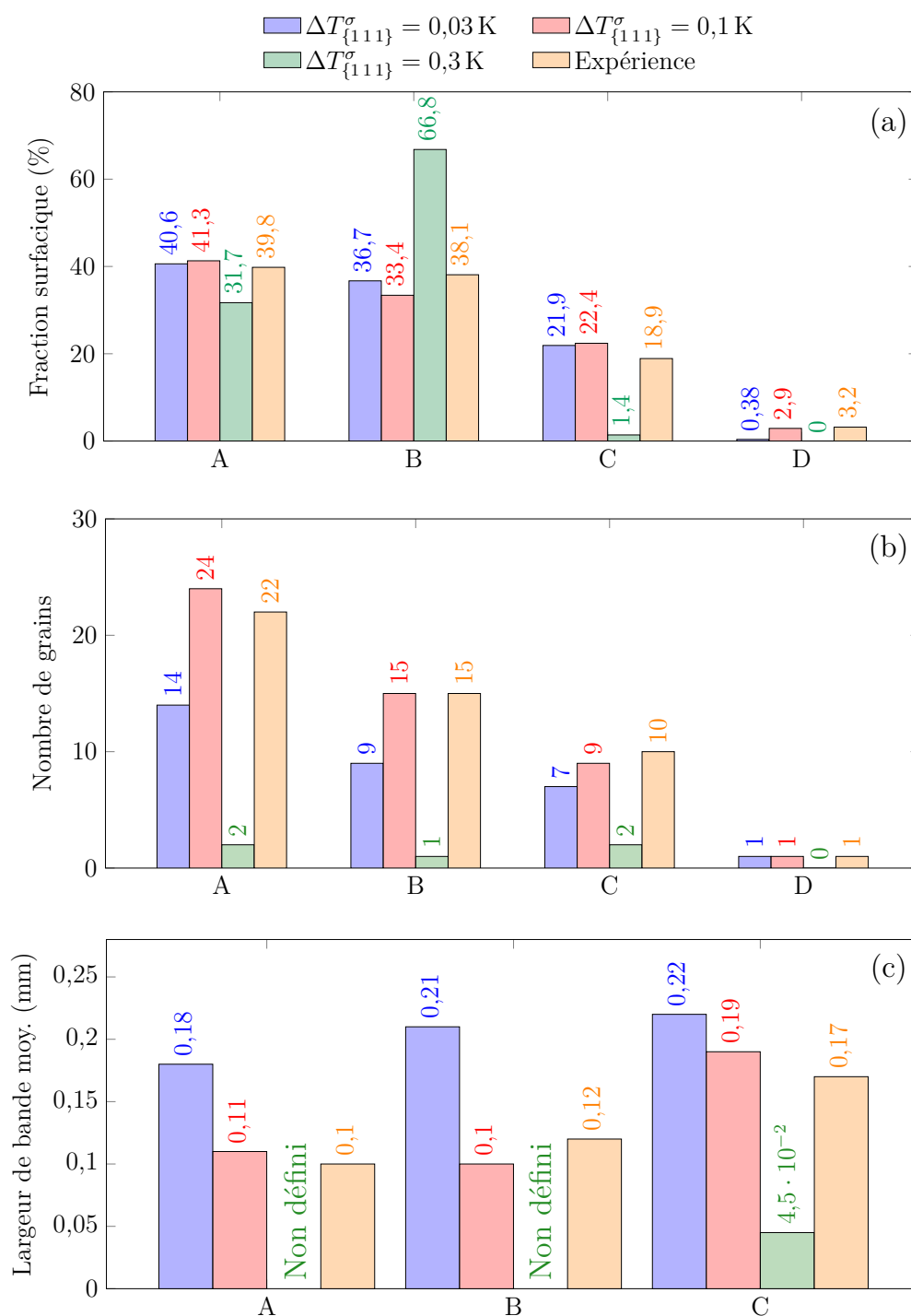


Figure V.19 – Comparaisons quantitatives effectuées pour l'expérience et différents écarts types, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$. (a) Fractions surfaciques des grains A, B, C et D. (b) Nombre total des grains. (c) Largeur moyenne des bandes de maillage, pour les grains A, B et C uniquement.

que les valeurs sont très centrées autour de $\Delta T_{\{111\}}^{\mu} = 2,0 \text{ K}$. Aucune valeur supérieure à $\Delta T_{N,T}^E$ n'est tirée, et de ce fait aucune bande « très fine » n'est observée figure V.17 (a). Ce cas est intéressant, car la figure V.19 (a) montre que les fractions surfaciques des grains A, B et C sont proches de celles obtenus pour $\Delta T_{\{111\}}^{\sigma} = 0,1 \text{ K}$, qui constitue le cas numérique de référence. En fait, pour $\Delta T_{\{111\}}^{\sigma} = 0,01 \text{ K}$ les bandes sont plus larges (figure V.19 (c)) et le nombre total de grains est donc plus faible (figure V.19 (b)). Ces deux effets se compensant, il n'est pas surprenant d'obtenir des fractions surfaciques similaires.

Les résultats montrés figure V.17 (c) correspondent à $\Delta T_{\{111\}}^{\sigma} = 0,3 \text{ K}$ et sont très représentatifs du potentiel problème d'utiliser un écart type plus important. Pour les grains 1 et 3, leur surfusion d'activation des facettes $(11\bar{1})$ et $(1\bar{1}1)$, sont respectivement égales à 1,62 K et 1,59 K. Ces deux valeurs étant inférieures à la surfusion stationnaire ΔT_s (zone rouge figures V.18), les deux facettes communes $(11\bar{1})$ et $(1\bar{1}1)$ n'ont pas pu à nouveau s'activer, et aucune germination successive n'est observée. En revanche, la surfusion d'activation de la facette $(11\bar{1})$ du grain 2 est égale à 2,23 K, soit supérieure à $\Delta T_{N,T}^E$, et donc une bande très fine est obtenue (zone orange figure V.18).

3.2.3 Vitesse des plans virtuels $\{111\}$

L'influence de la vitesse des plans virtuels $\{111\}$, $v_{\{111\}}^c$, sur la croissance d'un grain équiaxe est décrite dans la sous-section 1.2 du chapitre précédent (figure IV.10, page 104). Nous présentons ici plus précisément l'influence de $v_{\{111\}}^c$ sur les événements de maclages successifs. La loi de distribution des surfusions d'activation des facettes est telle que $\Delta T_{\{111\}}^{\mu} = 2,0 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^{\sigma} = 0,1 \text{ K}$. Trois valeurs de $v_{\{111\}}^c$ sont utilisées, à savoir $6 \mu\text{m s}^{-1}$, $9 \mu\text{m s}^{-1}$ et $12 \mu\text{m s}^{-1}$. La figure V.20 montre les résultats associés à ces trois vitesses.

Le cas le plus évident est celui montré en figure V.20 (c) où $v_{\{111\}}^c = 12 \mu\text{m s}^{-1}$. Aucune germination n'est observée, tout simplement car le grain initial n'a pas développé de facette aux frontières du domaine. Plus précisément, le grain a en fait activé les facettes $(11\bar{1})$ et $(1\bar{1}1)$ aux bords gauche et droit, respectivement, mais la vitesse des facettes $v_{\{111\}}^c$ imposée étant trop importante, le front de croissance du grain n'a pas été en mesure de dépasser les plans virtuels et activer l'algorithme de capture conditionnée. La croissance du grain repose donc uniquement sur l'algorithme de capture standard et un front plan se développe. Quantitativement, et comme montré sur les figures V.21 (a-c), cela résulte donc naturellement en une fraction surfacique de grain A égale à 100 %, ce grain étant unique et ayant une largeur de bande de maclage non définie.

L'influence d'une faible vitesse $v_{\{111\}}^c$, figure V.20 (a), est en revanche plus délicate à mettre en évidence. Prenons pour exemple le grain initial qui a successivement développé une facette $(11\bar{1})$ et $(1\bar{1}1)$ et déclenché les germinations des grains C et B, respectivement sur ces mêmes facettes. Pour le cas (a) (*i.e.* $v_{\{111\}}^c = 6 \mu\text{m s}^{-1}$), on constate que ces germinations se sont produites plus tôt, comparé au cas (b) (*i.e.* $v_{\{111\}}^c = 9 \mu\text{m s}^{-1}$) comme le montre les lignes de germinations tracées en (a). En effet, pour le premier cas, la vitesse des plans virtuels étant plus faible, la surfusion au fond d'une facette en croissance va augmenter plus rapidement avec le temps, cela favorisant donc un événement de maclage. Néanmoins, si l'effet d'une plus faible vitesse est difficile à préciser, c'est particulièrement car la croissance d'une facette est avant tout tributaire de son activation au préalable. En d'autres termes, pour une facette donnée, l'influence de $v_{\{111\}}^c$ est visible seulement si cette facette est effectivement activée.

Pour mieux observer l'influence de la vitesse, il conviendrait donc de faire deux calculs

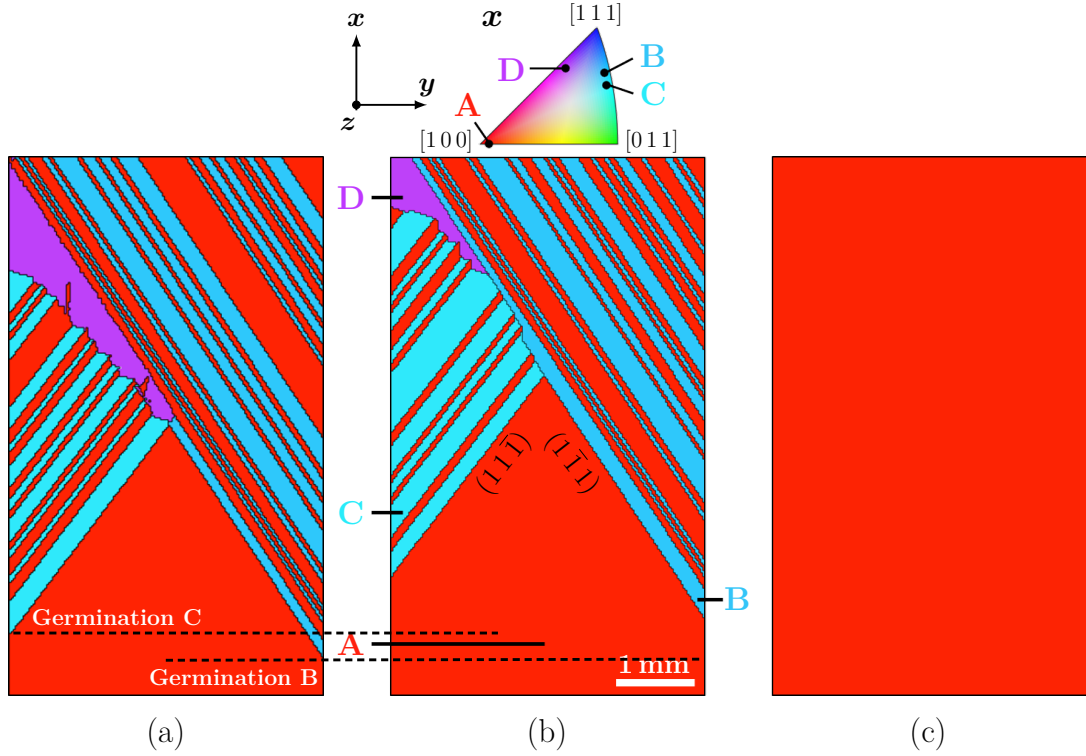


Figure V.20 – Cartes IPF selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance pour différentes vitesses des plans $\{111\}$ virtuels, $v_{\{111\}}^c$. La loi de distribution des surfusions d'activation est telle que $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2,0 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1 \text{ K}$. (a) $v_{\{111\}}^c = 6 \mu\text{m s}^{-1}$, (b) $v_{\{111\}}^c = 9 \mu\text{m s}^{-1}$ et (c) $v_{\{111\}}^c = 12 \mu\text{m s}^{-1}$.

avec une loi de distribution des surfusions d'activation d'écart type nul. Tous les grains auraient donc les mêmes surfusions d'activation des facettes $\{111\}$. Pour une vitesse $v_{\{111\}}^c$ donnée, on obtiendrait alors des bandes de maillage très régulières. Si ce calcul était reproduit avec une valeur $v_{\{111\}}^c$ plus faible, on observerait des bandes régulières, mais plus fines, et un nombre total de grains plus important. Les germinations successives seraient favorisées par la faible vitesse de croissance des facettes.

3.2.4 Conclusion sur l'étude paramétrique

L'étude sur l'influence des paramètres numériques fait principalement ressortir la grande dépendance entre la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ et la structure de grains finale. En effet, le choix de la surfusion moyenne $\Delta T_{\{111\}}^\mu$ est conditionné par la surfusion stationnaire ΔT_s et la surfusion de germination aux bords du domaine $\Delta T_{N,T}^E$. Pour $\Delta T_{\{111\}}^\mu \approx \Delta T_s$ (figure V.14 (a)), les bandes de maillage obtenues sont très larges et le nombre total de grains très faible. Néanmoins, ce choix est en fait « dangereux » car il est tout à fait possible, pour un grain donné, de tirer une surfusion d'activation $\Delta T_{\{111\}}$ telle que $\Delta T_{\{111\}} < \Delta T_s$. Dans ce cas, le grain ne pourra activer la facette $\{111\}$ commune de maillage et permettre un événement de germination ultérieur sur celle-ci. Inversement, pour un grain donné, une surfusion d'activation tirée telle $\Delta T_{\{111\}} > \Delta T_{N,T}^E$ conduit alors à une bande de maillage très fine. Le grain activerait et développerait une facette immédiatement après sa germination, et une nouvelle macle pourrait alors rapidement se former sur cette facette. La structure de grains finale serait

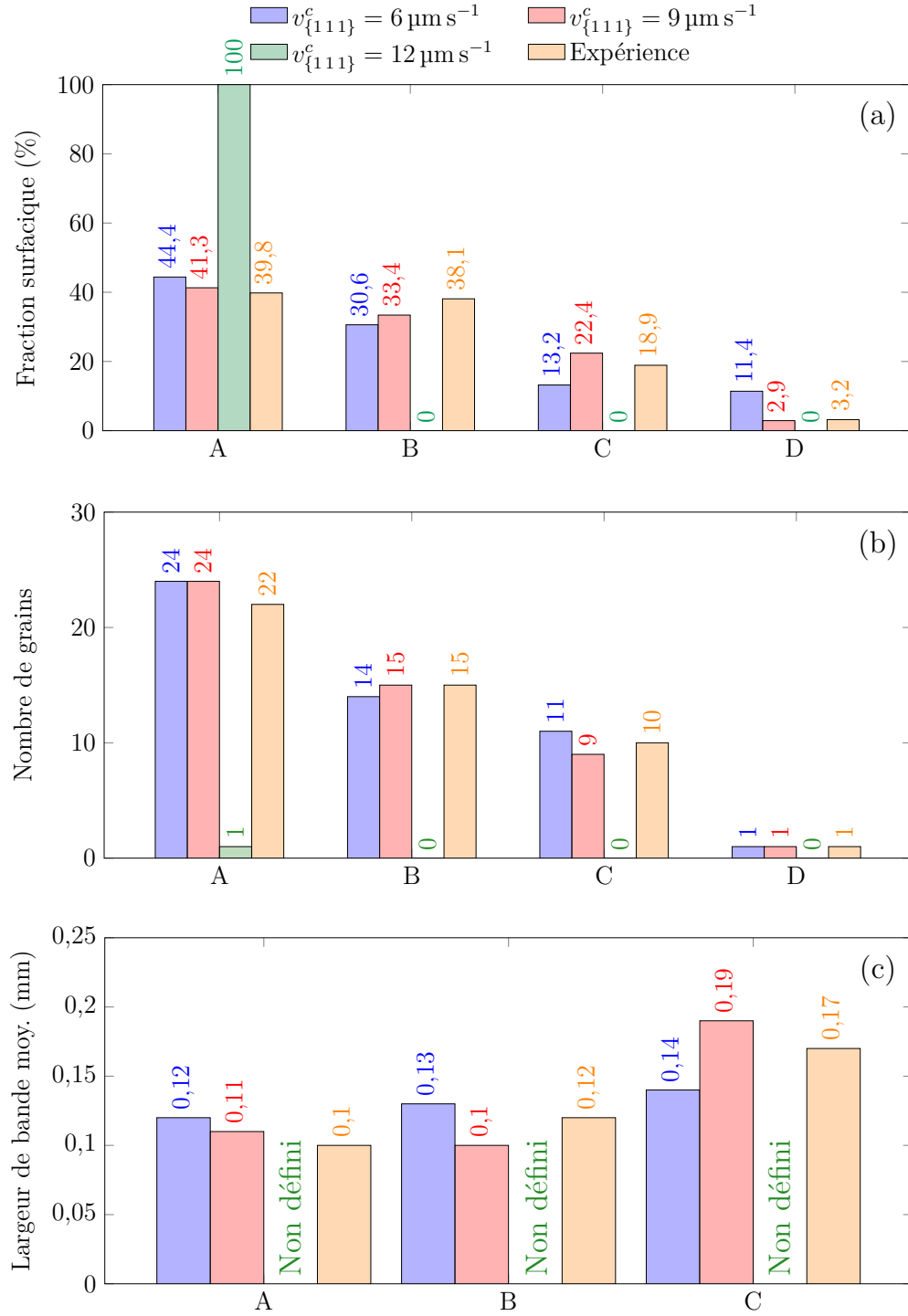


Figure V.21 – Comparaisons quantitatives effectuées pour l'expérience et différentes vitesses $v_{\{111\}}^c$ des plans $\{111\}$ virtuels. (a) Fractions surfaciques des grains A, B, C et D. (b) Nombre total des grains. (c) Largeur moyenne des bandes de maillage, pour les grains A, B et C uniquement.

alors composée de bandes très fines et d'un grand nombre de grains maclés (figure V.14 (c)). Les observations expérimentales (figure V.6) montrent des bandes relativement larges, mais aussi très fines. Pour cette raison, une valeur $\Delta T_{\{111\}} \approx \Delta T_{N,T}^E$, mais $\Delta T_{\{111\}} < \Delta T_{N,T}^E$, *i.e.* $\Delta T_{\{111\}} = 2 \text{ K}$, permet de s'approcher de cette configuration.

Ces conclusions sont néanmoins à corrélérer avec l'écart-type $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$. Il a été montré que, naturellement, une très faible valeur de $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$ conduit à des bandes de maclage régulières (figure V.17 (a)). Utiliser une valeur de $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$ plus importante représente en revanche un certain risque, c'est-à-dire celui de tirer une surfusion d'activation inférieure à ΔT_s , bien que la surfusion moyenne $\Delta T_{\{111\}}^\mu$ soit éloignée de ΔT_s (*i.e.* $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,3 \text{ K}$, figure V.17 (c)). Une valeur intermédiaire de $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$ (*i.e.* $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1 \text{ K}$, figure V.17 (b)) permet ainsi d'obtenir une certaine dispersion de largeur de bande, comme observée expérimentalement. La figure V.13 témoigne donc du bon accord entre les résultats numériques obtenus pour la loi de distribution définie par $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 2 \text{ K}$, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,1 \text{ K}$ et les observations expérimentales.

Une autre approche permettant de simuler les variations des largeurs des bandes de maclage est de considérer non pas une distribution sur les surfusions d'activation, mais sur les surfusions de germination. Le but est d'activer les facettes communes de maclage à chaque germination et les largeurs des bandes résulteraient alors de valeurs plus ou moins élevées des surfusions de germination tirées. Cette méthode n'a cependant pas été retenue, car activer une facette directement après la germination d'un grain maclé empêche de modéliser une transition rugueuse $\rightarrow$ facetté, telle que représentée figure IV.24, page 124.

Finalement, l'étude sur l'influence de la vitesse des plans $\{111\}$ virtuels révèle que l'utilisation d'une valeur importante ne permet pas la croissance d'une, ou plusieurs facettes, bien que celles-ci soient effectivement activées. Les plans $\{111\}$ virtuels se déplaçant à une vitesse plus importante que l'interface solide/liquide, il n'est donc pas possible d'activer l'algorithme de capture conditionnée permettant la croissance des facettes. Une faible vitesse des plans virtuels influence la croissance d'une facette, uniquement si celle-ci est effectivement activée. Plus la vitesse est faible, et plus un événement de germination se produira rapidement sur cette facette.

3.3 Monogermes S2

3.3.1 Structure de grains expérimentale

Nous présentons maintenant les résultats d'une seconde expérience, utilisant le même dispositif expérimental présenté section 1 et pour les mêmes paramètres procédés listés tableau V.1. Comparé au monogermes S1, seules les orientations cristallographiques du grain initial diffèrent. Les observations expérimentales sont montrées figure V.22. Comme pour le monogermes S1, la zone d'observation ne correspond pas à l'échantillon entier. Cette zone est rectangulaire de hauteur 5,8 mm, de largeur 4,8 mm et d'épaisseur 300 μm . Les cartes IPF sont représentées selon la direction de croissance (a), la direction transverse à la surface de l'échantillon (b) ainsi que la direction perpendiculaire à cette même surface (c). La figure V.22 (d) donne la carte CSL.

Comme pour le monogermes S1 (figure V.6), la majorité des joints de grains sont de type $\Sigma 3$. Des joints de grains maclés $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$ sont aussi observés. Les principaux grains maclés sont aussi dénotés A, B, C et D. Les grains B et C ont germé au bord du domaine, sur les facettes $(1\bar{1}1)$ et $(\bar{1}1\bar{1})$ du grain A, respectivement. Le grain D a germé sur une facette $(11\bar{1})$ d'un grain C, cette facette faisant partie d'un sillon formé entre les grains B et C. Cette germination n'ayant pas été observée *in situ*, il n'est donc pas possible de

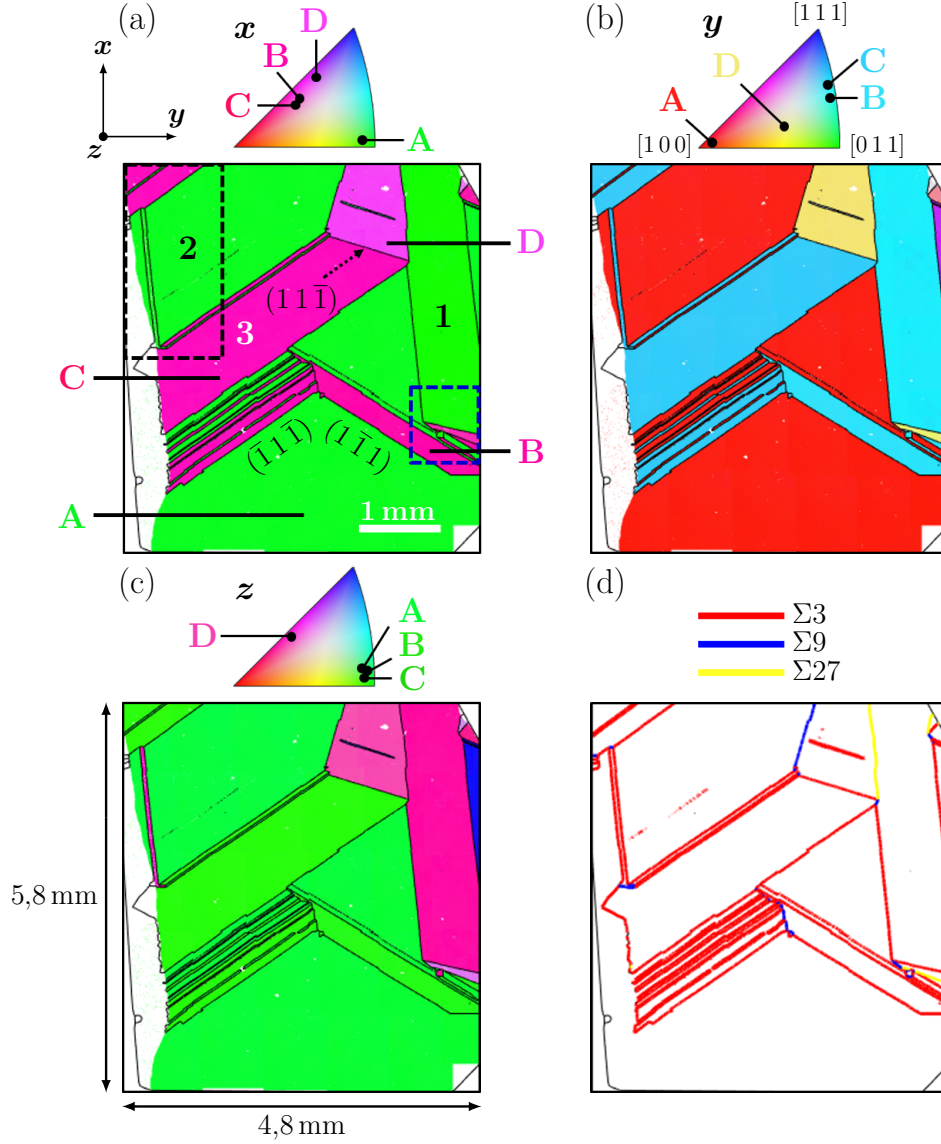


Figure V.22 – Structure de grains expérimentale pour le monoggerme S2. (a-c) Cartes EBSD selon (a) la direction x de croissance, (b) la direction y transverse à la surface de l'échantillon et (c) la direction z perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Les orientations cristallographiques des différents grains maclés sont dénotées par les lettres A, B, C et D. (d) Carte CSL mettant en évidence les trois principaux types de joints de grains maclés, à savoir $\Sigma 3$, $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$. Les chiffres 1, 2 et 3 et les rectangles en traits pointillés noirs et bleus sur (a) servent à détailler les différences avec les résultats obtenus par simulation. Figure adaptée de [Rib17].

savoir si ce sillon est de type facetté/facetté, ou facetté/rugueux. Sur la figure V.22 (a), les chiffres 1, 2 et 3, ainsi que les deux rectangles en traits pointillés serviront à expliquer les différences obtenues entre la simulation et l'expérience.

3.3.2 Mise en donnée du calcul

Comme précisé précédemment, par rapport au monogermes S1, ce cas diffère uniquement par les orientations cristallographiques du germe initial. On a ici : $(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = (267^\circ, 45^\circ, 3^\circ)$. Les clichés radiographie X de cette expérience n'étant pas disponible, il n'a donc pas été possible de mesurer localement les surfusions de germination de grains maclés aux bords du domaine ou dans un sillon de joint de grains. Les valeurs des surfusions de germination données tableau V.1 sont donc utilisées (*i.e.* $\Delta T_{N,T}^E = 2,1 \text{ K}$ et $\Delta T_{N,T}^B = 1,8 \text{ K}$). Le champ thermique est imposé sur tout le domaine. Comme, il n'est pas possible de connaître l'inclinaison des isothermes, le champ thermique appliqué est donc défini par l'équation (V.2) où $\beta = 0^\circ$, c'est-à-dire que l'on suppose des isothermes parfaitement planes. La vitesse des plans $\{111\}$ virtuels est ici égale à $v_{\{111\}}^c = 7 \mu\text{m s}^{-1}$, et correspond aux mesures expérimentales effectuées sur cet échantillon [Sta17]. Les paramètres numériques restants sont ceux donnés tableau V.1.

3.3.3 Comparaisons qualitatives

La figure V.23 montre la structure de grain simulée (cartes IPF et CSL). Comme pour le monogermes S1, le grain initial de type A a simultanément développé deux facettes ($\bar{1}1\bar{1}$) et $(11\bar{1})$ qui ont elles même, durant leur croissance, permis la germination des grains maclés B et C, respectivement. Ces grains ont par la suite déclenché des événements de germinations successives. Le grain D a germé sur la facette $(11\bar{1})$ d'un grain C, comme observé expérimentalement. Les joints de grains maclés sont essentiellement de type $\Sigma 3$ et sont la conséquence de la croissance de deux grains partageant un plan $\{111\}$, c'est-à-dire les grains A / B, A / C et D / C. Les joints de grains $\Sigma 9$ résultent de la compétition de croissance des grains B / C ou D / A. Les joints de grains $\Sigma 27$ résultent de la compétition de croissance des grains D et B.

En comparaison avec le monogermes S1, l'accord qualitatif entre les résultats numériques et expérimentaux est globalement moins bon. Les rectangles en traits pointillés bleus et noirs, et les chiffres 1 et 2, représentés figure V.22 (a), expliquent partiellement ces différences. Au niveau du rectangle bleu (*i.e.* partie droite du domaine), on note que la séquence de germinations successives de type A-B-A n'est pas respectée, car un grain D (notamment mieux visible, en jaune, figure V.22 (b)) a germé. Ce grain D a ensuite permis la germination d'un grain repéré par le chiffre 1. Ce grain n'est pas de type B, comme on pourrait le supposer sur les cartes IPF montrées figures V.22 (a) et (b). En effet, on voit en (c), via le code couleur, que les orientations cristallographiques du grain 1 ne correspondent pas à celles d'un grain B. Sur la paroi droite du domaine, les plans $\{111\}$ de maclages successifs ne sont donc plus uniquement des facettes $(\bar{1}1\bar{1})$ et cela change grandement la structure de grains finale. Numériquement, la germination du grain D sur la frontière droite du domaine n'étant pas simulée, une structure de type A-B-A est obtenue et le plan $(11\bar{1})$ de maclage est donc l'unique facette commune s'étant développée à cette frontière.

La deuxième particularité observée expérimentalement est représentée au niveau du rectangle noir figure V.22 (a). Une large bande d'un grain A, lui même repéré par le chiffre 2, est obtenue. Durant son développement, ce grain a gêné la croissance du grain D ayant

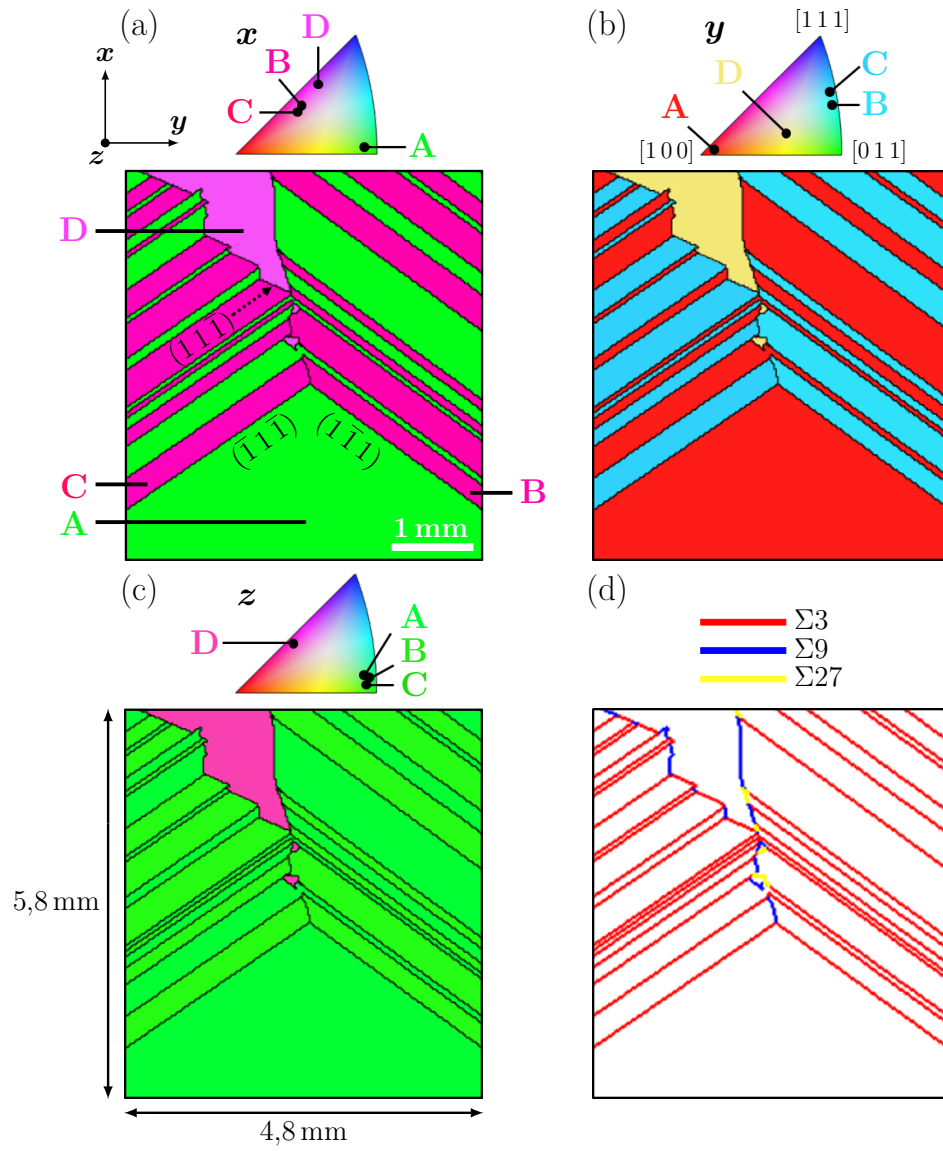


Figure V.23 – Structure de grains simulée pour le monoggerme S2. (a-c) Cartes IPF selon (a) la direction x de croissance, (b) la direction y transverse à la surface de l'échantillon et (c) la direction z perpendiculaire à la surface de l'échantillon. (d) Carte CSL.

germé dans un sillon de joint de grains. Dans la simulation, figure V.23, la croissance du grain D n'a pas complètement été gênée par celle d'un unique grain A. On observe en effet une alternance de séquences A-C-A plus régulière sur la frontière gauche du domaine. Expérimentalement, le fait d'avoir une large bande de grain A affecte donc grandement la structure de grains globale. Néanmoins, bien que les structures de grains expérimentale et simulée présentent des différences notables, les orientations des facettes $\{111\}$ et des grains maclés résultants sont bien prédites par le modèle numérique.

3.3.4 Comparaisons quantitatives

La figure V.24 donne les comparaisons quantitatives entre l'expérience et la simulation. Comme précédemment, nous nous intéressons ici aux grains A, B, C et D. Cependant, d'autres types de grains sont présents dans l'expérience. L'analyse des fractions surfaciques, révèle en effet que 21,3 % des grains n'ont pas les orientations cristallographiques A, B, C ou D.

Plusieurs points sont à noter. Premièrement, comme le montre la figure V.24 (c), la largeur moyenne de bande des grains B n'est pas définie pour l'expérience. En effet, à l'échelle de l'échantillon, l'alternance des germinations successives sur la paroi droite du domaine observée expérimentalement n'est pas de type A-B-A. En réalité, cette alternance n'est observée que dans une zone très restreinte (précisée par le rectangle bleu figure V.22 (a)). En revanche, cette alternance est conservée dans la simulation, et il est donc possible d'en déterminer une largeur moyenne pour les grains B. Pour ces mêmes grains B, la fraction surfacique simulée (27,3 %) est bien plus importante que celle de l'expérience (5%). Ceci est principalement dû aux nombres de grains B plus grand dans la simulation (7), que dans l'expérience (3). De plus, dans cette dernière, deux de ces trois grains sont à peine visibles et expliquent donc l'écart entre les fractions surfaciques.

Les fractions surfaciques expérimentale et simulée des grains A sont très proches. Cela est en accord avec les nombres de grains et largeurs moyennes des bandes. Il faut cependant noter que, dans l'expérience, les largeurs de bande des grains A sont très dispersées. On note globalement des bandes très fines, mais aussi une bande très large correspondant au grain 2, repéré sur la figure V.22 (a).

De manière similaire, expérimentalement, les largeurs de bandes sont aussi très dispersées pour les grains C. On note une bande large, et spécifique au grain 3 (repéré figure V.22 (a)) ainsi que plusieurs bandes très fines. La largeur moyenne de bandes est plus faible dans l'expérience (0,16 mm) que pour la simulation (0,20 mm). Néanmoins, la large bande propre au grain 3 fait que la fraction surfacique de grains C expérimentale (29,2 %) est plus grande que celle simulée (23,3 %).

Finalement, la fraction surfacique de grains D est plus importante dans la simulation (9,9 %) que dans l'expérience (6,6 %). Ceci est attendu car, comme explicité précédemment, la croissance du grain D dans la simulation a moins été gênée par la croissance de grains A adjacents. Dans l'expérience le grain 2, de type A, a grandement contraint le développement du grain D.

La simulation se compare donc moins bien, en comparaison avec le monogermes S1, aux observations expérimentales. Comme détaillé précédemment, la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes influence grandement les structures de grain simulées. On peut donc légitimement discuter la pertinence de celle utilisée pour modéliser le monogermes S2. Néanmoins, cette loi de distribution se base en partie sur la valeur de surfusion de germination aux bords du domaine. Cette valeur n'étant pas connue pour cette expérience, nous nous basons donc sur la valeur de l'expérience S1.

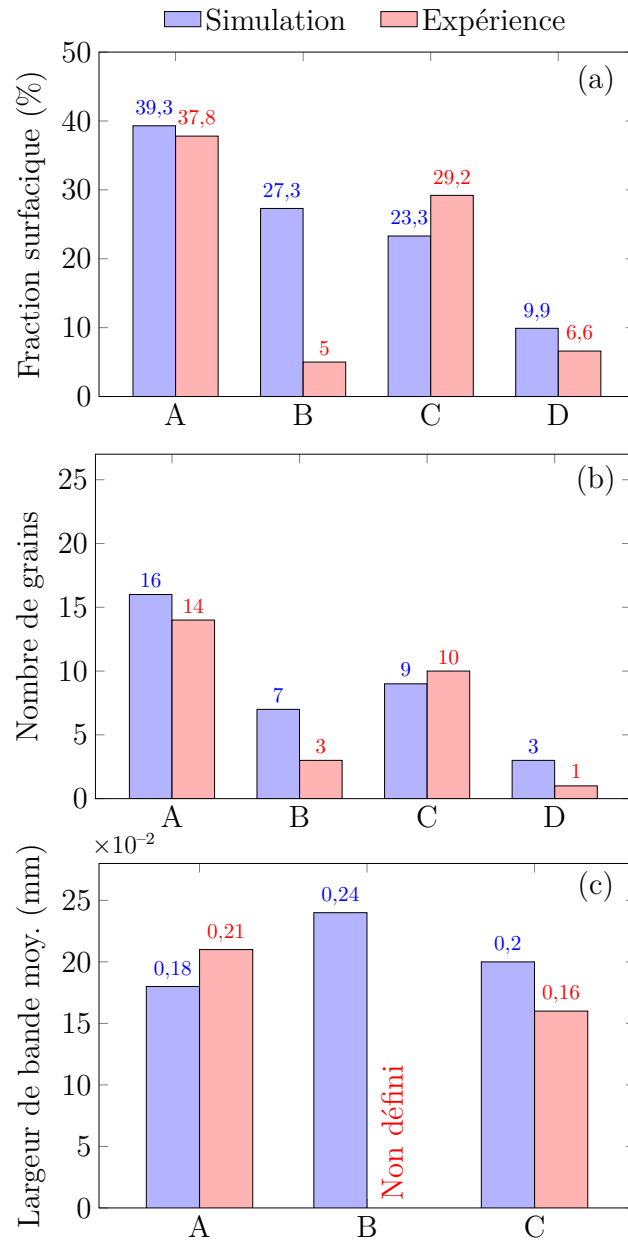


Figure V.24 – Comparaisons quantitatives effectuées entre les observations expérimentales (figure V.22) et les résultats de la simulation (figure V.23). (a) Fractions surfaciques des grains A, B, C et D. (b) Nombre total des grains. (c) Largeurs moyennes des bandes de maillage, pour les grains A, B et C uniquement.

De plus, la zone d'observation est ici plus restreinte que celle du monogemme S1. Il ne serait pas surprenant de retrouver des accords simulation/expériences globalement meilleurs si la hauteur de la zone d'observation était plus importante, par exemple.

Aussi, le champ thermique est imposé sur tout le domaine. En réalité, la thermique présente dans l'échantillon est naturellement plus compliquée, cela étant dû aux échanges thermiques se produisant entre les divers éléments du four. Cependant, ce champ thermique n'est actuellement pas connu et ne peut être simulé.

Finalement, l'échantillon est probablement pollué, ceci pouvant expliquer les phénomènes de maclage inattendus observés sur la paroi droite du domaine (figure V.22). L'échantillon a en effet subi plusieurs cycles de fusion/solidification avant d'être observé au microscope électronique afin d'obtenir les cartes IPF et CSL.

4 Calculs à l'échelle macroscopique

Dans cette dernière section, le modèle numérique est appliqué à un cube de dimensions centimétriques. Le but est successivement d'étudier l'influence de la croissance de facettes $\{111\}$, uniquement, puis l'influence de la germination de grains en relation de macle sur la structure de grains finale. Trois configurations sont proposées : croissance sans formation de facettes $\{111\}$, croissance avec facettes $\{111\}$ mais sans germinations de grains maclés, puis croissance avec facettes $\{111\}$ et germination de grains maclés. La formation d'interfaces facettées et de macles sont une des spécificités de la croissance du silicium polycristallin. Cette étude vise donc à montrer comment ces phénomènes modifient la structure de grains, en comparaison avec une microstructure dendritique, celle-ci correspondant donc au calcul sans formation de facettes $\{111\}$.

4.1 Mise en données des calculs

Le champ de température est imposé et calculé par l'équation V.2 où $\beta = 0^\circ$. Le gradient de température est unidirectionnel et vertical. Les paramètres procédés utilisés sont les mêmes que pour les études précédentes, et donnés tableau V.1. La germination des grains initiaux s'effectue sur la surface inférieure du domaine et la densité de germination surfacique vaut $n^s = 10^6 \text{ m}^{-2}$. Les orientations cristallographiques des grains sont tirées aléatoirement selon l'équation II.5, page 36. Les surfusions de germinations sont aussi générées aléatoirement, et selon la méthode de Box-Muller [Box58], équation II.4. Pour ce tirage, la valeur moyenne vaut $\Delta T_N^\mu = 1,67 \text{ K}$ et l'écart type $\Delta T_N^\sigma = 0,1 \text{ K}$. Notons que la valeur de $1,67 \text{ K}$ correspond à la surfusion associée aux déplacement des isothermes. La cinétique de croissance dans les directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ est calculée par une loi linéaire dont le coefficient cinétique A est donné tableau V.1. Le cube a pour volume $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$. Ce volume est jugé suffisant pour observer les effets propres à chaque calcul. La taille des cellules vaut $l_{CA} = 150 \mu\text{m}$ et le pas de temps $\Delta t = 1 \text{ s}$. Cela représente environ 37×10^6 cellules au total dans le cube. Les lois de tirage des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$, ainsi que les surfusions de germination de grains maclés aux bords du domaine et dans un sillon de joint de grains, sont données dans les sous-sections suivantes.

Pour la visualisation des résultats, les grains sont différenciés par leurs désorientations α_x qui correspond à l'angle minimal entre les directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ d'un grain et l'axe $\mathbf{x}$ du cube. Cet axe correspond à la direction verticale de croissance. Cela permet de corréler la désorientation des grains, selon le gradient de température, avec la sélection de croissance. De plus, pour chaque calcul, l'évolution de la densité surfacique et

la désorientation moyenne $\overline{\alpha_x}$ au cours du temps est donnée. Ces grandeurs sont calculées à chaque pas de temps, pour chaque grain en croissance à l'interface solide/liquide. Les cartes IPF et CSL sont aussi données.

4.2 Calcul sans facettes $\{111\}$ ni germinations

Nous fixons premièrement $\Delta T_{\{111\}}^\mu = -5 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0 \text{ K}$ de manière à n'activer aucune facette $\{111\}$ durant la croissance des grains. Il n'est pas nécessaire de fixer des surfusions de germination de grains en relation de macle aberrantes, car ces événements ne peuvent se produire que sur des interfaces facettées, celles-ci ne pouvant se développer dans ce premier calcul. Notons que ce premier calcul correspond à la modélisation de la solidification de grains dendritiques. Pour un grain donné, le coefficient de cinétique A n'est pas adapté en fonction de sa désorientation ($A_\alpha = A/\cos \alpha$), cela ayant été fait précédemment pour le silicium. Le coefficient A est donc unique pour chaque grain et donné tableau V.1.

La figure V.25 (a) montre la structure de grains à différents temps de solidification. Ce calcul a été produit en environ 4 heures sur 28 cœurs. Les couleurs chaudes correspondent à des désorientations, α_x , élevées par rapport au gradient de température. Ces couleurs disparaissent très rapidement au cours de la solidification. La croissance des grains ayant une valeur de α_x élevée est donc bloquée par des grains adjacents moins désorientés par rapport au gradient de température. Ce sont ces mêmes grains qui peuvent survivre le plus longtemps et qui définissent la morphologie colonnaire de solidification. Ces tendances sont également bien observables sur la carte IPF (figure V.25 (b)), représentée selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance, où la majorité des grains formant le front colonnaire ont une direction cristallographique $\langle 100 \rangle$ proche de la direction de croissance (couleurs chaudes sur le triangle inverse). Finalement, la plupart des joints de grains sont aléatoires et ne correspondent pas à un type CSL particulier (figure V.25 (c)). Ceci est attendu car aucune germination de grains en relation de macle n'est autorisée dans ce calcul. On observe cependant quelques joints de grains de type $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$, ce qui est purement fortuit.

La figure V.26 (a) donne l'évolution de la densité surfacique de grains, n^g , en fonction du temps de solidification. Naturellement, cette densité est importante en début de solidification et correspond à la zone de peau sur la surface inférieure du cube, où les grains germent. Très rapidement, la valeur de n^g décroît et montre que beaucoup de grains sont vite éliminés. Ces mêmes grains ont une désorientation élevée par rapport au gradient de température. La figure V.26 (b) montre effectivement que la désorientation moyenne décroît au cours de la solidification, ce qui met bien en évidence le fait que seuls les grains les mieux orientés par rapport au gradient thermique peuvent continuer de croître.

Afin de faire un parallèle avec les résultats du chapitre III, la désorientation théorique maximale d'un grain par rapport à la direction $\mathbf{x}$, et donc le gradient de température, vaut $\alpha_x = \cos^{-1}(1/\sqrt{3})$, soit $\alpha_x = 54,7^\circ$. En reprenant l'équation (III.23), page 60, qui donne la taille de marche pour un couple angulaire donné, et pour un grain g_1 de désorientation $\alpha_x^{g_1}$ et un grain g_2 de désorientation $\alpha_x^{g_2}$, on écrit :

$$\delta l(\alpha_x^{g_1}, \alpha_x^{g_2}) = \frac{\Delta T_s^{00}}{G} \left| (\cos \alpha_x^{g_1})^{(-1/n)} - (\cos \alpha_x^{g_2})^{(-1/n)} \right| \quad (\text{V.3})$$

La marche maximale est donc donnée pour le couple $(\alpha_x^{g_1}, \alpha_x^{g_2}) = (0^\circ, 54,7^\circ)$, ce qui donne :

$$\delta l^{(0^\circ, 54,7^\circ)} = \frac{\Delta T_s^{00}}{G} \left| \sqrt{3}^{(1/n)} - 1 \right| \quad (\text{V.4})$$

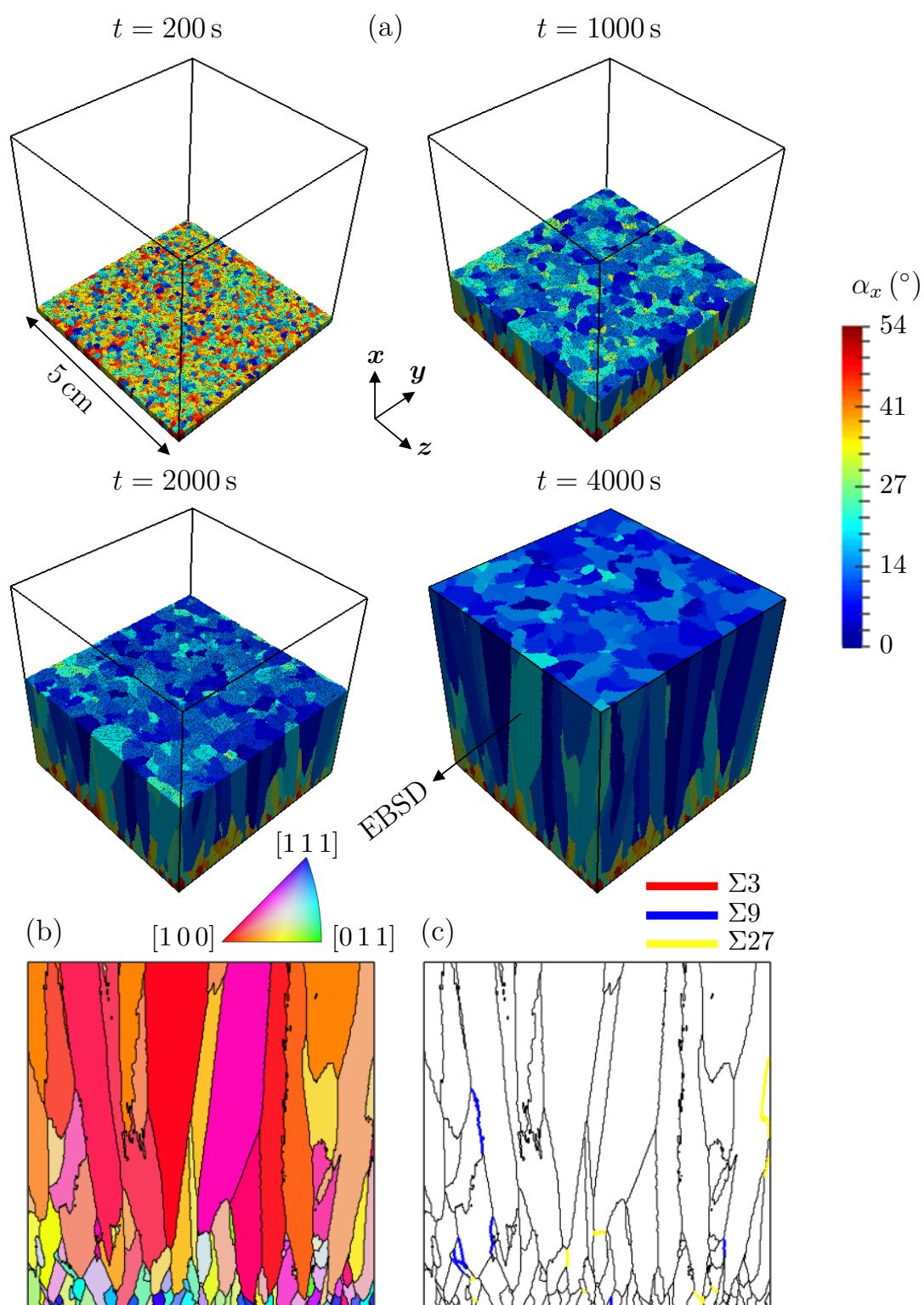


Figure V.25 – Structures de grains pour un calcul CA 3D sans facettes $\{111\}$ et sans germinations de grains en relation de macle. (a) Structures de grains à différents temps de solidification. Le champ représenté est la désorientation α_x . La flèche représente la direction d'observation des cartes IPF et CSL. (b) Carte IPF représentée dans la direction x de croissance et (c) carte CSL.

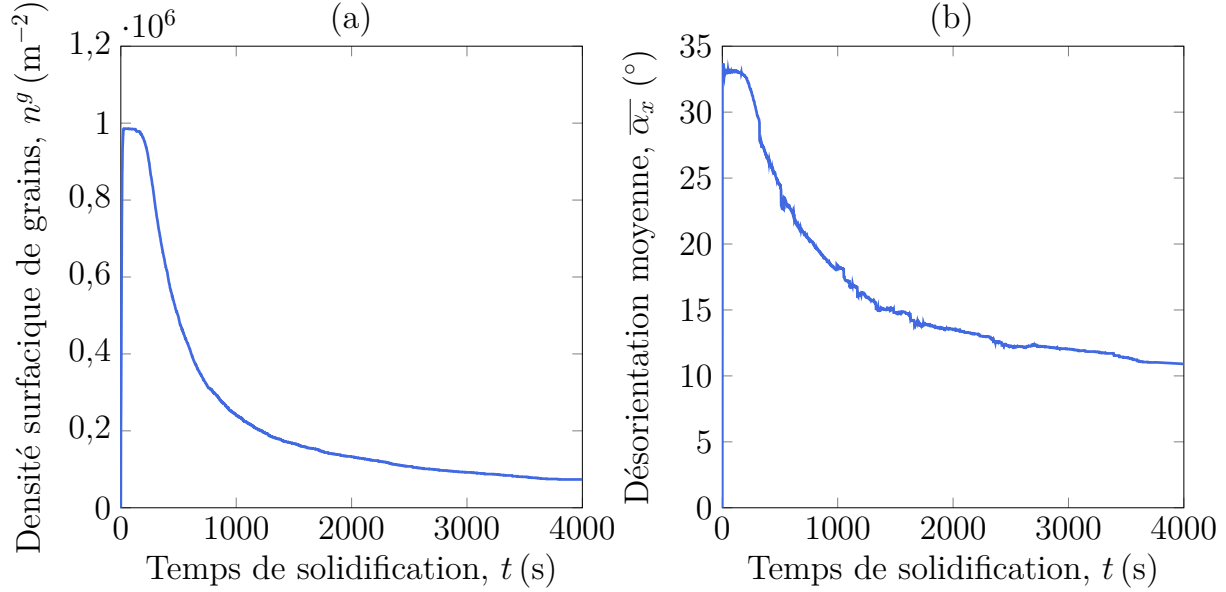


Figure V.26 – Évolution temporelle de (a) la densité surfacique de grains, n^g , et (b) la désorientation moyenne, $\bar{\alpha}_x$, en fonction du temps de solidification.

On rappelle que $\Delta T_s^{0^\circ} = 1,67 \text{ K}$, $G = 1200 \text{ K m}^{-1}$ et $n = 1$ ce qui donne $\delta l^{(0^\circ, 54,7^\circ)} = 1,02 \text{ mm}$. La taille de cellule utilisée dans ce calcul, $l_{CA} = 150 \mu\text{m}$, est bien inférieure à la marche maximale $\delta l^{(0^\circ, 54,7^\circ)}$. Nous devrions donc être en mesure d'observer des sillons rugueux/rugueux se développer au front de solidification, ces sillons pouvant être modélisés par l'approche CA en permettant le développement d'embranchements aux joints de grains. Ces modélisations sont possibles lorsque $l_{CA} \ll \delta l^{(0^\circ, 54,7^\circ)}$, ce qui est effectivement le cas ici. Néanmoins, le front de solidification est globalement plan et aucun sillon rugueux/rugueux n'est *a priori* observé. En fait, si nous considérons la morphologie du front de solidification au temps $t = 2000 \text{ s}$, figure V.25 (a), qui est effectivement plane, la désorientation moyenne $\bar{\alpha}_x$ à ce temps t vaut $13,5^\circ$ (figure V.26 (b)). Selon l'équation (V.3), la taille de marche correspondante vaut $\delta l^{(0^\circ, 13,5^\circ)} = 39,5 \mu\text{m}$, ce qui est bien inférieur à la taille de cellule ($l_{CA} = 150 \mu\text{m}$).

4.3 Calcul avec facettes $\{111\}$ sans germinations

Nous effectuons maintenant un calcul avec formation et croissance de facettes $\{111\}$, mais sans germinations de grains en relation de macle. La loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ est telle que $\Delta T_{\{111\}}^\mu = 1,8 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^\sigma = 0,2 \text{ K}$. Nous rappelons que la surfusion moyenne, ΔT_N^μ , de germination des grains vaut $1,67 \text{ K}$. Avec un écart type égal à $0,2 \text{ K}$, il est probable que pour un grain donné, ses surfusions d'activation tirées soient inférieures à $1,67 \text{ K}$. Le cas échéant, le grain ne pourrait potentiellement jamais former de facettes $\{111\}$. Ceci est souhaité, car nous ne voulons pas avoir un calcul où 100 % des grains soient en croissance facettée.

La figure V.27 (a) montre la structure de grains obtenue. Ce calcul a aussi été produit en 4 heures sur 28 cœurs. Qualitativement, cette structure de grains diffère grandement de celle obtenue précédemment, pour la simulation sans facettes $\{111\}$. On devine aisément que le nombre de grains est moins important en fin de solidification. De plus, on voit, via le code couleur associé aux désorientations α_x , que certains grains désorientés par

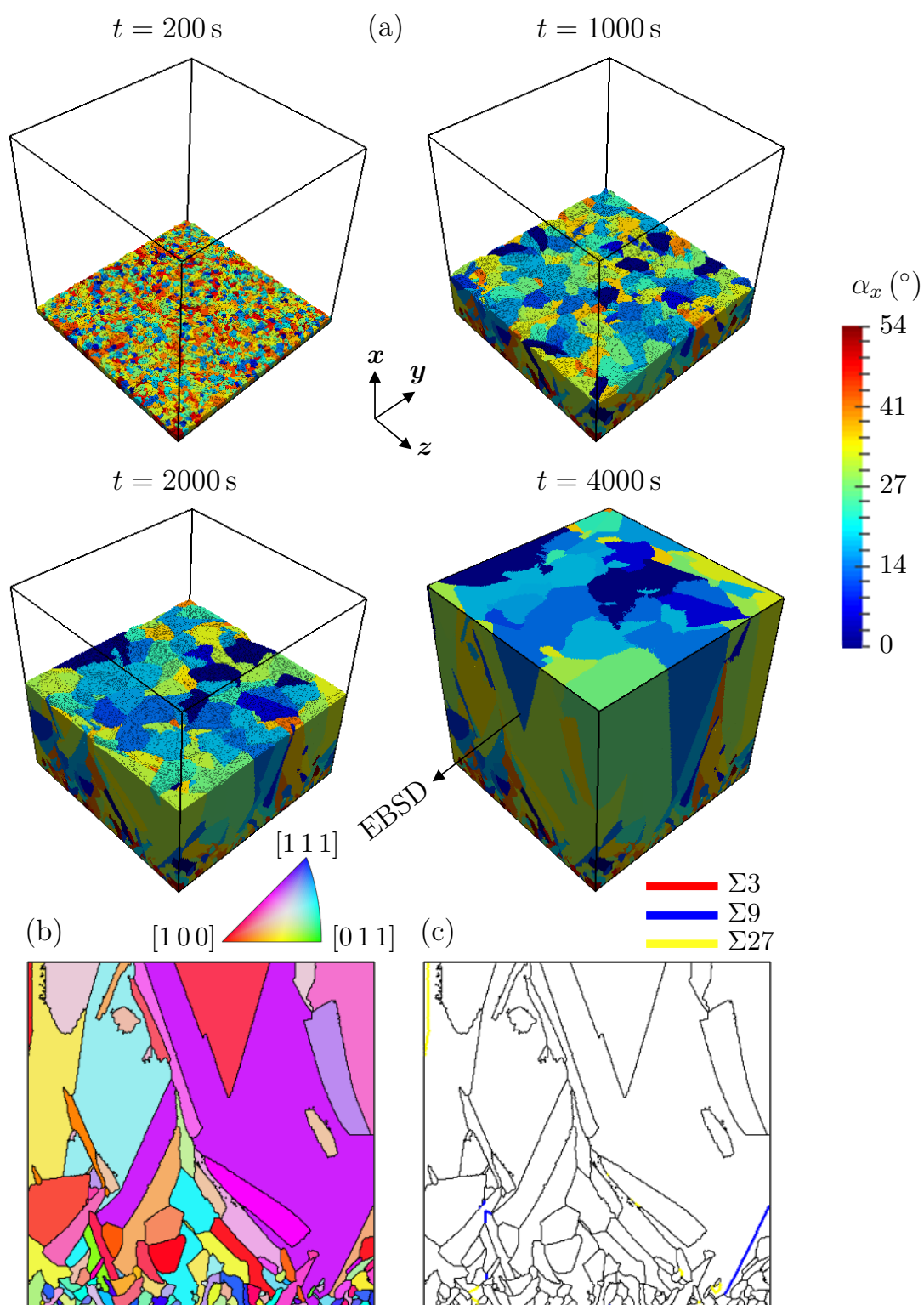


Figure V.27 – Structure de grains pour un calcul CA 3D avec facettes $\{111\}$ et sans germination de grains en relation de macle. (a) Structures de grains à différents temps de solidification. Le champ représenté est la désorientation α^x . La flèche représente la direction d'observation des cartes IPF et CSL. (b) Carte IPF représentée dans la direction x de croissance et (c) carte CSL.

rapport au gradient de température sont toujours présents en fin de solidification. Ces deux observations sont mieux mises en évidence par les figures V.28 (a) et V.28 (b). Premièrement, la densité surfacique finale n^g pour le calcul sans facettes $\{111\}$ vaut $0,073 \times 10^{-6} \text{ m}^{-2}$, tandis qu'elle vaut $0,019 \times 10^{-6} \text{ m}^{-2}$ pour le calcul avec facettes $\{111\}$. Deuxièmement, la désorientation moyenne $\overline{\alpha_x}$ en fin de calcul est plus importante pour le calcul avec facettes, $\overline{\alpha_x} = 17,4^\circ$, que pour le calcul sans facettes où $\overline{\alpha_x} = 10,9^\circ$. Par ailleurs, ces observations sont en bon accord avec celles de Nadri *et al.* [Nad12; Nad14]. Néanmoins, aucune comparaison directe ne peut être effectuée. Dans ces travaux, les calculs sont 2D, le champ de température est différent, tout comme le principe de résolution du modèle numérique.

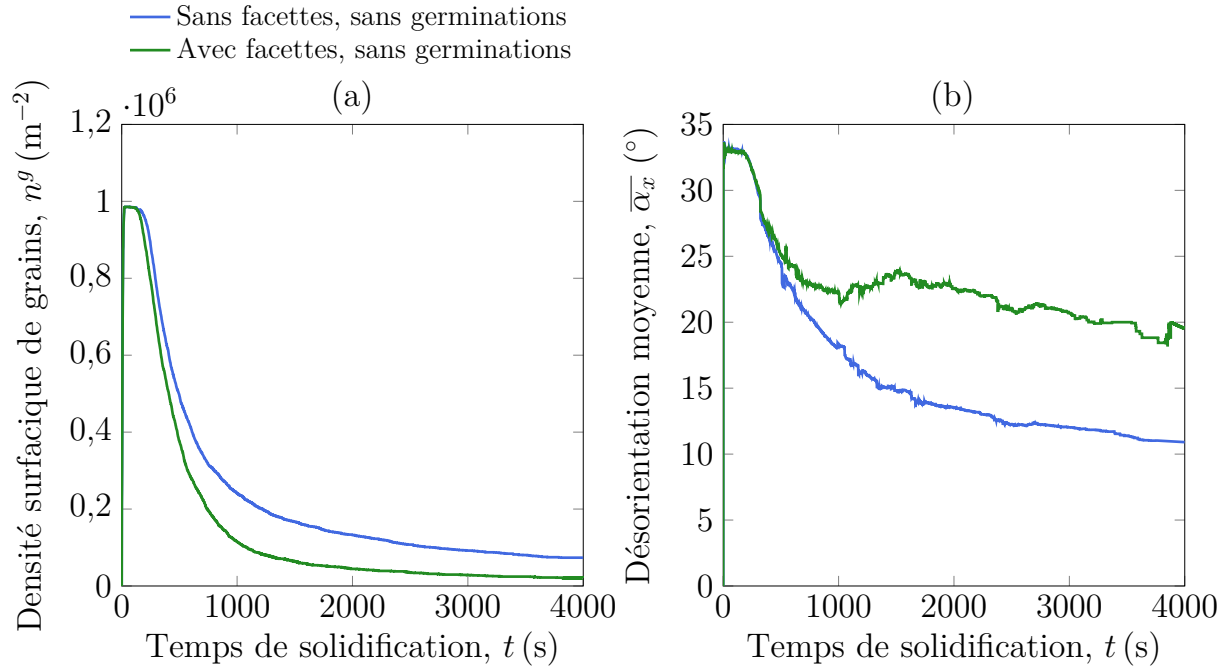


Figure V.28 – Évolution temporelle selon le temps de solidification de (a) la densité surfacique de grains, n^g , et (b) la désorientation moyenne, $\overline{\alpha_x}$, pour le calcul sans facettes $\{111\}$ (bleu) et le calcul avec facettes $\{111\}$ et sans germination de grains en relation de macle (vert).

Deux phénomènes concurrents expliquent ces résultats. Premièrement, la compétition de croissance observée dans le calcul sans facettes $\{111\}$ est naturellement présente. La croissance des grains ayant développé des facettes est cependant bien plus affectée. Si, par exemple, un grain croît une facette $\{111\}$ donnée, alors un grain voisin peut croître localement dans le liquide libre au niveau de la facette. Au final, la facette sera remplie et le grain l'ayant développé sera fortement contraint. C'est bien pour cette raison que certains grains, pourtant bien orientés selon le gradient de température, développent une ou plusieurs facettes $\{111\}$ et voient leur croissance bloquée. Ce processus n'est pas explicitement observable figure V.27.

4.4 Calcul avec facettes $\{111\}$ et germinations

Dans ce dernier calcul, la formation de facettes $\{111\}$ est activée, ainsi que la germination de grains en relation de macle. La loi de distribution des surfusions d'activation

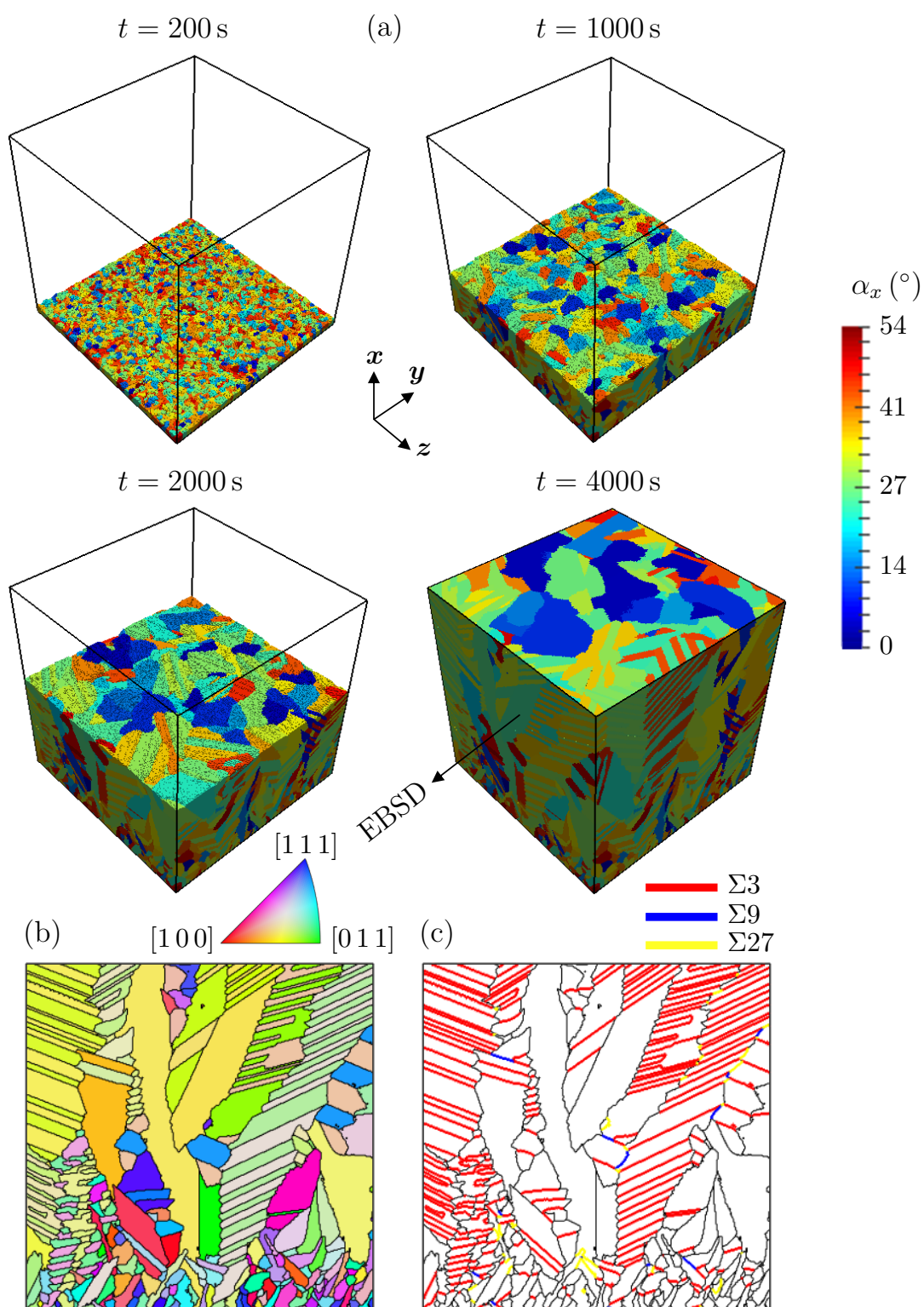


Figure V.29 – Structure de grains pour un calcul CA 3D avec facettes $\{111\}$ et germination de grains en relation de macle. (a) Structures de grains à différents temps de solidification. Le champ représenté est la désorientation α_x . La flèche représente la direction d'observation des cartes IPF et CSL. (b) Carte IPF représentée dans la direction x de croissance et (c) carte CSL.

est la même que pour le calcul précédent, à savoir : $\Delta T_{\{111\}}^{\mu} = 1,8 \text{ K}$ et $\Delta T_{\{111\}}^{\sigma} = 0,2 \text{ K}$. Les surfusions de germination dans une facette de bord et dans un sillon de joint de grains sont identiques, c'est-à-dire : $\Delta T_{N,T}^E = \Delta T_{N,T}^B = 2,5 \text{ K}$. En comparaison avec les calculs présentés dans la section 3, à savoir les monogermes S1 et S2, la surfusion de germination est ici plus importante. Ce choix est justifié par la taille de cellule plus grande, $l_{CA} = 150 \mu\text{m}$. Pour cette valeur, si la surfusion de germination est trop proche de la valeur moyenne des surfusions d'activation, $\Delta T_{\{111\}}^{\mu}$, alors un nouveau grain ayant germé en relation de macle aura tendance à rapidement reformer une facette et beaucoup de bandes de maillage fines seront obtenues. Les autres paramètres numériques, procédé et propriétés matériau sont identiques aux deux calculs précédents.

La structure de grains résultante est donnée figure V.29 (a). On voit que, initialement, la densité surfacique de grains est importante et aucune germination de grains maclés n'est réellement observable. Au temps $t = 1000 \text{ s}$, des macles sont observables. Les événements de germination successifs sont par la suite bien mis en évidence entre les temps $t = 2000 \text{ s}$ et $t = 4000 \text{ s}$. Un nombre important de grains maclés ont germé, cela étant particulièrement visible sur la carte IPF représentée figure V.29 (b). Comme attendu, la carte CSL donnée figure V.29 (c) montre que la majorité des joints de grains maclés sont en relation $\Sigma 3$. Des joints de grains maclés de type $\Sigma 9$ et $\Sigma 27$ sont aussi observés.

La figure V.30 montre les cartes IPF et CSL pour une coupe réalisée au centre du domaine, selon un plan $(\mathbf{x}, \mathbf{z})$. Sur ces cartes, la zone de peau est plus importante, et le nombre de macles est plus faible. Les interactions des grains avec les parois du domaine sont bien plus limitées, et les grains en relation de macle observés proviennent principalement de germinations dans des sillons de joints de grains.

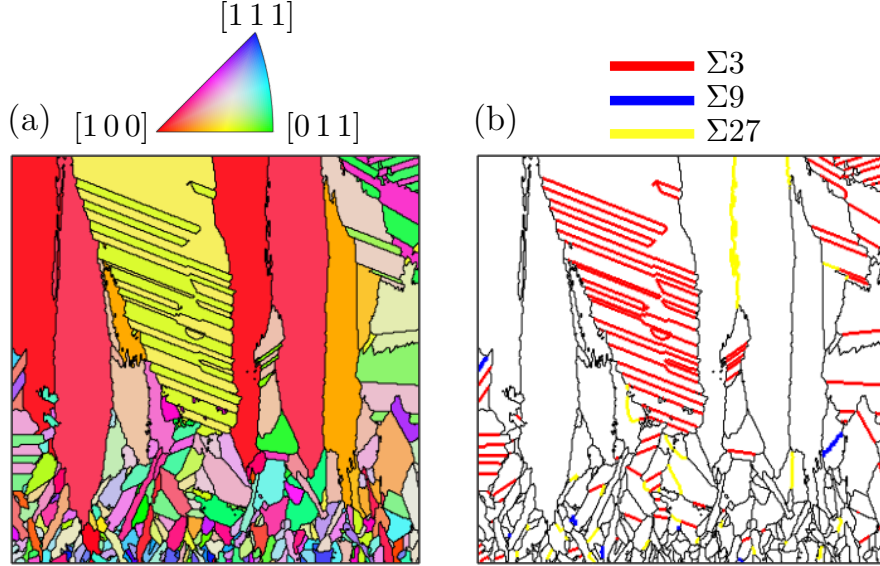


Figure V.30 – Cartes (a) IPF et (b) CSL selon la direction $\mathbf{x}$ de croissance pour le calcul avec germination de grains en relation de macle. L'observation correspond à un plan de coupe $(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ situé au milieu du domaine de simulation.

Pour les trois calculs, l'évolution de la densité de germination surfacique, n^g , et de la désorientation moyenne par rapport au gradient de température, $\overline{\alpha_x}$ est montrée figure V.31 (a) et V.31 (b). Pour le calcul avec germination de grains maclés, on observe initialement un pic de densité surfacique pour $t \approx 200 \text{ s}$. Cela se traduit par des nombreuses germinations de grains en relation de macle. Initialement, beaucoup de grains développent des facettes

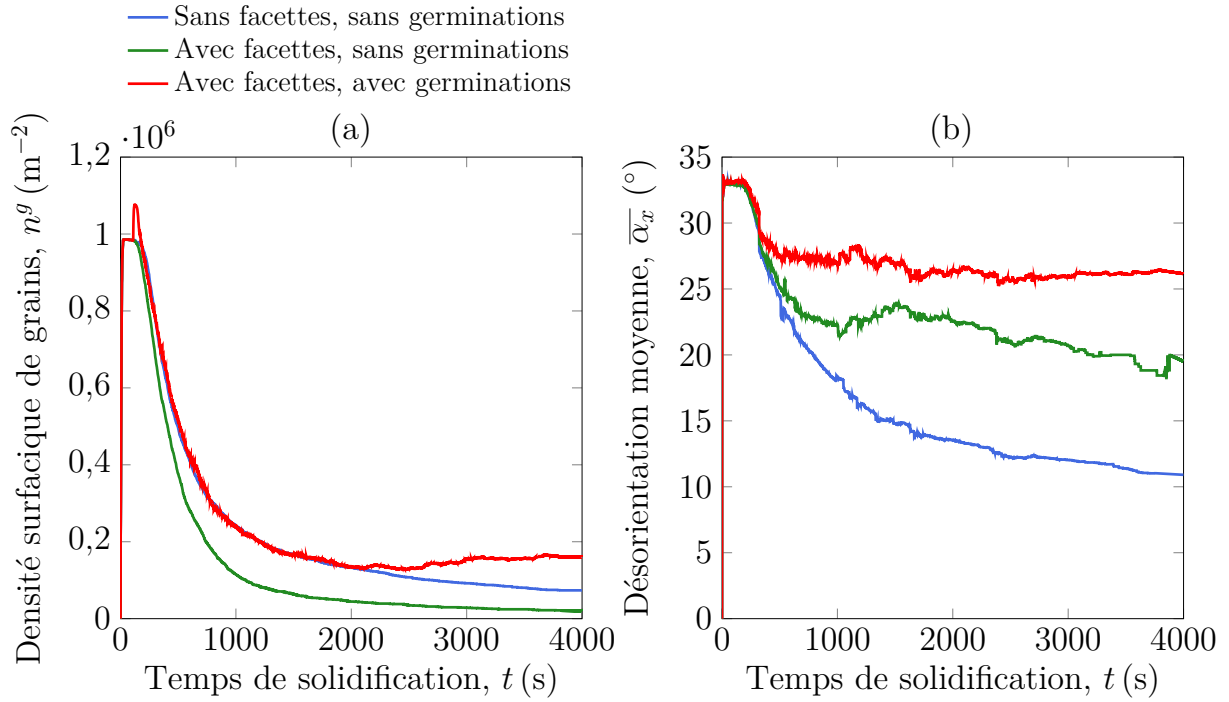


Figure V.31 – Évolution temporelle selon le temps de solidification de (a) la densité surfacique de grains, n^g , et (b) la désorientation moyenne, $\bar{\alpha}_x$, pour le calcul sans facettes $\{111\}$ (bleu), le calcul avec facettes $\{111\}$ et sans germinations de grains en relation de macle (vert) et le calcul avec facettes $\{111\}$ et germinations de grains en relation de macle (rouge).

$\{111\}$, mais comme la densité de grains est importante, ces facettes ne peuvent se développer assez afin que la surfusion locale en fond de sillon dépasse la surfusion de germination d'un grain maclé. La croissance de grains adjacents à ces interfaces gêne donc leur croissance. Lorsque la densité de grains commence à diminuer, certaines facettes $\{111\}$ peuvent se développer et permettre la germination de grains en relation de macle, ces mêmes germinations correspondent donc au pic de densité surfacique.

Par la suite, plusieurs phénomènes concurrents se produisent. Premièrement, la compétition de croissance classique est effectivement présente. Ici aussi, tous les grains ne sont pas en croissance facettée, et ne peuvent donc permettre des germinations de grains maclés. Deuxièmement, certains grains développent des facettes, mais des grains voisins peuvent croître localement dans ces facettes et les refermer avant qu'un grain ne germe en relation de macle sur celles-ci. Ces deux phénomènes causent la disparition de nombreux grains, mais sont facilement compensés par les germinations de grains en relation de macle. Ainsi, la densité surfacique de grains pour le calcul avec germinations (courbe rouge, figure V.31 (a)) est plus importante, durant l'intégralité de la solidification, que pour le calcul avec facettes sans germinations (courbe verte, V.31 (a)).

En comparaison avec le calcul sans facettes $\{111\}$ et sans germinations (courbe bleue, figure V.31 (a)), l'évolution de la densité surfacique est très similaire à celle du calcul avec germination, jusqu'à $t \approx 2000$ s. Au-delà de ce temps, pour le calcul avec germination, la densité surfacique devient plus importante, ce qui montre que beaucoup de grains maclés sont créés, tandis que pour le calcul sans facette, la densité surfacique continue de diminuer où seuls les grains les mieux orientés par rapport au gradient de température peuvent continuer de croître.

Finalement, le calcul avec germinations montre que beaucoup de grains désorientés vis-à-vis du gradient de température sont présents. En effet, comparé aux deux autres calculs, la désorientation moyenne $\overline{\alpha_x}$ est égale à $26,1^\circ$ en fin de solidification (courbe rouge, figure V.31 (b)). Cette même grandeur vaut, en fin de solidification, pour le calcul sans facettes et celui avec facettes mais sans germinations, $\overline{\alpha_x} = 10,9^\circ$ et $\overline{\alpha_x} = 17,4^\circ$, respectivement. Il est intéressant de noter, figure V.29 (b), que la majorité des joints de grains maclés sont très désorientés par rapport au gradient de température. En d'autres termes, les normales aux facettes $\{111\}$ sur lesquelles ces grains en relation de macle ont germé, sont proches de la direction du gradient thermique. Il semble donc que les grains désorientés sont favorisés pour faire croître des facettes $\{111\}$ et permettre des évènements de germination.

5 Conclusions

Dans ce dernier chapitre, le modèle numérique CA dédié à la croissance du silicium polycristallin a été appliqué pour plusieurs configurations. Premièrement, la morphologie de l'interface solide/liquide a été étudiée dans le but de simuler des sillons de joint de grains rugueux/facetté et facetté/facetté en se basant sur des observations expérimentales (figures V.2 et V.4). Les résultats obtenus (figures V.3 et V.5), à savoir l'orientation des facettes $\{111\}$ et l'évolution du sillon, sont en bon accord avec l'expérience.

La modélisation de la structure complète de deux expériences de solidification dirigée, partant d'un monogermine de silicium pur, a ensuite été abordée. Ces expériences, dénotées S1 et S2, diffèrent par les orientations cristallographiques du germe initial. Qualitativement, les résultats de la simulation de l'expérience S1 (figure V.9) sont en très bon accord avec l'expérience (figure V.6) et ont permis d'ajuster les paramètres numériques ($\Delta T_{\{111\}}^\mu$, $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$, $\Delta T_{N,T}^E$, $\Delta T_{N,T}^B$, $v_{\{111\}}^c$). Dans le but de quantifier ces résultats, les fractions surfaciques, les nombres de grains ayant germé en relation de macle et les largeurs des bandes de maclage sont étudiées. Ces grandeurs données par le modèle numériques sont très proches de celles mesurées à partir des observations expérimentales (figure V.13).

Par la suite, d'autres résultats de simulation, toujours en référence à l'expérience S1, ont été proposés. Utiliser différentes valeurs de germes pour le tirage aléatoire des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ permet en effet d'observer des structures de grains distinctes (figure V.12). Ces résultats sont en moins bon accord avec l'expérience, mais ils proviennent de phénomènes autorisés dans le modèle numérique. Par exemple, figure V.12 (e), la germination en relation de macle du grain E s'est effectuée sur une facette $\{111\}$ du grain B et sa croissance est dirigée vers la droite du domaine de simulation. Dans l'expérience, la germination du grain D est observée sur une facette $\{111\}$ du grain C et sa croissance résultante s'opère vers la gauche du domaine.

Pour l'expérience S2 (figure V.22), les résultats numériques (figure V.23) sont en moins bon accord. Les orientations cristallographiques des principaux grains en relation de macle sont bien retrouvées, mais les comparaisons qualitatives et quantitatives (figure V.24) sont moins bonnes. Plusieurs phénomènes, difficiles à interpréter, interviennent dans l'expérience S2 et mènent à une structure de grains moins « conventionnelle », en comparaison avec l'expérience S1. Ces phénomènes n'étant pas pris en compte dans notre modèle, il n'a pas été possible de mieux s'approcher des observations expérimentales.

Une étude paramétrique a ensuite été effectuée afin de préciser l'influence des paramètres numériques de notre modèle sur les structures de grains résultantes. Ces paramètres sont : la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$, à savoir la valeur

moyenne $\Delta T_{\{111\}}^\mu$, l'écart type $\Delta T_{\{111\}}^\sigma$, ainsi que la vitesse des plans $\{111\}$ virtuels $v_{\{111\}}^c$. Nous avons montré que la loi de distribution influence fortement la structure de grains obtenue. L'influence de $v_{\{111\}}^c$ est quant à elle plus limitée, en particulier pour les faibles valeurs.

Finalement, des calculs sur un cube de dimensions $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ ont été réalisés. À cette échelle, aucune comparaison expérimentale n'a été exploitée. Le but de ces simulations était de successivement étudier l'influence de la formation de facettes $\{111\}$, puis de la germination de grains en relation de macle. Trois calculs ont été proposés, à savoir un calcul sans facettes $\{111\}$, un avec facettes $\{111\}$, mais sans germinations de grains macclés et un avec facettes $\{111\}$ et germinations de grains macclés. Pour le calcul sans facettes (figure V.25), les grains les mieux orientés par rapport au gradient de température peuvent croître et forment la morphologie colonnaire. Pour le calcul avec facettes (figure V.27), si certains grains bien orientés développent des facettes, alors leur croissance peut être fortement contrainte, voire même stoppée. Au final, certains grains désorientés peuvent subsister en fin de solidification. Finalement, le calcul avec germinations de grains macclés (figure V.29) a montré que ces événements modifient fortement la structure de grains.

L'automate cellulaire est la seule approche qui permet, actuellement, d'atteindre de telles échelles spatiales et temporelles. Néanmoins, aucune expérience caractérisée à l'échelle macroscopique (cartes EBSD et CSL) n'est, à notre connaissance, disponible dans la littérature. Dans le chapitre II, il est décrit que de nombreux efforts ont été réalisés afin de modéliser la croissance du silicium polycristallin, notamment par le modèle champ de phase. Des comparaisons directes entre notre modèle et le champ de phase pourraient être pertinentes.

Conclusions et perspectives

Conclusions

Compétition de croissance dendritique

Bien que les métaux et le silicium solidifient selon des morphologies très différentes, un lien fort existe entre leur microstructure et leurs propriétés. Dans les alliages métalliques, des morphologies dendritiques rugueuses sont essentiellement observées et un lingot est généralement composé de petits grains équiaxes d'orientations aléatoires et de grains colonnaires d'orientations similaires dirigées selon le gradient de température. La croissance des grains colonnaires résulte en une sélection des joints de grains qui est principalement fonction des orientations cristallographiques des grains en compétition. Le silicium a pour particularité de cristalliser en formant des interfaces facettées correspondant à des plans cristallographiques $\{111\}$. L'énergie de surface de ces plans est très faible et favorise la germination de grains en relation de macle sur ces interfaces.

Les premières observations *ex situ* de sélection de croissance ont été réalisées par Walton et Chalmers [Wal59] et semblent indiquer que les grains les mieux orientés par rapport au gradient de température peuvent survivre le plus longtemps. Par la suite, les observations expérimentales *in situ* d'Esaka [Esa86] ont précisé le rôle des mécanismes de branchements aux joints de grains. Cependant, des expériences reproductibles et quantitatives restent toujours indisponibles actuellement et permettraient de lever le voile sur d'autres phénomènes influençant la sélection des joints de grains. Numériquement, les études se sont principalement focalisées sur la microstructure interne des grains et non sur l'orientation de leur frontière. Ce n'est que récemment que cette propriété a été investiguée par une approche champ de phase, en 2D et 3D [Tak13; Tou15; Tak16a; Tou17; Tak18].

Dans ce présent travail, nous avons étudié les phénomènes sus-cités par l'approche automate cellulaire. Premièrement, une étude de compétition de croissance dendritique pour un bicristal de succinonitrile-0,4% pds acétone a été menée. Ce travail a grandement été motivé par l'étude champ de phase proposée par Tourret *et al.* [Tou17]. Dans celle-ci, l'orientation du joint de grains, θ , est déterminée pour plusieurs couples angulaires notés (ϕ_1, ϕ_2) . L'exploitation des résultats permet de construire des cartes de sélection angulaire donnant les valeurs de θ en fonction de ϕ_1 et ϕ_2 . De plus, ces cartes ont aussi été établies pour trois critères de sélection qui sont :

- FOG, correspondant aux observations de Walton et Chalmers,
- LG, qui approxime les branchements dendritiques se développant aux joints de grains à une échelle infiniment petite,
- rev-FOG, qui est une formalisation des résultats champ de phase.

Les résultats obtenus avec l'approche CA dépendent fortement du rapport $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA}$ qui caractérise le nombre de cellules définissant la marche du front de croissance entre les grains. Pour $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA} \gg 1$, c'est-à-dire pour une grille automate cellulaire très fine,

les branchements secondaires peuvent opérer aux joints de grains et les cartes angulaires résultantes tendent vers le critère LG. Notons que cette conclusion montre une limite de l'approche CA pour la modélisation de la compétition de croissance. En effet, nous pourrions, en toute logique, attendre des résultats CA qui tendent vers les calculs champ de phase lorsque la taille de cellule diminue. Cependant, la carte de sélection angulaire du critère LG (figure III.5, page 55) diffère particulièrement de celle associée aux résultats champ de phase (figure III.6 (a), page 57). Pour $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA} \ll 1$, à savoir une grille automate cellulaire large, les branchements secondaires ne peuvent plus être modélisés aux joints de grains, et la compétition de croissance résulte uniquement de l'interaction entre les branches primaires. Pour ces configurations, les cartes de sélection tendent vers le critère FOG. Enfin, un bon accord avec le critère rev-FOG, et les résultats champ de phase, est obtenu pour un rapport $\delta l^{(\phi_1, \phi_2)} / l_{CA} \approx 1$.

Par la suite, le système bicristallin divergent de succinonitrile-1,3%pds acétone, correspondant à l'expérience d'Esaka, a été étudié en 2D et 3D. Il a été montré que la valeur expérimentale de l'angle de joint grains est approchée au mieux lorsque la taille de cellule tend vers la taille de marche propre au bicristal, en particulier pour une cinétique d'Ivantsov 3D. Cette observations nous a motivé à produire des cartes de sélection angulaire dites adaptatives, où la taille de cellule est fonction de la taille de marche des couples angulaires (ϕ_1, ϕ_2) . Néanmoins, aucune carte de sélection champ de phase n'est actuellement disponible pour le succinonitrile-1,3%pds acétone. Nous ne sommes donc pas en mesure de tirer des conclusions sur la méthodologie adaptative de réalisation d'une carte angulaire.

Croissance du silicium polycristallin

La croissance du silicium polycristallin a été mise en évidence par observations *in situ* et *ex situ* à l'aide d'un dispositif expérimental de l'IM2NP, GaTSBI, utilisé à l'ESRF [Tan12; Rib15; Tso16]. L'évolution temporelle et morphologique *in situ* de l'interface solide/liquide a été révélée et montre fréquemment la formation d'interfaces facettées. Ces dernières se développent avec les parois du moule ou à un joint de grains. De plus, les analyses *ex situ* révèlent que de nombreux grains germent en relation de macles et décrivent le phénomène de maclage successif. L'étude numérique de ces processus a fait l'objet de plusieurs développements au cours des dix dernières années, notamment en champ de phase [Che07; Lan14; Jha19] et par des méthodes moins conventionnelles [Nad14; Qi19].

Les développements en lien avec la modélisation de la croissance du silicium polycristallin ont été réalisés selon les attentes du projet ANR CrySaLID [ANR15]. Cette modélisation a été divisée en trois étapes successives : la formation de facettes $\{111\}$, la germination de grains en relation de macles sur celles-ci, et la croissance simultanée de deux grains maclés. La croissance des facettes $\{111\}$ a été simulée via l'implémentation d'une approche cinétique et d'une approche géométrique. L'approche géométrique a été préférée à l'approche cinétique car cette dernière se veut trop restrictive et ne permet le développement que d'une unique facette $\{111\}$ pour un grain donné. Pour pallier cette limite, un algorithme de capture conditionnée, spécifique à l'approche cinétique, a été développé dans le but de faire croître simultanément plusieurs facettes $\{111\}$. De plus, l'activation des facettes est au préalable fonction d'une surfusion d'activation spécifique et tirée aléatoirement, par grain, selon la méthode de Box-Muller [Box58]. La germination d'un grain en relation de macles a été effectuée en modifiant l'algorithme de capture standard [Gan94; Car12]. Finalement, la propagation locale de deux grains en relation de macles $\Sigma 3$

a été modélisée aussi par une approche cinétique et une approche géométrique. À nouveau, l'approche géométrique a été conservée car l'approche cinétique n'a été développée qu'en 2D et, se basant sur la limite géométrique, elle n'est valable que pour des tailles de cellule très faibles. L'approche géométrique utilise ici aussi l'algorithme de capture conditionnée.

Ce modèle numérique a été confronté à plusieurs observations expérimentales réalisées par l'IM2NP, partenaire du projet CrySaLID. Premièrement, la morphologie de l'interface solide/liquide a été abordée afin de développer des sillons de type rugueux/facetté et facetté/facetté. Il a été montré que l'évolution temporelle du sillon et l'orientation des facettes $\{111\}$ sont en accord avec les observations *in situ*. Puis, deux expériences de solidification à partir d'un grain unique sont modélisées. Ces deux configurations diffèrent par les orientations cristallographiques du grain initial, uniquement. Ces grains développent simultanément deux facettes $\{111\}$ avec les parois latérales du domaine et permettent la germination de multiples grains en relation de macles. Pour la première expérience, notée S1, les comparaisons qualitatives et quantitatives sont en bon accord avec les observations expérimentales. Elles sont cependant moins bonnes pour l'expérience S2. Dans celle-ci, plusieurs phénomènes difficiles à caractériser résultent en une structure de grains plus inattendue. Nous avons par la suite montré que la loi de tirage aléatoire des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ influence grandement la fréquence d'apparition des grains maclés, et donc la structure granulaire finale. Cette loi nécessite donc d'être calibrée finement selon l'expérience étudiée. Néanmoins, elle ne découle pas directement d'observations expérimentales car elle concerne l'activation de facettes $\{111\}$, ces phénomènes étant très difficiles, voire impossibles, à observer sur des expériences *in situ* de cristallisation du silicium.

Dans une dernière section, le modèle a été appliqué à un cube de volume $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$. Aucun modèle numérique ne permet, pour la croissance du silicium polycristallin, d'atteindre une telle échelle spatiale. Dans notre cas, cette échelle peut facilement être atteinte en profitant de la parallélisation du code CA. Premièrement, un calcul sans facettes et sans germinations de grains maclés a été effectué. Celui-ci peut légitimement être assimilé à un calcul de structure granulaire dendritique. Puis, en activant uniquement la croissance de facettes $\{111\}$, nous avons montré que la structure de grains résultante est fortement modifiée. La croissance de facettes $\{111\}$ influence la compétition de croissance des grains, et certains d'entre eux présentant une forte désorientation par rapport au gradient de température peuvent subsister en fin de solidification. Finalement, la germination de multiples grains maclés résulte en une structure de grains très modifiée vis-à-vis d'une structure dendritique. Ceci est attendu et vient principalement du fait que ces grains particuliers ont des plans cristallographiques $\{111\}$ communs, leur croissance étant dirigée selon ces plans. Les résultats obtenus peuvent être quantifiés de différentes manières, que ce soit par la densité surfacique des grains, leur fraction surfacique, leurs orientations cristallographiques par analyse des cartes IPF ou la caractérisation des types de joint de grains par le modèle CSL. Néanmoins, aucune expérience à cette échelle et proposant de telles caractérisations n'est pour le moment disponible dans la littérature.

Perspectives

Compétition de croissance dendritique

Concernant les perspectives d'étude sur la compétition de croissance dendritique, la comparaison de l'approche CA avec d'autres méthodes numérique comme le DNN

[Tou13] ou le récent couplage CA-PTN-FE [Fle19] s'avère naturellement pertinente. Il reste que des expériences quantitatives et reproductibles pour différents matériaux, différentes configurations angulaires, différents gradients thermiques et vitesses de tirage sont toujours souhaitées à l'heure actuelle. Aussi, la réalisation d'une carte de sélection angulaire champ de phase pour le succinonitrile-1,3%*pds* acétone et les paramètres de l'expérience d'Esaka est nécessaire. Cette carte permettrait de mieux préciser le critère du choix de la taille de cellule optimale pour l'étude de la compétition de croissance dendritique.

Croissance du silicium polycristallin

Le projet ANR CrySaLID ne connaît actuellement pas de suite pour sa partie modélisation. Le travail effectué sur le silicium n'est donc pas susceptible d'être repris dans un futur proche. Nous pouvons néanmoins donner des pistes d'améliorations. Premièrement, l'algorithme d'identification des facettes $\{111\}$ pouvant potentiellement se former n'est valable que pour des domaines rectangulaires et un gradient de température vertical. La résolution actuelle de l'algorithme CA ne donne pas localement accès à la direction du gradient thermique. Pour des pièces à géométrie plus complexe, il serait nécessaire d'affiner, voire de repenser, les stratégies d'identification. De plus, la loi de distribution des surfusions d'activation des facettes $\{111\}$ influence fortement la structure de grains finale. Cette loi n'est cependant pas aisée à calibrer et ne découle pas d'observations expérimentales directes. Il serait nécessaire de relier cette loi aux propriétés du silicium et aux paramètres du procédé de solidification afin de permettre des simulations généralisées et non spécifiques à une expérience précise. Plus précisément, la nature stochastique des surfusions d'activation se doit d'être corrélée avec les phénomènes physiques propres à l'apparition et à la croissance des facettes $\{111\}$. Néanmoins, ces phénomènes sont toujours mal connus à l'heure actuelle. De plus, le modèle numérique a principalement été construit selon des considérations géométriques en relation avec les observations expérimentales. Aucun modèle physique ne permet, actuellement, de décrire la croissance du silicium dans son ensemble. Si des théories venaient à être validées expérimentalement, il faudrait très certainement adapter les développements effectués en conséquence.

Le modèle CA-FE a été implémenté dans le logiciel commercial Thercast®, développé par Transvalor, permettant la modélisation 3D de la coulée des métaux. Ainsi, l'intégration de nos développements dans Thercast® permettrait de réaliser des simulations sur des lingots de dimensions industrielles et pour un champ de température complexe et proche de celui du procédé.

Annexe A

La seconde limite géométrique

1 Contexte

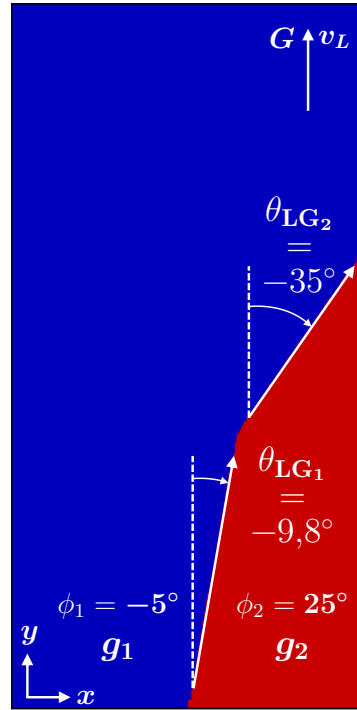


Figure A.1 – Calcul CA 2D pour un bicristal convergent où $(\phi_1, \phi_2) = (-5^\circ, 25^\circ)$ et $l_{CA} = 0,01 \mu\text{m}$. Deux angles de joint de grains différents sont obtenus et notés θ_{LG_1} et θ_{LG_2} . Ces angles correspondent à la première et à la seconde limite géométrique, respectivement.

Il est écrit en sous-section 3.3 du chapitre III, et en référence à la figure III.8, page 64, que la détermination de l'angle de joint de grains, pour un calcul CA, s'effectue selon une régression linéaire sur les points définissant le joint de grains. Néanmoins, cette régression n'est pas faite sur l'intégralité des points, mais sur un nuage de points correspondant aux premiers 25 % points inférieurs. Ce choix provient d'une seconde limite géométrique qui est observée seulement pour des configurations convergentes ($\phi_1 < \phi_2$) et une grille automate cellulaire suffisamment fine.

Un calcul CA 2D est réalisé afin de montrer cette seconde limite géométrique. Le couple angulaire choisi, et correspondant donc à un système convergent, est $(\phi_1, \phi_2) =$

$(-5^\circ, 25^\circ)$. La taille de cellule vaut $l_{CA} = 0,01 \mu\text{m}$. Le domaine de simulation est constitué de 400 cellules dans la direction verticale et 200 cellules dans la direction horizontale. Les propriétés matériau, paramètres procédé et numériques restants sont donnés tableau III.2, page 60. La structure de grain entièrement solidifiée est montrée figure A.1. On voit que deux angles de joint de grains distincts sont obtenus. Ces angles sont notés θ_{LG_1} et θ_{LG_2} , et correspondent à la première et seconde limite géométrique, respectivement. La première limite géométrique est celle qui a été développée dans la section 2.2 du chapitre III. La configuration de convergence propre au couple angulaire (ϕ_1, ϕ_2) , où $\phi_1 < \phi_2$, $\phi_1 + \phi_2 > 0^\circ$, correspond à la figure III.4 (C1a), page 54. Ainsi, la valeur $\theta_{LG_1} = -9,8^\circ$ est donnée par l'équation (III.7), page 53. Comme la valeur de θ_{LG_2} diffère grandement de celle de θ_{LG_1} , les parcours infinitésimaux montrés figure III.4 (C1a) permettant de retrouver θ_{LG_1} ne sont donc plus valables.

2 Formalisation

Afin de trouver une expression analytique donnant la valeur de θ_{LG_2} , il convient premièrement de considérer la branche primaire du grain g_2 et dont la croissance débute au point d'abscisse $x = 200 \times l_{CA}$ (extrémité droite), comme le montre la figure A.2 (a). À cet instant, cette branche primaire n'interagit pas encore avec les branchements du grains g_1 , localement au joint de grains. Les parcours infinitésimaux des embranchements du système convergent sont donc représentés figure A.2 (b). Cette configuration est identique à celle montrée figure III.4 (C1a), page 54.

La transition s'effectue lorsque la branche primaire de g_2 (figure A.2 (c)) interagit localement au joint de grains. À partir de cet instant, les parcours infinitésimaux schématisés figure III.4 (b) ne sont plus effectifs et un changement de régime s'opère. Les parcours infinitésimaux correspondants sont donc représentés figure A.2 (d) et on voit qu'une configuration « divergente » est obtenue entre une branche primaire de g_1 et une branche secondaire de g_2 . L'angle entre la direction du joint de grains et la direction de croissance de la branche primaire de g_2 est égal à $\phi_2 - \pi/2 - \theta_{LG_2}$. L'angle entre la direction du joint de grains et la direction de croissance de la branche primaire de g_1 reste, naturellement, égal à $\phi_1 - \theta_{LG_2}$. Notons que seul le grains g_2 subit un changement de branchement au joint de grains. Comme la configuration est maintenant divergente, il convient de reprendre les équations (III.10a), (III.10b), (III.10c) et (III.10d), page 55, en considérant les angles associés aux parcours infinitésimaux schématisés figure A.2 (d) :

$$\begin{cases} \delta x_1 = \delta x \cos(\phi_1 - \theta_{LG_2}) & (\text{A.1a}) \\ \delta x_2 = \delta x \sin(\phi_1 - \theta_{LG_2}) & (\text{A.1b}) \\ \delta x_3 = \delta x \cos(\phi_2 - \pi/2 - \theta_{LG_2}) & (\text{A.1c}) \\ \delta x_4 = -\delta x \sin(\phi_2 - \pi/2 - \theta_{LG_2}) & (\text{A.1d}) \end{cases}$$

Le grain g_2 étant le seul affecté par la transition, les équations (A.1a) et (A.1a) sont donc inchangées par rapport aux équations (III.10a) et (III.10b). En combinant les équations du système donné ci-dessus, on écrit :

$$\cos(\phi_1 - \theta_{LG_2}) + \sin(\phi_1 - \theta_{LG_2}) = \cos(\phi_2 - \pi/2 - \theta_{LG_2}) - \sin(\phi_2 - \pi/2 - \theta_{LG_2}) \quad (\text{A.2})$$

d'où finalement :

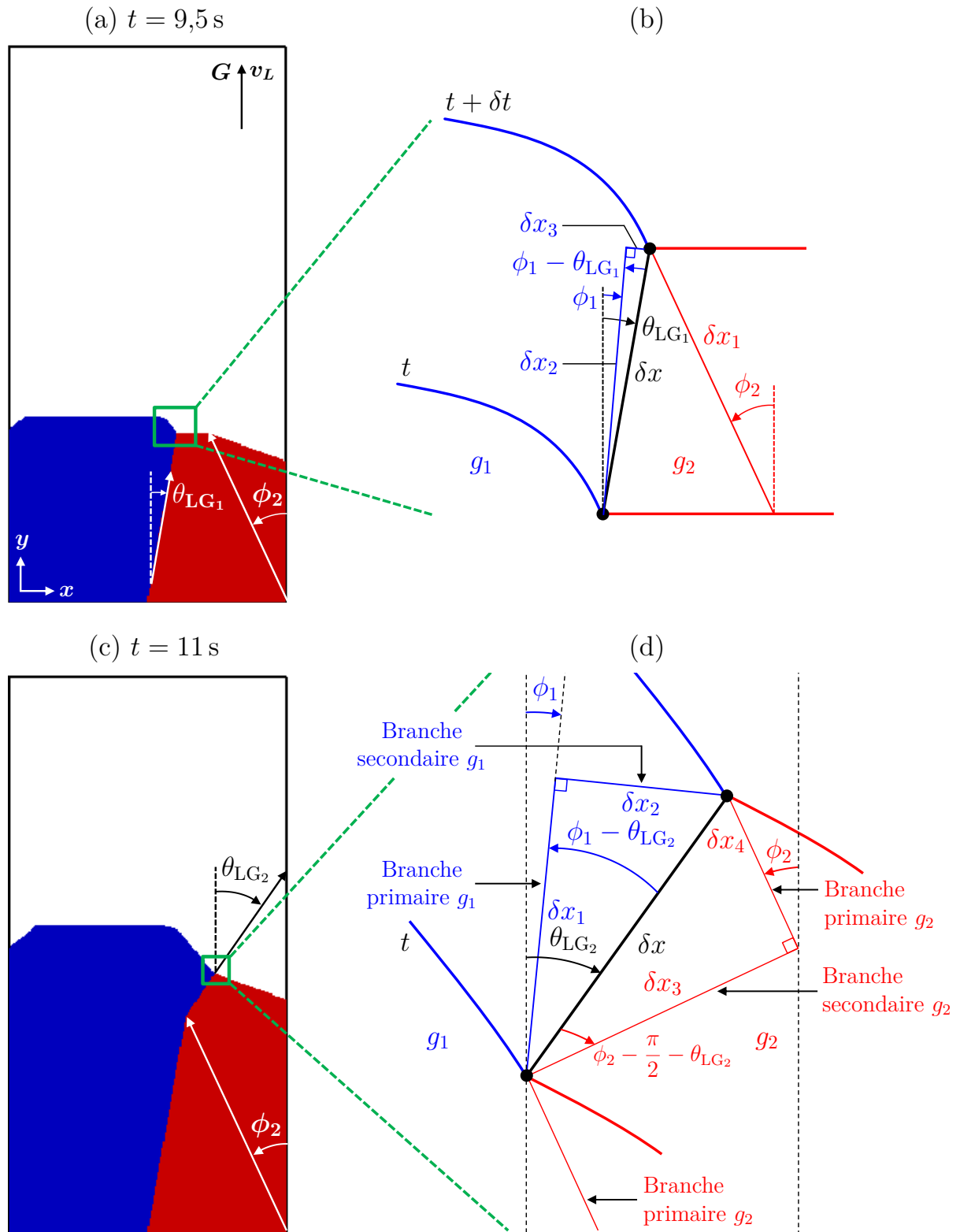


Figure A.2 – Résultat d'un calcul CA pour un bicristal convergent correspondant au couple angulaire $(\phi_1, \phi_2) = (-5^\circ, 25^\circ)$ aux temps (a) $t = 9,5 \text{ s}$ et (c) $t = 11 \text{ s}$. Schématisations des parcours infinitésimaux des branches primaires et secondaires au joint de grains menant à (b) la première limite géométrique et (d) la seconde limite géométrique.

$$\theta_{LG_2} = \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} - \frac{\pi}{4} \quad (\text{A.3})$$

Pour $\phi_1 = -5^\circ$ et $\phi_2 = 25^\circ$, l'application numérique donne effectivement $\theta_{LG_2} = -35^\circ$ et correspond bien à la valeur mesurée figure A.1. En généralisant, l'équation (A.3) est valable pour le domaine (C1) de la figure III.4. Il est alors trivial de montrer que pour le domaine (C2), on a :

$$\theta_{LG_2} = \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} + \frac{\pi}{4} \quad (\text{A.4})$$

Comme écrit précédemment, un changement d'orientation du joint de grains est observé car une branche primaire d'un grain, dont la croissance a débuté à une extrémité horizontale du domaine (figure A.2 (a)) peut interagir au joint de grains. Ces phénomènes ne sont donc observables que pour des configurations convergentes. Dans des configurations divergentes, les branches primaires des deux grains en compétition croissent dans des directions opposées. Ainsi, pour le domaine (D) de la figure III.4, la valeur de θ_{LG_2} reste donnée par l'équation (III.12).

3 Carte de sélection CA

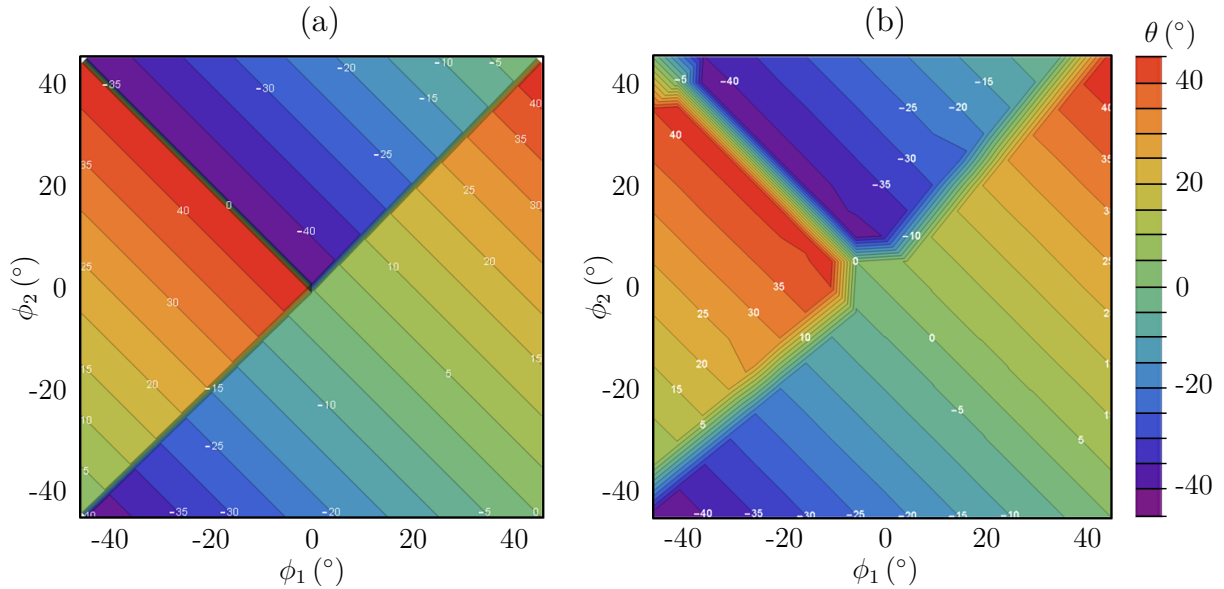


Figure A.3 – Cartes de sélection angulaire donnant les valeurs de l'angle de joint de grains θ en fonction de ϕ_1 (abscisse) et ϕ_2 (ordonnée) pour (a) la seconde limite géométrique et (b) les résultats CA où $l_{CA} = 0,01 \mu\text{m}$. La définition des angles ϕ_1 , ϕ_2 et θ est donnée figure III.1, page 49. Les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2 sont comprises dans l'intervalle $[-45^\circ, 45^\circ]$.

Premièrement, la carte de sélection analytique de la seconde limite géométrique et correspondant aux développements effectués précédemment est montrée figure A.3 (a). Par rapport à la première limite géométrique, figure III.5 page 55, le domaine de convergence ($\phi_1 < \phi_2$) diffère grandement. Bien entendu, le domaine de divergence ($\phi_1 > \phi_2$) reste inchangé.

Nous proposons maintenant d'effectuer une carte de sélection où l'angle θ de joint de grains est calculé sur les derniers 25 % points du nuage de points définissant le joint de

grains, et non les premiers 25 % comme montré figure III.8, page 64. La grille automate cellulaire est ici très fine avec $l_{CA} = 0,01 \mu\text{m}$. Les autres paramètres sont donnés tableau III.2. La carte de sélection résultante est montrée figure A.3 (b), et on voit qu'elle est effectivement très proche de la carte analytique.

Références

- [Abe74] T. Abe. “The growth of Si single crystals from the melt and impurity incorporation mechanisms”. *Journal of Crystal Growth* 24/24 (1974), p. 463-467.
- [ANR15] Agence Nationale de la Recherche. *Cristallisation du Silicium à partir de germes, effet des Impuretés Légères et des Défauts* / ANR. 2015. URL : <https://anr.fr/Projet-ANR-14-CE05-0046> (visité le 05/09/2019).
- [Art90] A.V. Artemyev, L.E Polyak et L.K. Fionova. “Atomic and electron structure of grain boundaries in silicon”. *Physique Colloque* 51 (1990), p. C71.
- [Baï09] J.P. Baïlon et J.M. Dorlot. *Des matériaux*. Troisième édition. Presses Internationales Polytechniques, 2009.
- [Bar87] A. Bary, B. Mercey, G. Poullain, J.L. Chermant et G. Nouet. “EBIC and conductance measurements in poly- and bicrystalline silicon”. *Revue de Physique Appliquée (Paris)* 22 (1987), p. 597-601.
- [Bey14] I.J. Beyerlein, X. Zhang et A. Misra. “Growth Twins and Deformation Twins in Metals”. *Annual Review of Materials Research* 44 (2014), p. 329-363.
- [Bog10] A. Bogno, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, E. Boller et J. Baruchel. “Application of synchrotron X-ray radiography to the study of dendritic equiaxed microstructure formation in Al-Cu alloys”. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 268 (2010), p. 39-48.
- [Bör02] T. Börzsönyi et S. Akamatsu. “Surface effects in nucleation and growth of smectic-b crystals in thin samples”. *Physical Review E* 66 (2002), p. 463-467.
- [Box58] GEP Box et ME Muller. “A Note on the Generation of Random Normal Deviates”. *Annals of Mathematical Statistics* 29 (1958), p. 610-611.
- [Bra66] D.G. Brandon. “The structure of high-angle grain boundaries”. *Acta Metallurgica* 14 (1966), p. 1479-1484.
- [Bri99] P.D. Bristowe. *Properties of Crystalline Silicon*. Hull R. (Ed.) EMIS, 1999, p. 299-308.
- [Bun82] H.J. Bunge. *Texture analysis in materials science : mathematical methods*. Butterworth & C, 1982.
- [Bus97] A. de Bussac et Ch.-A. Gandin. “Prediction of a process window for the investment casting of dendritic single crystals”. *Materials Science and Engineering : A* 237 (1997), p. 35-42.

- [Car12] T. Carozzani. “Développement d’un modèle 3D Automate Cellulaire-Éléments Finis (CAFE) parallèle pour la prédiction de structures de grains lors de la solidification d’alliages métalliques”. Thèse de doctorat. École nationale supérieure des mines de Paris, 2012.
- [Che07] P. Chen, Y.L. Tsai et C.W. Lan. “Phase field modeling of growth competition of silicon grains”. *Acta Materialia* 56 (2007), p. 4114-4122.
- [Cis97] T.F. Cizek, T.H. Wang, R.W. Burrows, X. Wu, J. Alleman, C.R. Schwertfeger et T. Bekkedahl. In : Proceedings of the 23rd IEEE Photovoltaic Specialist Conference. Louisville, 1997, p. 101-105.
- [Cur57] H. Curien et R. Kern. “Macles par contact et par pénétration. Essai d’interprétation causale”. *Bulletin de Minéralogie* 80 (1957), p. 111-132.
- [Duf10] T. Duffar. “Comprehensive review on grain and twin structures in bulk photovoltaic”. *Recent Research Developments in crystal growth* 5 (2010), p. 61-111.
- [Eik09] J. Eiken. “A Phase-Field model for technical alloy solidification”. Thèse de doctorat. Gießerei-Institut, 2009.
- [Ene16] Quelle Energie. *32 % d’énergie renouvelables pour 2013*. 2016. URL : <https://www.quelleenergie.fr/magazine/energies-renouvelables/32-dnergie-renouvelable-pour-2030> (visité le 20/08/2019).
- [Esa86] H. Esaka. “Dendrite growth and spacing in succinonitrile-acetone alloys”. Thèse de doctorat. École Polytechnique Fédérale de Lausanne, 1986.
- [Fle19] R. Fleurisson. “Modélisation multi-échelle parallélisée pour la prédiction de structures de grains dendritiques couplant les éléments finis, un automate cellulaire et un réseau de paraboles”. Thèse de doctorat. MINES ParisTech, 2019.
- [Fre87] J. Freund et B. Perles. “A new look at quartiles of ungrouped data”. *The American Statistician* 41 (1987), p. 200-203.
- [Gal11] B. Gallien, T. Duffar, S. Lay et F. Robaut. “Analysis of grain orientation in cold crucible continuous casting of photovoltaic Si”. *Journal of Crystal Growth* 318 (2011), p. 208-211.
- [Gan00] Ch.-A. Gandin. “Experimental Study of the Transition from Constrained to Unconstrained Growth during Directional Solidification”. *ISIJ International* 10 (2000), p. 971-979.
- [Gan94] Ch.-A. Gandin et M Rappaz. “A coupled finite element-cellular automaton model for the prediction of dendritic grain structures in solidification processes”. *Acta Metallurgica et Materialia* 42 (1994), p. 2233-2246.
- [Gan95] Ch.-A. Gandin, D. West et B. Adams. “Grains Texture Evolution during the Columnar Growth of Dendritic Alloys”. *Metallurgical and Materials Transactions A* 26 (1995), p. 1543-1551.
- [Gan96a] Ch.-A. Gandin, M. Eshelman et R. Trivedi. “Orientation dependence of primary dendrite spacing”. *Metallurgical and Materials Transactions A* 27 (1996), p. 2727-2739.
- [Gan96b] Ch.-A. Gandin et M. Rappaz. “Analytical and numerical predictions of dendritic grain envelopes”. *Acta Materialia* 44 (1996), p. 3339-3347.

- [Gan97] Ch.-A. Gandin et M. Rappaz. “A 3D Cellular Automaton algorithm for the prediction of dendritic grain growth”. *Acta Materialia* 45 (1997), p. 2187-2195.
- [Gan99] Ch.-A. Gandin, J.L. Desbiolles, M. Rappaz et P. Thévoz. “A Three-Dimensional Cellular Automaton-Finite Element Model for the Prediction of Solidification Grain Structures”. *Metallurgical and Materials Transactions A* 30 (1999), p. 3153-3165.
- [Gui04] G. Guillemot. “Formation de structures de grains dans des alliages à solidification Dendritique — modélisation couplée automates cellulaires et éléments finis”. Thèse de doctorat. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.
- [Gui08] P. Guillon. “Automates cellulaires : dynamiques, simulations, traces”. Thèse de doctorat. Université Paris-Est, 2008.
- [Guo17] C. Guo, J. Li, H. Yu, Z. Wang, X. Lin et J. Wang. “Wang, Branching-induced grain boundary evolution during directional solidification of columnar dendritic grains”. *Acta Materialia* 115 (2017), p. 148-163.
- [Hel80] D. Helmreich. “Electronic and optical properties of polycrystalline of impure semiconductors and novel silicon growth methods”. *The Electrochemical Society* (1980), p. 233-241.
- [Hie08] R. Hielscher et H. Schaeben. “A novel pole figure inversion method : specification of the MTEX algorithm”. *Journal of Applied Crystallography* 41 (2008), p. 1024-1037.
- [Hoy03] J. Hoyt, M. Asta et A. Karma. “Atomistic and continuum modeling of dendritic solidification, Materials Science and Engineering”. *Materials Science and Engineering : R : Reports* 41 (2003), p. 121-163.
- [Hua81] S.-C. Huang et M.E. Glicksman. “Overview 12 : Fundamentals of dendritic solidification—I. Steady-state tip growth”. *Acta Metallurgica* 29.5 (1981), p. 701-715.
- [Iva47] G.P. Ivantsov. “Temperature field around the spherical, cylindrical and needle-crystals which grows in supercooled melt”. *Doklady akademii Nauk SSSR* 58 (1947), p. 567-&.
- [Jac84] K.A. Jackson. “Crystal growth kinetics”. *Materials Science and Engineering* 65 (1984), p. 7-13.
- [Jha19] J.W. Jhang et C.W. Lan. “Three-dimensional phase field modelling of twin nucleation during directional solidification of multi-crystalline silicon”. *Journal of Crystal Growth* 520 (2019), p. 33-41.
- [Kur86] W. Kurz, B Giovanola et R. Trivedi. “Theory of microstructural development during rapid solidification”. *Acta Metallurgica* 33 (1986), p. 823-830.
- [Kur98] W. Kurz et D.J. Fisher. *Fundamentals of solidification*. Quatrième édition révisée. Trans Tech Publication Ltd, 1998.
- [Lan12] C.W. Lan, W.C. Lan, T.F. Lee, A. Yu, Y.M. Yang, W.C. Hsu et A. Yang. “Grain control in directional solidification of photovoltaic silicon”. *Journal of Crystal Growth* 360 (2012), p. 68-75.
- [Lan14] C.W. Lan et H.K. Lin. “Three-dimensional phase field modeling of silicon thin-film growth during directional solidification : Facet formation and grain competition”. *Journal of Crystal Growth* 401 (2014), p. 740-747.

- [Lee11] S.B. Lee et Y.M. Kim. “Direct observation of in-plane ordering in the liquid at a liquid Al/ α -Al₂O₃ ($\bar{1}10\bar{2}$) interface”. *Acta Materialia* 59 (2011), p. 1383-1388.
- [Li12] J. Li, Z. Wang, Y. Wang et J. Wang. “Phase-field study of competitive dendritic growth of converging grains during directional solidification”. *Acta Materialia* 60 (2012), p. 1478-1493.
- [Lib16] Liberation. *La France cherche à briller un peu plus dans l’énergie solaire*. 2016. URL : https://www.liberation.fr/france/2018/06/28/la-france-cherche-a-briller-un-peu-plus-dans-l-energie-solaire_1662634 (visité le 21/08/2019).
- [Man08] N. Mangelinck-Noël et T. Duffar. “Modelling of the transition from a planar faceted front to equiaxed growth : Application to photovoltaic polycrystalline silicon”. *Journal of Crystal Growth* 311 (2008), p. 20-25.
- [Mar03] M. Martorano, C. Beckermann et Ch.-A. Gandin. “A solutal interaction mechanism for the columnar-to-equiaxed transition in alloy solidification”. *Metallurgical and materials transactions a-physical metallurgy and materials science* 34A (2003), p. 1657-1674.
- [Mel12] A.J. Melendez et C. Beckermann. “Measurements of dendrite tip growth and sidebranching in succinonitrile-acetone alloys”. *Journal of Crystal Growth* 340 (2012), p. 175-189.
- [Min16] Ministère de la transition écologique et solidaire. *Les énergies renouvelables en France : les chiffres clés 2018*. 2016. URL : <https://www.ecologique-solidaire.gouv.fr/energies-renouvelables-en-france-chiffres-cles-2018> (visité le 20/08/2019).
- [Mir04] R.A. Miron et K.A. Fichthorn. “Multiple-Time Scale Accelerated Molecular Dynamics : Addressing the Small-Barrier Problem”. *Physical Review Letters* 93 (2004), p. 128301.
- [Moe08] N. Moelans, B. Blanpain et P. Wollants. “An introduction to phase-field modeling of microstructure evolution”. *Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry* 32 (2008), p. 268-294.
- [Mul64] W.W. Mullins et R.F. Sekerka. “Stability of planar interface during solidification of dilute binary alloy”. *Journal of applied physics* 35 (1964), p. 444-&.
- [Nad12] A. Nadri. “Modélisation de la microstructure des grains dans le silicium multicristallin pour les applications photovoltaïque”. Thèse de doctorat. Université de Grenoble, 2012.
- [Nad14] A. Nadri, Y. Duterrail-Couvat et T. Duffar. “Two-dimensional numerical modeling of grain structure in multi-crystalline silicon ingot”. *Journal of Crystal Growth* 385 (2014), p. 16-21.
- [Nag05] K. Nagashio et K. Kuribayashi. “Growth mechanism of twin-related and twin-free facet Si dendrites”. *Acta Materialia* 53 (2005), p. 3021-3029.
- [Pin18] A. Pineau, G. Guillemot, D. Tournet, A. Karma et Ch.-A. Gandin. “Growth competition between columnar dendritic grains – Cellular automaton versus phase field modeling”. *Acta Materialia* 155 (2018), p. 286-301.
- [Pli95] S. Plimpton. “Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics”. *Journal of Computational Physics* 117 (1995), p. 1-19.

- [Poh10] P. Pohl, M. Müller, A. Seild et K. Albe. “Formation of parallel (111) twin boundaries in silicon growth from the melt explained by molecular dynamics simulations”. *Journal of Crystal Growth* 312 (2010), p. 1411-1415.
- [Pou06] V. Poupet. “Automates cellulaires : temps réel et voisinages”. Thèse de doctorat. École Normale Supérieure de Lyon, 2006.
- [Qi19] Xi. Qi, Lijun. Liu, T. Ribéri-Béridot, N. Mangelick-Noël et Miller. W. “Simulation of grain evolution in solidification of silicon on meso-scopic scale”. *Computational Materials Science* 159 (2019), p. 432-439.
- [Que03] T. Quested. *DoITPoMS - Micrograph and record*. 2003. URL : https://www.doitpoms.ac.uk/miclib/micrograph_record.php?id=711 (visité le 21/08/2019).
- [Rai71] P. Rai-Choudhury et D. K. Schroder. “Selective Growth of Epitaxial Silicon and Gallium Arsenide”. *Journal of the Electrochemical Society* 118 (1971), p. 107-110.
- [Rap93] M. Rappaz et Ch.-A. Gandin. “Probabilistic modelling of microstructure formation in solidification processes”. *Acta Metallurgica et Materialia* 41 (1993), p. 345-360.
- [Ree06] R. Reed. “The superalloys. Fundamentals and applications”. *Cambridge University Press* (2006).
- [Rib15] T. Ribéri-Béridot, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, G. Reinhart, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel et L. Barrallier. “On the impact of twinning on the formation of the grain structure of multi-crystalline silicon for photovoltaic applications during directional solidification”. *Journal of Crystal Growth* 418 (2015), p. 38-44.
- [Rib17] T. Ribéri-Béridot. “*In situ* characterization by X-ray synchrotron imaging of the solidification of silicon for the photovoltaic applications : control of the grain structure and interaction with the defects and the impurities”. Thèse de doctorat. Aix-Marseille Université, 2017.
- [RSC19] Royal Society of Chemistry. *Silicon - Element information, properties and use / Periodic Table*. 2019. URL : <http://www.rsc.org/periodic-table/element/14/silicon> (visité le 28/08/2019).
- [Sai12] Z. Said-Bacar. “Élaboration et caractérisations de silicium polycristallin par cristallisation en phase liquide du silicium amorphe”. Thèse de doctorat. Université Paris Sud - Paris XI, 2012.
- [Son18] Y. Song. *Communication personnelle, Northeastern University* (2018).
- [Sou16] Y. Souhar, V. De Felice, C. Beckermann et H. Combeau. “Three-dimensional mesoscopic modeling of equiaxed dendritic solidification of a binary alloy”. *Computational Materials Science* 112 (2016), p. 304-317.
- [Sri10] V. Srinivasan, KM. Moon, D. Greif et D. Wang. “Numerical simulation of immersion quenching process of an engine cylinder head”. *Mathematical Modelling* 34 (2010), p. 2111-2128.

- [Sta17] V. Stamelou, M.G. Tsoutsouva, T. Riberi-Beridot, G. Reinhart, G. Regula, J. Baruchel et N. Mangelinck-Noël. “ $\{111\}$ facet growth laws and grain competition during silicon crystallization”. *Journal of Crystal Growth* 479 (2017), p. 1-8.
- [Ste99] I. Steinbach, C. Beckermann, B. Kauerauf, Q. Li et J. Guo. “Three-dimensional modeling of equiaxed dendritic growth on a mesoscopic scale”. *Acta Materialia* 47 (1999), p. 971-982.
- [Tak13] T. Takaki, Takashi S., Munekazu O., Akinori Y. et Takayuki A. “Unexpected selection of growing dendrites by very-large-scale phase-field simulation”. *Journal of Crystal Growth* 382 (2013), p. 21-25.
- [Tak16a] T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane et T. Shimokawabe ANB T. Aoki. “Two dimensional phase-field study of competitive grain growth during directional solidification of polycrystalline binary alloy”. *Journal of Crystal Growth* 442 (2016), p. 14-24.
- [Tak16b] T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe et T. Aoki. “Large-scale phase-field studies of three-dimensional dendrite competitive growth at the converging grain boundary during directional solidification of a bicrystal binary alloy”. *ISIJ Int.* 56 (2016), p. 1427-1435.
- [Tak18] T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Aoki et Ch-A. Gandin. “Competitive grain growth during directional solidification of a polycrystalline binary alloy : Three-dimensional large-scale phase-field study”. *Materialia* 1 (2018), p. 104-113.
- [Tan12] A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, J.-J. Furter, B. Billa et T. Lafford. “Real time observation of the directional solidification of multicrystalline silicon : X-ray imaging characterization”. 27 (2012), p. 82-87.
- [Tan13a] A. Tandjaoui. “Solidification dirigée du silicium multi-cristallin pour les applications photovoltaïques : caractérisation in situ et en temps réel par imagerie X synchrotron”. Thèse de doctorat. Aix-Marseille Université, 2013.
- [Tan13b] A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billa, T. Lafford et J. Baruchel. “Investigation of grain boundary grooves at the solid-liquid interface during directional solidification of multi-crystalline silicon : in situ characterization by X-ray imaging”. *Journal of Crystal Growth* 377 (2013), p. 203-211.
- [Tou13] D. Tournet et A. Karma. “Multiscale dendritic needle network model of alloy solidification”. *Acta Materialia* 61 (2013), p. 6474-6491.
- [Tou15] D. Tournet et A. Karma. “Growth competition of columnar dendritic grains : A phase-field study”. *Acta Materialia* 82 (2015), p. 64-83.
- [Tou17] D. Tournet, Y. Song, A.J. Clarke et A. Karma. “Grain growth competition during thin-sample directional solidification of dendritic microstructures : A phase-field study”. *Acta Materialia* 122 (2017), p. 220-235.
- [Tso16] M.G. Tsoutsouva, T. Riberi-Béridot, G. Regula, G. Reinhart, J. Baruchel, F. Guittoneau, L. Barrallier et N. Mangelinck Noel. “*In situ* investigation of the structural defect generation and evolution during the directional solidification of $\langle 110 \rangle$ seed growth Si”. *Acta Materialia* 115 (2016), p. 210-223.

-
- [Vor72] V.V Voronkov. “Undercooling at the face developing on a rounded crystallization front”. *Kristallografiya* 17 (1972), p. 909-917.
- [Wal59] D. Walton et B. Chalmers. “The origin of the preferred orientation in the columnar zone of ingots”. *Transactions of the metallurgical society* 215 (1959), p. 3339-3347.
- [Waw97] P. Wawer, S. Irmscher et H.-G. Wagemann. In : Proceedings of the 26th IEEE Photovoltaic Specialist Conference. T. 58. Berlin, 1997, p. 127-130.
- [Wil03] J. Williams et E. Starke. “Progress in structural materials for aerospace systems”. *Acta Materialia* 51 (2003), p. 5775-5799.
- [Won14] Y.T. Wong, C. Hsu et C.W. Lan. “Development of grain structures of multicrystalline silicon from randomly orientated seeds in directional solidification”. *Journal of Crystal Growth* 387 (2014), p. 10-15.
- [Zho08] Y.Z. Zhou, A. Volek et N.R. Green. “Mechanism of competitive grain growth in directional solidification of a nickel-base superalloy”. *Acta Materialia* 56.11 (2008), p. 2631-2637.

RÉSUMÉ

Les structures de grains résultantes des procédés de solidification influencent fortement les propriétés des pièces industrielles. Ceci est notamment le cas pour les propriétés mécaniques des pièces de fonderie en alliage métallique, ou les propriétés électriques des cellules photovoltaïques de silicium. L'approche CA-FE (*Cellular Automaton - Finite Elements*) permet de modéliser l'évolution des structures de grains dans les procédés de solidification à l'échelle macroscopique, mais conduit à réaliser des approximations des modèles de croissance aux échelles plus fines. Dans ce travail deux axes d'étude sont proposés. Premièrement, des simulations CA de compétition de croissance entre grains colonnaires sont réalisées pour un alliage de succinonitrile-0,4% pds acétone. Ceci est effectué en déterminant l'angle de joint grains en solidification dirigée. Ce travail est comparé à une étude champ de phase visant à étudier la relation entre orientations cristallographiques des grains en compétition et orientation de leur frontière. Les résultats obtenus avec l'approche CA sont très proches des résultats champ de phase pour un intervalle de taille de cellule centré autour de la marche maximale entre deux pointes de dendrites stationnaires de deux grains en compétition. La configuration d'Esaka, correspondant à une compétition de croissance dans un alliage de succinonitrile-1,3% pds acétone, a aussi été étudiée par l'approche CA. Le travail sur la croissance du silicium polycristallin a été réalisé dans le cadre du projet ANR CrySaLID. La méthode CA a été enrichie afin de permettre la modélisation de la croissance d'interfaces facettées et de la germination de grains en relation de macle sur ces interfaces. Ces développements utilisent des approches géométriques basées sur des observations expérimentales *in situ* et *ex situ*. Le modèle résultant a été confronté expérimentalement et donne de bons accords qualitatif et quantitatif. Finalement, le modèle est appliqué à un cube de dimensions centimétriques. Il a été montré que les spécificités liées à la croissance du silicium polycristallin, à savoir la formation de facettes et la germination de grains en relation de macle, modifient drastiquement la structure de grains en comparaison avec une microstructure dendritique.

MOTS CLÉS

Solidification, structure de grains, compétition de croissance, silicium polycristallin, automate cellulaire

ABSTRACT

Grain structures obtained during solidification processes strongly influence the properties of technical products. It is specially the case for cast parts in metallic alloys, or for silicon photovoltaic cells. The CA-FE (*Cellular Automaton - Finite Elements*) method aims to model grain structure evolution during solidification at a macroscopic scale, but also lead to the development of some approximations at smaller scales. In this work, two distinct studies are proposed. First, CA simulations of growth competition among columnar dendritic grains are carried out for a succinonitrile-0.4 wt% acetone alloy. This is achieved by computing the grain boundary orientation during directional solidification. Comparisons are subsequently conducted with recent phase field results derived under the same conditions. An excellent agreement is found with phase field simulations results within a range of intermediate cell size centered around the maximum step between primary stationary dendrite tips of the two competing grains. The Esaka configuration, corresponding to a dendritic growth competition for a succinonitrile-1.3 wt% acetone alloy, is also studied. Polycrystalline silicon growth was investigated within the ANR CrySaLID project. The CA method was enriched to allow facets growth and grain nucleation in twin relationship modeling. These developments use a geometrical approach based on *in situ* and *ex situ* experimental observations. The resulting numerical model was applied to experimental configurations and good qualitative and quantitative agreements were found. Simulations over a cubic and centimetric domain were lastly conducted. It was found that facets growth and twin nucleations strongly modify the grains structure compared to a dendritic microstructure.

KEYWORDS

Solidification, grain structure, growth competition, polycrystalline silicon, cellular automaton