

12

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

22 Date de dépôt : 03.07.18.

30 Priorité :

43 Date de mise à la disposition du public de la demande : 10.01.20 Bulletin 20/02.

56 Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du présent fascicule*

60 Références à d'autres documents nationaux apparentés :

○ Demande(s) d'extension :

71 Demandeur(s) : INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE — FR et CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE — FR.

72 Inventeur(s) : CHICHIGNOUD GUY et FAUVEAU AURELIE.

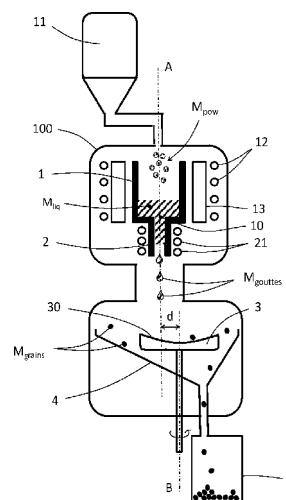
73 Titulaire(s) : INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE, CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE.

74 Mandataire(s) : CABINET HAUTIER.

54 PROCÉDE ET DISPOSITIF DE GRANULATION.

57 L'invention a pour objet un procédé de granulation comprenant une étape de pré-granulation destinée à former un écoulement discontinu d'un métal liquide, sous forme d'un flux de gouttelettes, et une étape d'atomisation destinée à former des granules de métal solides par fragmentation et solidification des gouttelettes reçues sur un disque tournant refroidi.

Un autre objet de l'invention est un système de granulation comprenant un creuset et un capillaire relié au creuset, et un dispositif de génération d'un écoulement discontinu de métal liquide en sortie du capillaire configuré pour former un flux de gouttelettes. Le système comprend également un disque tournant refroidi configuré pour recevoir le flux de gouttelettes, fragmenter et solidifier les gouttelettes de façon à former des granules de métal solides.



## DOMAINE DE L'INVENTION

La présente invention est relative au domaine de la granulation de métal fondu. L'invention concerne plus particulièrement un équipement et un procédé permettant d'obtenir des granules de métal à partir de métal fondu. Elle trouvera pour application  
5 avantageuse mais non limitative la production de granules de silicium.

## ARRIERE-PLAN TECHNOLOGIQUE

La production de granules à partir de métal fondu peut être avantageusement mise en œuvre pour le recyclage de poudres de silicium.

Ces poudres de silicium sont généralement issues de la découpe de lingots de  
10 silicium lors de la production de plaquettes de silicium, par exemple dans une chaîne de production de cellules solaires. Jusqu'à 50% des lingots peut ainsi être réduit en poudre et perdu.

Un enjeu important pour la production industrielle de plaquettes de silicium consiste à valoriser ces poudres, notamment sous forme de matériau recyclé  
15 réutilisable pour la production de lingots.

Ces poudres ne peuvent cependant pas être réutilisées directement dans un creuset de solidification de lingot. Elles présentent en effet un taux d'oxygène élevé, ne permettent qu'un faible taux de remplissage des creusets, et sont volatiles.

Ces poudres nécessitent donc une mise en forme avant de pouvoir être  
20 réinsérées dans un creuset de solidification de lingot dans la chaîne de production de cellules solaires.

Une solution de mise en forme consiste à fondre ces poudres puis à former des granules de métal solides à partir du matériau fondu. Cette solution est appelée granulation.

25 Plusieurs solutions de granulation de métal fondu ont été divulguées.

Le document « L.Nygaard et al., Water granulation of ferrosilicon and silicon metal, Infacon, Norway, 1995 » propose une méthode de granulation par projection de gouttes de métal en fusion dans un bain d'eau liquide.

Cette méthode n'est cependant pas adaptée à la granulation industrielle de  
30 silicium, et plus généralement à la granulation de métaux dont l'oxyde n'est pas passivant.

Pour ces métaux, un inconvénient de cette méthode est la formation de dihydrogène gazeux lors de la solidification des gouttes en granules et de leur oxydation. Le dihydrogène gazeux présente en effet un large domaine d'explosivité.  
35 Les problématiques de sécurité liées à ce gaz rendent cette méthode inapplicable industriellement.

Le document US 5094832 divulgue un procédé de production de poudres de silicium par atomisation d'un jet continu de silicium fondu par un flux de gaz sous pression.

5 Un inconvénient de ce procédé est son coût de mise en œuvre. L'utilisation d'un flux de gaz sous pression nécessite en effet un réseau de fluide dont le coût d'entretien est élevé. En outre, la consommation de gaz lors de l'atomisation augmente également le coût d'exploitation d'un tel procédé.

10 Le document « S.J.Savage et al., Production of rapidly solidified Metals and Alloys, Journal of Metals, April 1984 » présente différentes techniques de solidification rapide pour les métaux et alliages. Il présente notamment la méthode de solidification rapide de métal liquide par centrifugation. Cette méthode consiste à projeter un flux continu de métal liquide sur un disque tournant refroidi. Les vitesses de rotation du disque tournant sont de l'ordre de 35000 tours/min.

15 Un inconvénient de cette méthode est qu'elle requiert une énergie de centrifugation élevée. En particulier, une telle vitesse de rotation de l'ordre de 35000 tours/min est complexe à mettre en œuvre.

20 Un autre inconvénient de cette méthode est une dégradation rapide des pièces mécaniques de l'équipement. En particulier, les éléments mécaniques d'un disque tournant à cette vitesse de rotation sont soumis à des contraintes mécaniques fortes, et peuvent subir une usure rapide. La fiabilité de cette méthode est donc réduite. Sa mise en œuvre présente un coût de fonctionnement élevé.

25 Un autre inconvénient de cette méthode est la gestion complexe du système de refroidissement dans le disque tournant. Un système de refroidissement adapté à une telle vitesse de rotation du disque tournant est en effet particulièrement complexe et coûteux à réaliser.

Un objet de la présente invention est de pallier au moins l'un des inconvénients mentionnés ci-dessus.

30 En particulier, un objet de la présente invention est de proposer un procédé de formation de granules de métal solides dont le coût de mise en œuvre est réduit et/ou dont la fiabilité est améliorée.

Un autre objet de la présente invention est de proposer un procédé de formation de granules de métal solides compatible avec une production industrielle.

35 Un autre objet de la présente invention est de proposer un procédé de formation de granules de silicium à partir de poudre de silicium issue de la découpe de lingots de silicium.

Un autre objet de l'invention est de proposer un système de formation de granules de métal solides fiable et compatible avec une production industrielle de granules de métal solides.

## 5        RESUME DE L'INVENTION

Un premier aspect de l'invention concerne un procédé de formation de granules de métal à l'état solide à partir de ce métal à l'état liquide, dit procédé de granulation.

Avantageusement, ce procédé comprend au moins les étapes suivantes :

- Une étape de pré-granulation comprenant au moins les étapes suivantes :
  - 10            o Fournir le métal à l'état liquide dans un creuset,
  - o Former un écoulement continu du métal liquide en entrée d'au moins un capillaire relié audit creuset, puis
  - o Former, à partir de l'écoulement continu, un écoulement discontinu du métal liquide de sorte à générer un flux de gouttelettes de métal
  - 15            o Recevoir le flux de gouttelettes de métal liquide chutant en sortie dudit au moins un capillaire, et
- Une étape d'atomisation comprenant au moins les étapes suivantes :
  - o Recevoir le flux de gouttelettes généré sur une surface de réception d'un récipient tournant, ladite surface étant en rotation de sorte à fractionner les gouttelettes, ladite surface présentant en
  - 20            outre une température au moins deux fois inférieure, et de préférence au moins dix fois inférieure, à une température de fusion du métal, de sorte à solidifier des fractions liquides de gouttelettes en granules solides.

25            Le procédé de granulation selon l'invention présente un coût de mise en œuvre réduit. En particulier, le coût de mise en œuvre de ce procédé est inférieur à celui d'un procédé d'atomisation par un flux de gaz sous pression.

              Au contraire, l'utilisation d'une surface en rotation suffisamment froide pour fractionner le flux de métal liquide et solidifier le métal sous forme de granules permet

30            de limiter les coûts du procédé de granulation. Dès lors, les coûts de mise en œuvre de ce procédé de granulation sont acceptables au regard de la valeur ajoutée du procédé. Ce procédé peut donc être exploité industriellement.

              Selon l'invention, l'énergie de centrifugation requise pour fractionner un flux

35            continu de métal liquide en fractions suffisamment petites pour qu'elles se solidifient sous forme de granules, peut avantageusement être significativement réduite, en

particulier par rapport aux différentes techniques de solidification rapide présentées dans le document « S.J.Savage et al., Production of rapidly solidified Metals and Alloys, Journal of Metals, April 1984 ».

5            Selon le procédé de la présente invention, la formation préalable d'un flux de gouttelettes permet en effet de réduire considérablement l'énergie de centrifugation nécessaire au fractionnement de ce flux sur la surface de réception du récipient tournant. En particulier, la vitesse de rotation de la surface de réception du récipient tournant peut être considérablement réduite, par exemple d'un facteur dix.

10           Le procédé de granulation de la présente invention présente donc un coût de mise en œuvre réduit et une fiabilité améliorée par rapport aux procédés de granulation existants.

             Le procédé de granulation de la présente invention est donc particulièrement avantageux pour une production industrielle de granules de métal solides.

15           Par ailleurs, le procédé de granulation proposé relève d'une méthode de granulation dite « à sec » qui ne génère pas d'hydrogène.

             Un deuxième aspect de l'invention concerne un système de formation de granules de métal à l'état solide, dit système de granulation, comprenant un creuset destiné à contenir ledit métal à l'état liquide, au moins un capillaire s'étendant depuis le creuset et configuré pour permettre un écoulement du métal liquide, et au moins un récipient tournant présentant une surface de réception destinée à recevoir l'écoulement de métal liquide et comprenant un dispositif de refroidissement de la surface de réception.

25           Avantagement, le système comprend un dispositif de génération d'un écoulement discontinu de métal liquide à partir d'un écoulement continu de métal liquide en entrée de l'au moins un capillaire, de sorte à générer un flux de gouttelettes de métal liquide chutant en sortie dudit au moins un capillaire, le récipient tournant est configuré pour que la surface de réception soit mise en rotation et le dispositif de refroidissement est configuré pour que la surface de réception présente une température au moins deux fois inférieure, et de préférence au moins dix fois inférieure, à une température de fusion du métal, de sorte à solidifier des fractions liquides de gouttelettes en granules solides.

35           Ce système permet avantagement de mettre en œuvre le procédé de granulation selon le premier aspect de l'invention. Les effets techniques et avantages

de ce système correspondent *mutatis mutandis* aux effets techniques et avantages du procédé selon le premier aspect de l'invention.

#### BREVE INTRODUCTION DES FIGURES

5 D'autres caractéristiques, buts et avantages de la présente invention apparaîtront à la lecture de la description détaillée qui suit, et en regard des dessins annexés donnés à titre d'exemples non limitatifs et sur lesquels :

- la figure 1 illustre un système de formation de granules de métal à l'état solide selon un mode de réalisation de l'invention ;
- 10 - la figure 2 illustre un agrandissement d'une partie du système illustré sur la figure 1.

Les dessins sont donnés à titre d'exemples et ne sont pas limitatifs de l'invention. Ils constituent des représentations schématiques de principe destinées à faciliter la compréhension de l'invention et ne sont pas nécessairement à l'échelle des applications pratiques. Notamment, la taille des particules de poudre chutant dans le creuset peut en fait être beaucoup plus petite que la taille des granules de métal solide formés *in fine*.

#### DESCRIPTION DETAILLEE

L'invention selon son premier aspect comprend notamment les caractéristiques optionnelles ci-après pouvant être utilisées en association ou alternativement :

- Le procédé comprend, après l'étape d'atomisation, une éjection des granules par centrifugation.
- Le procédé comprend, après éjection des granules, une étape de collecte des granules solides éjectées.
- 25 - l'étape d'atomisation est paramétrée de sorte qu'une vitesse de rotation de la surface de réception soit comprise entre 100 tours/min et 3000 tours/min, de préférence sensiblement égale à 500 tours/min.

Une telle étape d'atomisation requiert une énergie de mise en œuvre réduite en particulier par rapport à des techniques nécessitant des vitesses de rotation plus de dix fois supérieures.

- l'étape de génération de l'écoulement discontinu comprend une étape de déstabilisation de l'écoulement continu par application d'un champ magnétique modulé sur ledit écoulement continu de métal liquide.

Une telle étape de déstabilisation permet avantageusement de former un flux de gouttelettes comprenant des gouttelettes de taille homogène. Ce flux de gouttelettes

de taille homogène donne lieu, après l'étape d'atomisation, à des granules de métal solides de taille homogène.

- le champ magnétique modulé est appliqué à l'écoulement continu de métal liquide au moins partiellement contenu au sein de l'au moins un capillaire.
- 5 - le champ magnétique modulé est appliqué à l'écoulement continu de métal liquide chutant en sortie de l'au moins un capillaire.
- le champ magnétique est modulé en fréquence, par exemple selon une fréquence comprise entre 100 Hz et 10 kHz.

Un ajustement de la fréquence dans cette gamme permet de contrôler la taille des gouttelettes. Un tel ajustement permet en outre de produire un flux de gouttelettes de  
10 taille homogène à partir de différents métaux à l'état liquide.

- la génération de l'écoulement discontinu se fait par capillarité au sein de l'au moins un capillaire.
- la génération de l'écoulement discontinu se fait par capillarité au sein de  
15 l'au moins un capillaire et par application d'un champ magnétique modulé à l'écoulement continu.
- la génération de l'écoulement discontinu se fait uniquement par application d'un champ magnétique modulé à l'écoulement continu.
- le procédé comprend en outre une étape d'alimentation du creuset par une  
20 poudre du métal à l'état solide.

Le procédé permet avantageusement de recycler des poudres de métal à l'état solide.

- le métal est l'un parmi du silicium, de l'aluminium, un alliage d'aluminium-silicium et du gallium.
- 25 Le procédé permet avantageusement de produire des granules de l'un parmi du silicium, de l'aluminium, un alliage d'aluminium-silicium et du gallium.

L'invention selon son deuxième aspect comprend notamment les caractéristiques optionnelles ci-après pouvant être utilisées en association ou  
30 alternativement :

- le récipient tournant est configuré pour que la surface de réception présente une vitesse de rotation comprise entre 100 tours/min et 3000 tours/min, de préférence sensiblement égale à 500 tours/min.

Une telle vitesse permet de limiter l'usure des pièces mécaniques en rotation. La  
35 fiabilité est ainsi augmentée et le coût de maintenance du système est réduit. Une

telle vitesse permet en outre une gestion simplifiée du dispositif de refroidissement de la surface de réception. Le coût du dispositif de refroidissement est également réduit.

- le dispositif de génération de l'écoulement discontinu comprend l'un au moins parmi l'au moins un capillaire et un dispositif de production d'un champ magnétique modulé.
- le dispositif de production d'un champ magnétique modulé est configuré pour déstabiliser l'écoulement continu du métal liquide par application sur ledit écoulement continu d'un champ magnétique modulé selon une fréquence comprise entre 100 Hz et 10 kHz.

Ce dispositif permet de contrôler précisément la taille des gouttelettes, pour différents métaux à l'état liquide.

- le dispositif de production d'un champ magnétique modulé est configuré pour coopérer au moins partiellement avec l'au moins un capillaire de sorte à ce que ledit champ magnétique génère une instabilité de l'écoulement du métal liquide au sein et/ou en dehors de l'au moins un capillaire, afin de former des gouttelettes de taille homogène en sortie dudit au moins un capillaire.

Ce dispositif de production d'un champ magnétique peut être avantageusement placé autour de l'au moins un capillaire, par exemple afin d'améliorer l'homogénéité des granules formées selon l'invention.

- la surface de réception est concave.

Une surface de réception concave permet d'augmenter le temps de contact entre la surface refroidie et les fractions de gouttelettes de métal liquide, en particulier avant éjection des granules par centrifugation. Le refroidissement des fractions de gouttelettes se fait plus rapidement. La solidification rapide des fractions de gouttelettes en granules est améliorée.

- la surface de réception présente un centre de rotation décalé d'une distance  $d$  par rapport à un axe d'écoulement ou de chute des gouttelettes en sortie de l'au moins un capillaire, la distance  $d$  étant de préférence supérieure à un demi-rayon de la surface de réception.

Un centre de rotation décalé permet d'éviter une accumulation de gouttelettes et/ou de granules au centre de la surface de réception, où la vitesse est nulle.

- la surface de réception est revêtue par un matériau barrière configuré pour limiter une contamination des gouttelettes de métal liquide par le matériau constituant le récipient tournant.



Dans la présente demande de brevet, la hauteur est prise selon une direction parallèle à l'écoulement libre d'un flux de métal liquide chutant par gravité.

5 Dans le cadre de la présente invention, on entend par « métal » un matériau présentant un comportement métallique à l'état liquide. Ce matériau peut se présenter sous forme de corps simple ou sous forme d'alliage.

10 On entend par « capillaire » un tube de très faible diamètre intérieur, par exemple compris entre 0,1 mm et 5 mm, et de préférence compris entre 0,5 mm et 5 mm. Le capillaire permet notamment de diminuer la pression d'un fluide circulant au travers.

On entend par « matériau barrière » un matériau chimiquement inerte vis-à-vis des métaux liquides. Un tel matériau intercalé entre un métal liquide et une surface portant ce métal forme avantageusement une barrière à l'interdiffusion d'espèces entre les espèces du métal liquide et le ou les matériaux constituant ladite surface.

15 On entend par « sensiblement égale à » une valeur donnée, « égale à ladite valeur donnée à plus ou moins 10% près de cette valeur ».

On entend par « passivant » la qualité d'un oxyde métallique formant un film protecteur sur un métal solide. Un granule d'un métal dont l'oxyde est passivant peut par exemple être refroidi dans de l'eau sans que le granule ne s'oxyde davantage.

20

Nous allons maintenant décrire l'invention en détail en regard des figures annexées.

25 La figure 1 illustre un mode de réalisation d'un système de granulation selon l'invention permettant de mettre en œuvre un procédé de granulation selon l'invention. La description qui suit se base donc sur cette figure 1, pour décrire à la fois les parties du système de granulation et les étapes du procédé de granulation.

30 Le procédé de granulation selon l'invention comprend au moins une étape de pré-granulation destinée à former un flux de gouttelettes de métal liquide, suivie d'une étape d'atomisation destinée à former des granules de métal solide à partir du flux de gouttelettes de métal liquide.

35 Le système de granulation selon l'invention comprend au moins un creuset 1 présentant un diamètre compris de préférence entre 5 cm et 50 cm, apte à recevoir un métal liquide  $M_{liq}$ . Ce creuset 1 peut être à base de graphite par exemple.

Les parois du creuset 1 sont de préférence inertes chimiquement vis-à-vis du métal, afin d'éviter une contamination ou une pollution du métal liquide  $M_{liq}$ . Elles peuvent être revêtues par un matériau formant barrière à la diffusion des espèces constituant le creuset 1.

5 Ce creuset 1 peut en particulier recevoir du silicium liquide, ou de l'aluminium liquide par exemple, ou tout autre métal dont l'oxyde métallique n'est pas passivant.

De tels creusets 1 sont largement connus de l'homme du métier.

10 Le système de granulation est de préférence confiné dans une enceinte 100 à pression atmosphérique. Cette atmosphère peut être contrôlée, par exemple par une mise sous vide ou par un remplissage avec un gaz neutre tel que l'argon.

Une telle atmosphère contrôlée permet avantageusement de purger les gaz formés lors de la fusion du métal solide en métal liquide par exemple.

15 Une telle atmosphère contrôlée permet également d'éviter l'oxydation du métal contenu dans l'enceinte 100.

Afin d'amorcer le procédé, le creuset 1 est de préférence d'abord pré-rempli par le métal solide, sous forme de poudre  $M_{pow}$  par exemple, avant de fondre ce métal pour obtenir un bain de métal liquide  $M_{liq}$  directement au sein du creuset 1.

20 Cette étape de pré-remplissage peut également s'effectuer avec un bloc de métal solide pour davantage d'efficacité.

La fusion d'un bloc de métal solide est avantageusement plus facile à réaliser que la fusion d'une poudre de ce métal, en particulier si la poudre est partiellement oxydée.

25 En outre, pour une hauteur de pré-remplissage du creuset 1 par le métal solide donnée, le volume du bain de métal liquide  $M_{liq}$  résultant de la fusion d'un bloc de métal solide peut être supérieur au volume de métal liquide résultant de la fusion d'une poudre de ce métal, notamment parce que la densité du bloc de métal est plus grande que la densité de la poudre de métal.

30

Dans le cas d'une poudre de silicium fortement oxydée, un dispositif de production de silicium fondu à partir de cette poudre est par exemple décrit dans la demande de brevet FR 18/00572.

35 Afin d'obtenir le bain de métal liquide  $M_{liq}$  au sein du creuset 1, le système comprend de préférence un dispositif de chauffage configuré pour fondre le métal solide, de préférence directement au sein du creuset 1.

Ce dispositif de chauffage peut être configuré pour chauffer le métal solide par rayonnement et/ou conduction des parois et du fond du creuset 1. Il peut alternativement être configuré pour chauffer directement le métal par induction ou de façon résistive.

5 Des spires 12 peuvent par exemple être disposées autour du creuset 1, et séparées du creuset 1 par un élément d'isolation 13, de façon à générer un phénomène d'induction électromagnétique au sein du métal et, par suite, à fondre ce métal.

10 A l'issue de l'étape de pré-remplissage, le chauffage du métal solide initialement contenu par le creuset 1, sous forme de bloc et/ou de poudre, permet d'obtenir un bain initial de métal liquide.

Le creuset 1 présente de préférence un orifice de sortie 10 au niveau du fond du creuset 1, de façon à ce que le métal liquide  $M_{liq}$  s'écoule. Cet orifice 10 est de  
15 préférence relié à un capillaire 2, de façon à contrôler l'écoulement du métal liquide.

Le procédé peut dès lors être avantageusement amorcé.

20 Le creuset 1 peut alors être à nouveau rempli par le métal solide, le métal solide peut ensuite être fondu, de façon à ce que le métal liquide s'écoule à nouveau par l'intermédiaire du capillaire 2.

Ce procédé est de préférence continu.

25 Le creuset 1 est de préférence alimenté par une poudre du métal  $M_{pow}$  au niveau d'une partie supérieure.

Le système peut comprendre un réservoir 11 de poudre ou un autre dispositif d'alimentation en poudre  $M_{pow}$  en partie supérieure.

30 L'étape d'alimentation en poudre du creuset peut être configurée pour délivrer la poudre de métal  $M_{pow}$  de façon continue ou de façon intermittente.

Le chauffage du métal au sein du creuset 1 est de préférence entretenu de sorte à maintenir un bain de métal liquide dans le creuset 1.

35 L'étape de pré-remplissage, qui n'est qu'optionnelle et facultative, permet de fondre la poudre de métal  $M_{pow}$  provenant du réservoir 11 plus rapidement.

En effet, la poudre de métal  $M_{\text{pow}}$  fond plus facilement par contact avec le bain initial de métal liquide, que par les seuls effets du contact avec le creuset 1. Le bain initial de métal liquide permet donc de former plus rapidement et d'entretenir le bain de métal liquide  $M_{\text{liq}}$  à partir duquel le procédé de granulation peut être mis en œuvre en continu.

Afin que le métal liquide s'écoule au travers du capillaire 2, le bain de métal liquide  $M_{\text{liq}}$  doit présenter une hauteur minimale  $H_{\text{min}}$  dans le creuset 1. Cette hauteur minimale  $H_{\text{min}}$  peut être définie en fonction des propriétés physiques intrinsèques du métal à une température considérée, et en fonction de la taille du capillaire 2.

La figure 2 illustre les conditions d'écoulement du bain de métal liquide. Le métal liquide s'écoule au travers d'un capillaire 2 cylindrique de rayon  $R$ , si la force de pesanteur associée au poids de la colonne 20 de métal liquide est supérieure aux forces de tension superficielle en circonférence de cette colonne 20.

La colonne 20 présente une hauteur totale  $H$  et se situe en partie dans le creuset 1 et en partie dans le capillaire 2.

La hauteur de colonne 20 dans le creuset 1 est  $h_1$ , et la hauteur de colonne 20 dans le capillaire 2 est  $h_2$ , tel que  $H = h_1 + h_2$ .

Dès lors, les conditions d'écoulement sont vérifiées si :

$$\rho g \pi R^2 H > \gamma 2 \pi R$$

Soit 
$$H > \frac{2\gamma}{\rho g R}$$

où  $\rho$  est la masse volumique du liquide,

et  $\gamma$  la tension de surface du liquide à la température considérée.

La hauteur minimale de colonne 20 pour que l'écoulement puisse se faire est :

$$\frac{2\gamma}{\rho g R}$$

La hauteur minimale  $H_{\text{min}}$  dans le creuset 1 pour que l'écoulement puisse se faire est donc :  $H_{\text{min}} = \frac{2\gamma}{\rho g R} - h_2$ .

Le débit d'alimentation en poudre est de préférence configuré de sorte que la hauteur du bain liquide dans le creuset 1 soit toujours supérieure à  $H_{\text{min}}$ .

Dès lors, le procédé de granulation peut être continu.

Les tableaux ci-dessous illustrent, de façon non limitative, quelques valeurs de hauteur minimale dans la colonne 20 en fonction du rayon du capillaire 2, pour le silicium et pour l'aluminium.

5 Par exemple, pour du silicium à 1450°C :

La tension de surface  $\gamma_{\text{Si}}^{1450^\circ\text{C}}$  est égale à 730 mN/m, d'après « F.Millot et al, *The surface tension of liquid silicon at high temperature*, Materials Science and Engineering A 495 (2008) 8–13 », et la masse volumique  $\rho_{\text{Si}}^{1450^\circ\text{C}}$  est égale à 2,57 g.cm<sup>-3</sup>, d'après « H.Sasaki et al, *Density Variation of Molten Silicon Measured by an Improved Archimedian Method*, Jpn J Appl. Phys. 33 (1994) pp. 3803-3807 ».

10

Le silicium liquide à 1450°C va donc s'écouler dès lors que la hauteur H de la colonne 20 est supérieure à la valeur  $H_{\text{min}}$  indiquée dans le tableau ci-dessous :

Rayon R du capillaire 2 (mm)	Hauteur $H_{\text{min}}$ de la colonne 20 (cm)
3	1,93
4	1,44
5	1,15
6	0,96

15

Par exemple, pour de l'Aluminium à 660°C :

La tension de surface  $\gamma_{\text{Al}}^{660^\circ\text{C}}$  est égale à 1040 mN/m, d'après « V.Sarou-Kanian, *Surface Tension and Density of Oxygen-Free Liquid Aluminum at High Temperature*, International Journal of Thermophysics, (2003) Vol. 24, No. 1 », et la masse volumique  $\rho_{\text{Al}}^{660^\circ\text{C}}$  est égale à 2.38 g.cm<sup>-3</sup>, d'après <https://www.aqua-calc.com/page/density-table/substance/liquid-blank-aluminum> par exemple.

20

L'aluminium liquide à 660°C va donc s'écouler dès lors que la hauteur H de la colonne 20 est supérieure à la valeur  $H_{\text{min}}$  indiquée dans le tableau ci-dessous :

Rayon R du capillaire 2 (mm)	Hauteur $H_{\text{min}}$ de la colonne 20 (cm)
3	2,97
4	3
5	1,78
6	1,48

25

Le rayon  $R$  du capillaire 2 peut être compris entre 2 mm et 10 mm.

De façon préférée et avantageuse, la hauteur  $h_2$  du capillaire 2 est non nulle, et comprise entre 1mm et 50mm.

Un tel capillaire 2 dénommé également « nez de goutte » permet d'éviter un  
5 écoulement non contrôlé du métal liquide au niveau de l'orifice de sortie 10 dans le fond du creuset 1, en particulier au niveau des bords de cet orifice 10.

Ce « nez de goutte » permet d'équilibrer les pressions entre le haut de la colonne 20 et le bas de la colonne 20, évitant ainsi la formation d'une colonne de gaz centrale au sein de la colonne 20. Une telle colonne de gaz est en effet préjudiciable  
10 au contrôle de l'écoulement de métal liquide, puisque celui-ci se fait alors sur les bords de l'orifice 10.

Le nez de goutte permet en outre de prévenir un étalement de la gouttelette de métal liquide depuis les bords de l'orifice 10 sur une face externe du fond du creuset 1.

15 L'écoulement du métal liquide conduit, en présence d'un nez de goutte, à un grossissement de la gouttelette en sortie du nez de goutte ou, en l'absence de nez de goutte, à un étalement de la gouttelette sous forme d'un film liquide sur la face externe du fond du creuset 1 (par minimisation de l'énergie de surface).

Le nez de goutte permet de créer une paroi verticale favorisant un écoulement  
20 sous forme de gouttelettes par gravité.

Le métal liquide  $M_{liq}$  peut dès lors s'écouler de façon continue au niveau de l'orifice de sortie 10, en entrée du capillaire 2, et de façon discontinue sous forme de gouttelettes  $M_{gouttes}$  en sortie du capillaire 2.

25

Afin de provoquer une transition entre l'écoulement continu et l'écoulement discontinu, une instabilité est volontairement créée dans l'écoulement continu du métal liquide.

Cette instabilité peut être induite par capillarité, en choisissant une hauteur  $h_1$   
30 =  $h_{1eq}$  de métal liquide dans le creuset 1, et en faisant varier la hauteur  $h_1$  autour de  $h_{1eq}$ .

Une telle hauteur  $h_{1eq}$  est de préférence choisie de manière à ce la force de pesanteur associée au poids de la colonne 20 de métal liquide de hauteur  $h_{1eq}$  soit sensiblement égale aux forces de tension superficielle en circonférence de cette  
35 colonne 20. Cette hauteur  $h_{1eq}$  correspond dès lors à un point d'équilibre pour l'écoulement du métal liquide.

Un écoulement discontinu peut être formé en faisant varier légèrement les conditions du bain de métal liquide autour d'un tel point d'équilibre.

En particulier, une hauteur de colonne 20 légèrement supérieure à cette hauteur  $h_{1eq}$  entrainera la chute d'une gouttelette de métal liquide. Ainsi, l'ajout de  
5 poudre  $M_{pow}$  dans le creuset 1 entrainera *in fine* la chute de la gouttelette.

Une hauteur de colonne 20 légèrement inférieure à cette hauteur  $h_{1eq}$  stoppera l'écoulement de métal liquide. Ainsi, après la chute de la gouttelette, la hauteur de colonne 20 diminuera et l'écoulement de métal liquide sera stoppé,  
10 notamment jusqu'à ce qu'un nouvel ajout de poudre  $M_{pow}$  dans le creuset 1 permette à nouveau l'écoulement sous forme de gouttelette.

Cette instabilité peut également être induite par un champ magnétique variable présentant une fréquence de l'ordre du kHz.

Le champ magnétique est appliqué à l'écoulement continu de métal liquide, de  
15 préférence au niveau du capillaire 2.

Un tel champ magnétique permet de générer une instabilité contrôlée et reproductible dans l'écoulement de métal liquide. Dès lors, les gouttelettes  $M_{gouttes}$  formées en sortie du capillaire 2 présentent avantageusement une taille homogène.

Les caractéristiques du champ magnétique, en particulier sa fréquence,  
20 dépendent des propriétés du métal considéré.

Par exemple, le document intitulé « Formation of uniformly-sized droplets from capillarity jet by electromagnetic force. Seventh International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries. Australia, 2009 » présente la déstabilisation d'un flux de gallium liquide par un champ magnétique, et la production de gouttelettes de  
25 gallium de taille homogène.

Selon ce document, la production de gouttelettes de gallium de taille homogène intervient pour un champ magnétique de l'ordre de 320 Hz.

Ce champ magnétique est tel qu'il génère un intervalle de distance entre gouttelettes qui correspond à une longueur d'onde de déstabilisation intrinsèque de  
30 l'écoulement de métal liquide. Cette longueur d'onde dépend notamment de la tension de surface et de la résistivité du métal liquide.

La fréquence du champ magnétique peut être ajustée en fonction du métal dont l'écoulement est à déstabiliser.

La fréquence du champ magnétique peut être comprise entre 100 Hz et 1500  
35 Hz.

Avantageusement, le système de granulation peut comprendre une bobine électromagnétique 21 disposée autour du capillaire 2, de façon à générer ce champ électromagnétique et, par suite, l'instabilité dans l'écoulement continu.

5 Selon une possibilité préférée, l'instabilité est induite de façon combinée par capillarité et par le champ magnétique variable.

La distribution des tailles de gouttelettes présente dès lors un écart type réduit. La reproductivité de cette distribution est en outre améliorée.

10 Le débit massique du flux de gouttelettes s'écoulant en sortie du capillaire 2, dénommé débit massique de sortie, peut être compris entre 0 et  $60\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ , préférentiellement entre 1 et  $20\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ , en fonction du dimensionnement du ou des capillaires 2.

15 Le débit d'alimentation en poudre peut être réglé selon le débit massique de sortie souhaité.

La formation du flux de gouttelettes en sortie du capillaire 2 correspond à la fin de l'étape de pré-granulation.

20 L'étape d'atomisation suivante est destinée à former des granules solides de métal  $M_{\text{grains}}$ , à partir du flux de gouttelettes  $M_{\text{gouttes}}$ .

Les gouttelettes de métal liquide  $M_{\text{gouttes}}$  sont de préférence recueillies sur la surface de réception 30 en rotation d'un disque tournant 3.

25 Cette surface de réception 30 peut présenter un diamètre compris entre 10 cm et 50 cm, de préférence entre 10 cm et 30 cm.

Les gouttelettes tombent de préférence directement sur la surface de réception 30 en rotation. La hauteur de chute des gouttelettes de métal liquide, prise entre le capillaire 2 et la surface 30 peut être comprise entre 1cm et 1m.

30

La rotation de ce disque tournant 3 permet d'atomiser les gouttelettes, c'est-à-dire de les fragmenter. Cette fragmentation permet d'obtenir des fractions de gouttelettes pouvant être solidifiées rapidement par refroidissement.

35 Le refroidissement s'effectue de préférence directement par contact avec la surface de réception 30. Le temps de contact dépend notamment de la rotation de la



surface 30. La vitesse de rotation du disque tournant 3 est notamment choisie de sorte que les gouttelettes de métal liquide se solidifient avant de quitter la surface de réception 30 du disque tournant 3.

5 Cette surface 30 est de préférence refroidie par la circulation d'un fluide à température ambiante dans le disque tournant 3, par exemple de l'eau à 18°C.

Afin d'augmenter l'échange thermique entre les gouttelettes de métal liquide et la surface 30 refroidie du disque tournant 3, cette surface 30 est préférentiellement en métal à conductivité thermique élevée, par exemple en cuivre ou en fonte.

10 Préférentiellement, la surface de réception 30 du disque tournant 3 est concave afin d'augmenter le temps de contact entre la surface 30 refroidie et les gouttelettes de métal liquide. Le refroidissement est ainsi optimisé.

La fragmentation par rotation d'un flux de gouttelettes requiert avantageusement moins d'énergie que la fragmentation par rotation d'un flux continu.

15 La vitesse de rotation du disque tournant 3 peut dès lors être comprise entre 100 et 3000 tours par minute.

Une telle vitesse inférieure d'un facteur 10 aux vitesses de rotation des procédés de solidification rapide décrits dans la littérature permet avantageusement de simplifier le système de granulation, et de fiabiliser le système et le procédé de granulation.

20 En particulier, le dispositif de refroidissement du disque tournant 3 peut être relativement simple à mettre en œuvre, contrairement à un dispositif de refroidissement d'un disque tournant à une vitesse de rotation de l'ordre de 35000 tours/min, pour lequel des problèmes de cavitation peuvent par exemple apparaître.

25 La surface 30 peut être protégée par un matériau barrière afin de limiter toute contamination entre le métal liquide et la surface 30 du disque 3. Par exemple dans le cas du silicium, la surface 30 peut être protégée par une couche de nitrure de silicium, de silice ou de graphite.

30 Après fragmentation et refroidissement, les fractions de gouttelettes se solidifient sous forme de granules  $M_{\text{grains}}$ .

Ces granules peuvent ensuite être éjectées par la force centrifuge vers l'extérieur du disque tournant 3.

35 Selon une possibilité préférée, le centre de rotation de la surface de réception 30 porté par l'axe B est décalé d'une distance  $d$  de l'axe A d'écoulement du flux de

gouttelettes, afin d'éviter une accumulation de matière au centre du disque tournant 3 où la vitesse de rotation est nulle. La distance  $d$  est préférentiellement supérieure à 50% du rayon du disque.

5           Après éjection, les granules de métal solides  $M_{\text{grains}}$  peuvent ensuite être recueillies dans un réceptacle 4 en forme d'entonnoir par exemple, et dirigées dans un récipient 5 amovible, en vue de leur utilisation ultérieure.

10           En particulier, le dispositif et le procédé selon l'invention peuvent être avantageusement mis en œuvre pour produire de façon industrielle des granules de silicium à partir de poudres de silicium. Ces granules de silicium peuvent ensuite être avantageusement utilisées dans une chaîne de production de la filière du silicium photovoltaïque.

            La production de granules peut présenter un débit massique compris entre 0 et  $60 \text{ kg.h}^{-1}$ , préférentiellement entre 1 et  $20 \text{ kg.h}^{-1}$ .

15

            L'invention n'est pas limitée aux modes de réalisation précédemment décrits mais s'étend à tous modes de réalisation entrant dans la portée des revendications.

20           En particulier, le métal peut être un alliage métallique, par exemple un alliage d'aluminium-silicium AlSi.

            Les axes A d'écoulement du flux de gouttelettes et B de rotation du disque tournant ne sont pas nécessairement parallèles entre eux.

## REVENDEICATIONS

1. Procédé de formation de granules de métal à l'état solide ( $M_{\text{grains}}$ ) à partir de ce métal à l'état liquide ( $M_{\text{liq}}$ ), caractérisé en ce qu'il comprend au moins les étapes suivantes :
  - 5 - Une étape de pré-granulation comprenant au moins les étapes suivantes :
    - o Fournir le métal à l'état liquide ( $M_{\text{liq}}$ ) dans un creuset (1),
    - o Former un écoulement continu du métal liquide en entrée d'au moins un capillaire (2) relié audit creuset (1), puis
    - 10 o Former, à partir de l'écoulement continu, un écoulement discontinu du métal liquide ( $M_{\text{liq}}$ ) de sorte à générer un flux de gouttelettes de métal liquide ( $M_{\text{gouttes}}$ ) chutant en sortie dudit au moins un capillaire (2), et
    - Une étape d'atomisation comprenant au moins les étapes suivantes :
      - 15 o Recevoir le flux de gouttelettes ( $M_{\text{gouttes}}$ ) générées sur une surface de réception (30) d'un récipient tournant (3), ladite surface (30) étant en rotation de sorte à fractionner les gouttelettes, ladite surface (30) présentant en outre une température au moins deux fois inférieure, et de préférence au moins dix fois inférieure, à une
        - 20 température de fusion du métal, de sorte à solidifier des fractions liquides de gouttelettes en granules solides ( $M_{\text{grains}}$ ).
2. Procédé selon la revendication précédente, dans lequel l'étape d'atomisation est paramétrée de sorte qu'une vitesse de rotation de la surface de réception
  - 25 (30) soit comprise entre 100 tours/min et 3000 tours/min.
3. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel l'étape de génération de l'écoulement discontinu comprend une étape de déstabilisation de l'écoulement continu par application d'un champ
  - 30 magnétique modulé sur ledit écoulement continu de métal liquide.
4. Procédé selon la revendication précédente, dans lequel le champ magnétique est modulé selon une fréquence comprise entre 100 Hz et 10 kHz.

5. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, comprenant en outre une étape d'alimentation du creuset (1) par une poudre du métal à l'état solide ( $M_{pow}$ ).
- 5 6. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel le métal est l'un parmi du silicium, de l'aluminium, un alliage d'aluminium-silicium et du gallium.
7. Système de formation de granules de métal à l'état solide ( $M_{grains}$ ),  
10 comprenant un creuset (1) destiné à contenir ledit métal à l'état liquide ( $M_{liq}$ ), au moins un capillaire (2) s'étendant depuis le creuset (1) et configuré pour permettre un écoulement du métal liquide ( $M_{liq}$ ), et au moins un récipient tournant (3) présentant une surface de réception (30) destinée à recevoir l'écoulement de métal liquide ( $M_{liq}$ ) et comprenant un dispositif de refroidissement de la surface de réception (30), ledit système étant  
15 caractérisé en ce qu'il comprend un dispositif de génération d'un écoulement discontinu de métal liquide à partir d'un écoulement continu de métal liquide en entrée de l'au moins un capillaire (2), de sorte à générer un flux de gouttelettes de métal liquide ( $M_{gouttes}$ ) chutant en sortie dudit au moins un  
20 capillaire (2), et en ce que le récipient tournant (3) est configuré pour que la surface de réception (30) soit mise en rotation et le dispositif de refroidissement est configuré pour que la surface de réception (30) présente une température au moins deux fois inférieure, et de préférence au moins dix fois inférieure, à une température de fusion du métal, de sorte à solidifier des  
25 fractions liquides de gouttelettes en granules solides ( $M_{grains}$ ).
8. Système (10) selon la revendication précédente dans lequel le récipient tournant (3) est configuré pour que la surface de réception (30) présente une  
30 vitesse de rotation comprise entre 100 tours/min et 3000 tours/min.
9. Système (10) selon l'une quelconque des deux revendications précédentes dans lequel le dispositif de génération de l'écoulement discontinu comprend l'un au moins parmi l'au moins un capillaire (2) et un dispositif de production d'un champ magnétique modulé.  
35
10. Système (10) selon la revendication précédente dans lequel le dispositif de production d'un champ magnétique modulé est configuré pour déstabiliser

l'écoulement continu du métal liquide par application sur ledit écoulement continu d'un champ magnétique modulé selon une fréquence comprise entre 100 Hz et 10 kHz.

- 5 11. Système (10) selon l'une quelconque des revendications 7 à 10, dans lequel la surface de réception (30) est concave.
- 10 12. Système (10) selon l'une quelconque des revendications 7 à 11, dans lequel la surface de réception (30) présente un centre de rotation décalé d'une distance  $d$  par rapport à un axe (A) d'écoulement des gouttelettes ( $M_{\text{gouttes}}$ ) en sortie de l'au moins un capillaire (2), la distance  $d$  étant de préférence supérieure à un demi-rayon de la surface de réception (30).
- 15 13. Système (10) selon l'une quelconque des revendications 7 à 12 dans lequel la surface de réception (30) est revêtue par un matériau barrière configuré pour limiter une contamination des gouttelettes de métal liquide ( $M_{\text{gouttes}}$ ) par le matériau constituant le récipient tournant (3).

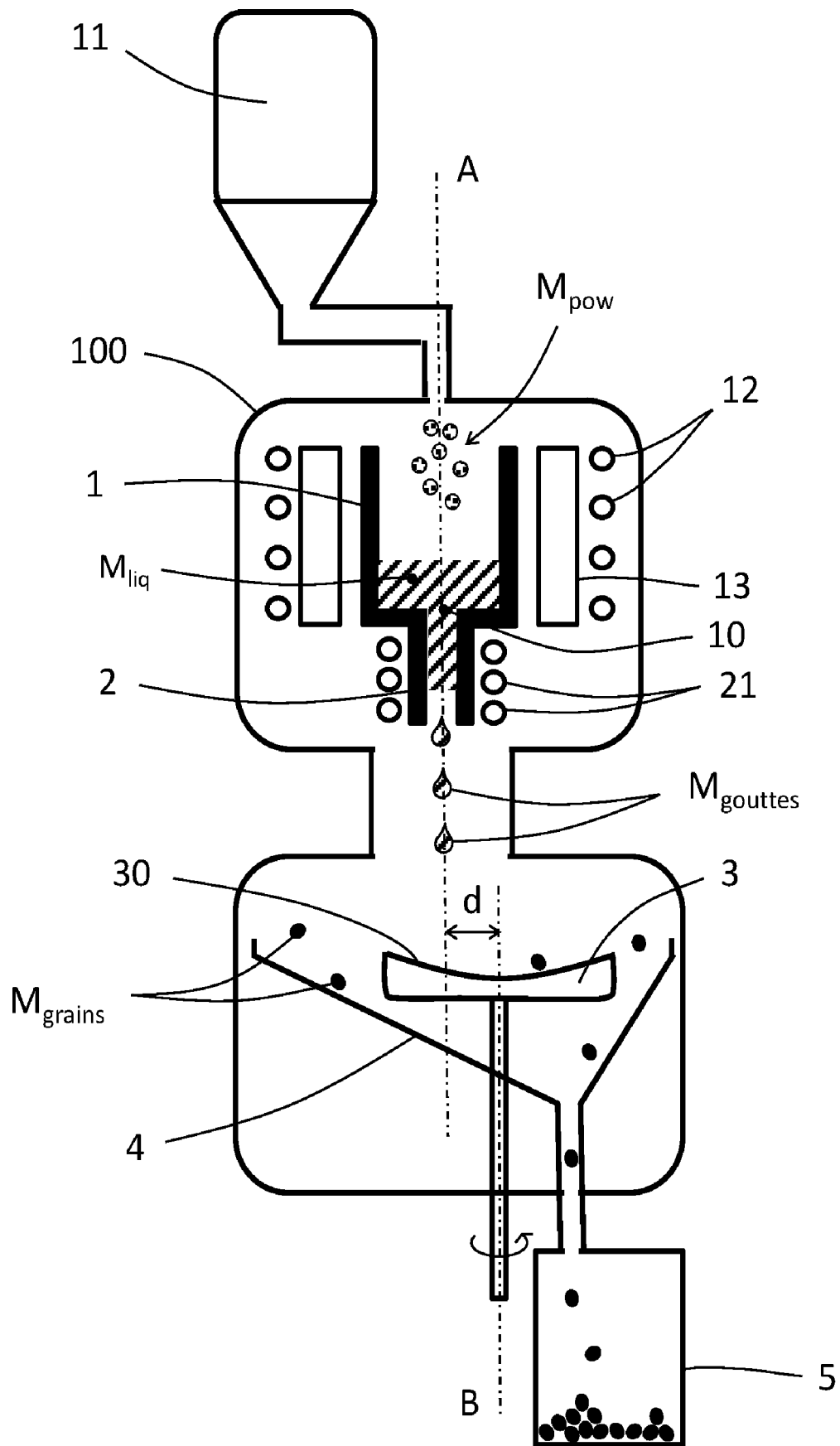


Figure 1

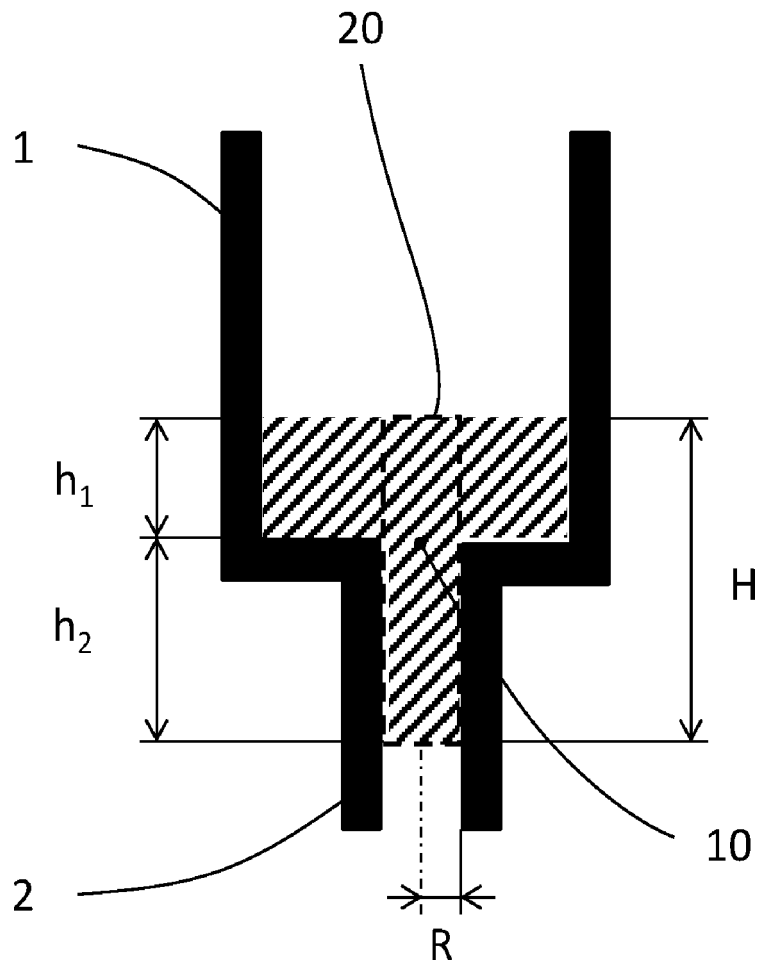


Figure 2



**RAPPORT DE RECHERCHE  
PRÉLIMINAIRE**

N° d'enregistrement  
national

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

FA 855077  
FR 1856138

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	EP 0 486 319 A1 (MASUMOTO TSUYOSHI [JP]; YOSHIDA KOGYO KK [JP]; TEIKOKU PISTON RING CO) 20 mai 1992 (1992-05-20)	1,2,5-8, 11-13	B22F9/10
Y	* page 4, ligne 5 - ligne 20 * * figure 2 *	3,4,9,10	
X	----- CN 107 838 430 A (LIU QINDONG) 27 mars 2018 (2018-03-27)	1,5-7, 11,13	
Y	* alinéas [0022] - [0033] * * figure 1 *	3,4,9,10	
X	----- HOU L G ET AL: "Optimizing microstructures of hypereutectic Al-Si alloys with high Fe content via spray forming technique", MATERIALS SCIENCE AND ENGINEERING: A, ELSEVIER, AMSTERDAM, NL, vol. 527, no. 23, 15 septembre 2010 (2010-09-15), pages 6400-6412, XP027197322, ISSN: 0921-5093 [extrait le 2010-07-23]	1,5-7, 11,13	
Y	* 2. Experimental procedure *	3,4,9,10	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC) B22F C01B
Y	----- S. SHIMASAKI ET AL: "Formation of uniformly sized metal droplets from a capillary jet by electromagnetic force", APPLIED MATHEMATICAL MODELLING, vol. 35, no. 4, 1 avril 2011 (2011-04-01), pages 1571-1580, XP055548257, GB ISSN: 0307-904X, DOI: 10.1016/j.apm.2010.09.033 * abrégé * * figure 6 *	3,4,9,10	
		Date d'achèvement de la recherche	Examineur
		30 janvier 2019	Gomes Pinto F., R
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons ..... & : membre de la même famille, document correspondant	
X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire			



**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE  
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 1856138 FA 855077**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.

Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du **30-01-2019**

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 0486319	A1	20-05-1992	AU 642372 B2	14-10-1993
			DE 69106113 D1	02-02-1995
			DE 69106113 T2	11-05-1995
			EP 0486319 A1	20-05-1992
			JP H083121 B2	17-01-1996
			JP H04183802 A	30-06-1992
			US 5198042 A	30-03-1993
-----				
CN 107838430	A	27-03-2018	AUCUN	
-----				