

Identification des propriétés radiatives de matériaux fibreux de faible densité pour des applications à hautes températures.

Sébastien LE FOLL¹, Agnès DELMAS^{1*}, Frédéric ANDRE¹, Maxime ROGER¹

¹ Université de Lyon, CNRS, CETHIL, INSA Lyon, UMR5008, F-69621, France

* (auteur correspondant : agnes.delmas@insa-lyon.fr)

Résumé - Le principe d'une méthode d'identification de propriétés radiatives macroscopiques basée sur des mesures spectrométriques d'émission radiative à haute température ($1250\text{K} < T < 1750\text{K}$) associées à une méthode Monte Carlo, est présenté. Les coefficients d'absorption et de diffusion spectraux d'une céramique à base de fibres de silice (SiO_2) orientées aléatoirement, sont présentés comme exemple de résultats pouvant être obtenus par cette approche s'appuyant à la fois sur une métrologie radiative fine et sur des modèles de transfert radiatif en milieux participants.

Nomenclature

c	vitesse de propagation, $m.s^{-1}$	λ	longueur d'onde, μm
L	luminance, $W.m^{-2}.sr^{-1}$	σ	nombre d'onde, cm^{-1}
T	température, K	<i>Indices et exposants</i>	
<i>Symboles grecs</i>		abs	absorption
κ	coefficient d'absorption ou de diffusion, cm^{-1}	Ch	Christiansen
		$diff$	diffusion

1. Introduction

Un grand nombre de barrières thermiques utilisées pour des applications spatiales - protection de véhicules pour les réentrées atmosphériques - sont composées de matériaux hétérogènes de faible densité (feutres de carbone, céramiques poreuses, etc...). L'utilisation de matériaux à porosité élevée pour les Systèmes de Protection Thermique est imposée par la nécessité de réduire le poids embarqué par les véhicules spatiaux. Il est par conséquent fréquent de se confronter à la présence du transfert thermique par rayonnement au sein de tels systèmes ; ce mode de transfert s'avérant indésirable puisque susceptible d'entraîner une diminution significative des performances d'isolation de la barrière. Le dimensionnement de l'épaisseur minimum de matériau nécessaire implique l'étude du transfert de chaleur au travers du matériau. La modélisation des transferts thermiques couplés permet de conclure quant au rôle, prédominant, significatif, ou raisonnablement négligeable du rayonnement par rapport aux autres modes de transfert que sont la conduction et la convection. Pour cela la détermination des propriétés radiatives de matériaux hétérogènes, à des températures autres que l'ambiante, s'avère incontournable pour des applications à hautes température ($T > 1700$ K).

De nombreux travaux ont été dédiés à l'optimisation de barrières thermiques pour l'aéronautique [1-4] ou les Systèmes de Protection Thermique pour la réentrée atmosphérique de véhicules spatiaux [5]. Dans les travaux les plus anciens lorsque le transfert de chaleur est étudié il est considéré purement conductif. L'optimisation de la barrière consiste alors à diminuer sa conductivité thermique phonique en élaborant des matériaux fibreux ou poreux à faible densité. Ce type de matériau à structure hétérogène favorise la présence du rayonnement thermique volumique.

Plus récemment, des travaux portant sur le comportement radiatif de revêtements céramiques utilisés comme barrières thermiques ont été publiés [6-7].

Depuis quelques années le CETHIL consacre une partie de ses activités de recherche à l'étude du comportement radiatif de tels matériaux pour des applications à hautes températures [8-9]. L'étude du transfert radiatif pour les applications visées décrites précédemment ne peut être pertinente que si les propriétés radiatives utilisées pour la modélisation sont déterminées à haute température. Or la détermination des propriétés s'appuyant sur des mesures de flux radiatifs est fréquemment réalisée avec des données expérimentales obtenues à température ambiante. Les travaux de Lee et al [10] réalisés en 2011 en sont un exemple.

La particularité des travaux présentés ici réside essentiellement dans la volonté de prendre en compte la dépendance en température des propriétés radiatives particulièrement pour des niveaux élevés de celle-ci ($T > 1700$ K). La méthode consiste à calculer ces propriétés radiatives via un modèle basé sur la connaissance des indices de réfraction. Ces indices sont obtenus à partir de techniques semblables à celles développées par De Sousa et al [11] qui consistent à reconstruire la fonction diélectrique des matériaux étudiés à partir de mesures spectrométriques d'émission radiatives à hautes températures. Ce sont donc les paramètres de la fonction diélectrique du matériau à haute température qui sont identifiés.

Cette communication a pour objet de décrire le principe de l'approche originale développée au CETHIL en insistant plus particulièrement sur la métrologie radiative. Les modèles de fonction diélectrique ainsi que la méthode Backward Monte Carlo ne sont pas décrits en détails ; pour plus d'information le lecteur pourra se reporter s'il le souhaite aux références [9,16]. Enfin les propriétés radiatives présentées ont uniquement pour vocation d'illustrer le type de résultats qui peuvent être obtenus sur des matériaux fibreux fortement hétérogènes.

La détermination des propriétés radiatives (coefficients d'absorption et de diffusion spectraux) est ainsi réalisée par une méthode qui s'appuie sur des mesures spectrales de flux radiatifs émis par le matériau porté à haute température, et un modèle de transfert radiatif en milieu absorbant et diffusant. Dans un premier temps l'approche adoptée est décrite succinctement, puis le dispositif expérimental de mesure d'émission haute température est présenté. L'étude est réalisée sur des échantillons de silice (SiO_2) isothermes pour éviter le couplage avec la conduction; leur température est mesurée par pyrométrie au point de Christiansen dont le principe est succinctement rappelé. Les propriétés radiatives spectrales obtenues pour trois niveaux de température sont présentées comme exemples de résultats pouvant être obtenus par cette méthode.

2. Méthode d'identification

2.1. Principe général

Les différentes étapes de l'approche adoptée pour la détermination des propriétés radiatives de matériaux fibreux ou poreux sont résumées sur la Figure 1.

Préalablement, la calibration de la totalité de la chaîne de mesure, de l'échantillon jusqu'au détecteur interne au FT-IR (cf. Figure 2) est réalisée à l'aide d'un corps noir PYROX PY 25. La fonction d'étalonnage spectrale obtenue s'avère être indépendante de la température sur la gamme de températures testées soit entre 1100 K et 1800 K (température maximum du corps noir). En revanche la dépendance spectrale de cette fonction d'étalonnage est due à la prise en compte des comportements spectraux des optiques, du détecteur, et de la

présence d'une atmosphère participante sur le trajet entre l'enceinte contenant l'échantillon et le spectromètre (cf. section 3).

La première étape du processus d'identification est dédiée à la mesure du spectre d'émission de l'échantillon pour une valeur de la puissance incidente du laser. Notons que seul un niveau de température est connu à ce stade de la mesure ; la température réelle lors de la caractérisation est déterminée simultanément par pyrométrie au point de Christiansen comme indiqué sur la Figure 1, à partir de la mesure de flux spectral. Le principe de cette pyrométrie est rappelé en 2.2.

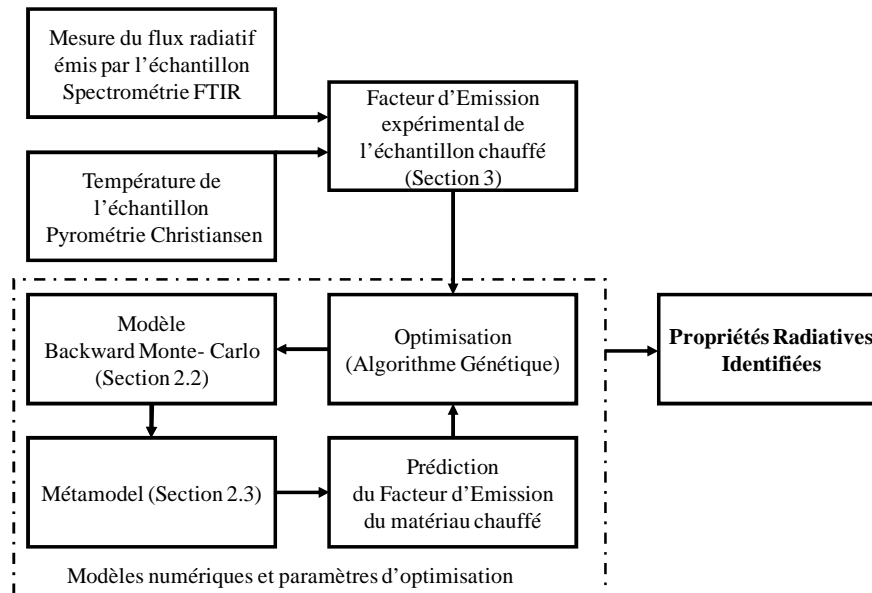


Figure 1 : Les étapes de la méthode d'identification des propriétés radiatives

L'étape suivante est consacrée à la prédiction du facteur d'émission par une méthode Backward Monte Carlo (BMC). Le processus de minimisation pour l'obtention des propriétés radiatives s'applique aux facteurs d'émission mesurés et prédits. Un algorithme génétique est utilisé pour l'optimisation.

2.2. Mesure de température par pyrométrie Christiansen

La température de l'échantillon isotherme est déterminée par pyrométrie au point de Christiansen dont le principe est brièvement rappelé ici. Pour plus de détails le lecteur pourra se reporter aux travaux suivants [12-13]. Les diélectriques hétéropolaires possèdent une fréquence (i.e. une longueur d'onde λ_{Ch}) à laquelle ils se comportent comme un corps noir. Ils sont donc porteurs de leur propre étalon de rayonnement. La mesure du flux spectral émis à cette longueur d'onde représenté par la luminance spectrale $L_{\lambda_{Ch}}$ dans l'équation (1), permet de déterminer la température à partir de la loi de Planck qui décrit la distribution spectrale de la luminance du corps noir étalon. L'expression de la température est alors :

$$T = \frac{hc}{k \lambda_{Ch} \text{Ln} \left[\frac{2hc^2}{\lambda_{Ch}^5 L_{\lambda_{Ch}}} + 1 \right]} \quad (1)$$

La vitesse c de propagation dans l'air, milieu présent entre le port de sortie de l'enceinte et le détecteur, est prise égale à la célérité dans le vide ($c = 2.998 \cdot 10^8 \text{ m.s}^{-1}$). h est la constante de Planck ($h = 6.626 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$) et k la constante de Boltzmann ($k = 1.3806 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$).

La connaissance de la température de l'échantillon isotherme permet de calculer un facteur d'émission expérimental $F_{\lambda}(T)$ basé sur la définition de l'émissivité pour des matériaux opaques, soit :

$$F_{\lambda}(T) = \frac{L_{\lambda}(T)}{L_{\lambda, \text{corps noir}}(T)} \quad (2)$$

Notons que le facteur d'émission est une grandeur extensive, d'où la nécessité d'effectuer des mesures sur un échantillon isotherme pour un milieu semi-transparent. Un modèle pour la prédiction du facteur d'émission a été développé basé sur une méthode de type Backward Monte Carlo (Méthode BMC) associé à un modèle de Mie s'avérant ici particulièrement pertinent pour traiter le comportement des fibres représentées par des cylindres. Ces méthodes permettent de ne considérer que les quanta qui atteignent effectivement le point de mesure (ici le détecteur). Le lecteur pourra s'il le souhaite trouver dans les références ci-après des informations plus détaillées [14-15]. L'ensemble de la méthode d'identification a été développée au cours de la thèse de S. Le Foll [16], et reste actuellement un sujet de recherche au CETHI. Initialement pour la validation du code direct Le Foll a établi une comparaison de sa méthode avec celle proposée par Dombrovsky et al [17] pour un milieu gris (feutre de carbone) pour le calcul du facteur d'émission hémisphérique spectral.

3. Banc de mesure d'émission haute température

Le banc expérimental développé au CETHIL permet de mesurer l'émission radiative provenant d'un échantillon porté à haute température dans une gamme spectrale s'étendant de $\sigma=5000 \text{ cm}^{-1}$ à $\sigma=666 \text{ cm}^{-1}$ (soit $\lambda=2 \text{ }\mu\text{m}$ à $\lambda=15 \text{ }\mu\text{m}$). Un schéma du dispositif est présenté Figure 2.

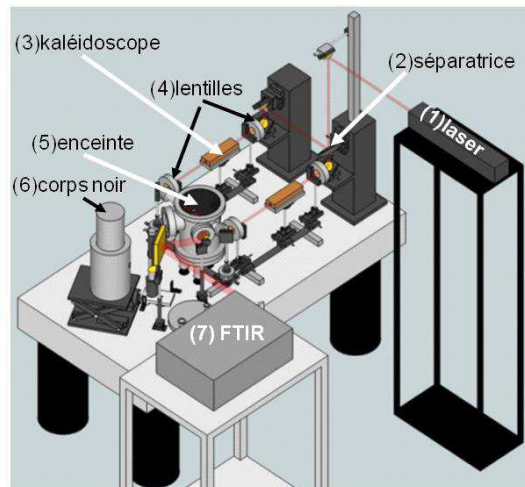


Figure 2 : Schéma du banc de mesure spectrométrique d'émission

Le banc est composé de deux parties en amont et en aval de l'enceinte à vide contenant l'échantillon : le système de chauffage radiatif dont la source est un laser CO_2 , et le dispositif de mesure du flux radiatif émis dont le cœur est un spectromètre FT-IR.

3.1. Système de chauffage et échantillon

Les matériaux se présentent sous la forme d'échantillons de section carrée de $10 \times 10 \text{ mm}^2$ dont l'épaisseur varie entre 1 et 3 mm. Ils sont chauffés par le faisceau d'un laser CO_2 (1) COHERENT K-300 (puissance maximum 300 W) de longueur d'onde centrée sur $10,8 \mu\text{m}$. Ce

faisceau initial de diamètre 8 mm en sortie de cavité, est séparé en deux faisceaux identiques grâce à une lame séparatrice 50/50 (2) ; chacun traverse un système optique de conditionnement avant d'atteindre l'échantillon. Les dispositifs optiques, constitués de kaléidoscopes (3) à sections carrées associés à des lentilles convergentes en ZnSe (4) en amont et en aval des kaléidoscopes, ont pour rôle d'homogénéiser la distribution énergétique du faisceau laser, initialement de forme gaussienne, par un principe de segmentation recombinaison. Le porte échantillon en mullite est fixé à l'intérieur d'une enceinte cylindrique (5) dans laquelle un vide primaire est réalisé, suffisant pour éviter l'oxydation des céramiques et éliminer le transfert convectif. Il est également possible d'effectuer un balayage de l'enceinte par un gaz neutre d'un point de vue radiatif. L'enceinte comporte quatre hublots : deux en ZnSe, ports d'entrée des faisceaux laser qui viennent irradier l'échantillon, un large hublot en CaF₂ port de sortie qui limite la mesure optique à la gamme 1µm-10µm pour éviter toute réflexion laser parasite vers le spectromètre, enfin un hublot en pyrex permet un contrôle visuel de l'échantillon. Un pyromètre monochromatique (1µm) LAND visant l'échantillon au travers de ce même hublot a pour fonction de contrôler la stabilité de la température puisque les mesures d'émission sont réalisées en régime permanent. La mesure de température n'est pas effectuée par ce pyromètre puisque l'émissivité spectrale du matériau n'est pas connue à priori, la détermination du facteur d'émission étant justement l'objectif de la mesure spectrométrique qui est brièvement décrite ci-après.

3.2. Spectrométrie d'émission FT-IR

Les mesures de flux radiatif émis par l'échantillon sont réalisées à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier (FT-IR) BRUKER 66V/S. Cet appareil équipé d'un détecteur DTGS permettant une mesure dans la plage 1000 cm⁻¹ à 7500 cm⁻¹ (soit 10 µm à 1,3 µm) est placé en aval d'un dispositif optique composé de 2 miroirs paraboliques hors axes et d'un miroir plan. Le rayonnement provenant soit de l'échantillon, soit d'un corps noir (6) haute température (T_{max}=1650°C) pour l'étalonnage, est acheminé via ce montage optique vers le port d'entrée du spectromètre (7). La fonction spectrale d'étalonnage est indépendante de la température sur la plage spectrale d'étude. Cette fonction prend en compte la réflectivité des miroirs, la transmittance des hublots et l'absorption du signal par les espèces gazeuses présentes dans l'atmosphère sur le trajet séparant la cible du détecteur. Le miroir plan rotatif, présent dans ce dispositif optique, permet la sélection de la cible de mesure (échantillon ou corps noir).

4. Résultats et discussion

La méthode d'identification présentée ici a été développée et mise en œuvre dans le cadre de la thèse CIFRE de S. Le Foll [16]. Ce travail de recherche était consacré à l'étude du transfert couplé conduction-rayonnement au travers d'un feutre de carbone utilisé par AIRBUS dans la composition de barrières thermiques ablatives, pour la réentrée atmosphérique de véhicules spatiaux. Ces résultats étant classés confidentiels et ne pouvant donc être présentés ici, la même méthode a été testée par S. Le Foll sur un matériau également hétérogène, constitué de fibres de silice (SiO₂) et fourni par le CREE-St Gobain.

4.1. Matériau étudié et conditions de caractérisation

Le caractère hétérogène du matériau étudié, et l'orientation aléatoire des fibres de Silice dont le diamètre varie de 9 à 14 µm est illustré par l'image MEB de la Figure 3

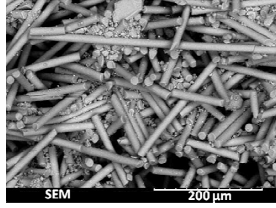


Figure 3 : Image MEB d'une céramique SiO₂. SilPower data book CREE-Saint Gobain

Les résultats présentés ici sont relatifs à un échantillon de fraction volumique 0,25 et de densité 0,55 g.cm⁻³. Le flux radiatif spectrale émis par l'échantillon carré de surfaces latérales 1 cm² et d'épaisseur 1,5 mm a été mesuré sur le banc d'émission haute température du CETHIL (Figure 2) pour trois puissances laser. Les valeurs de puissance laser initiale en sortie de cavité, ainsi que les températures d'échantillon correspondantes déterminées par pyrométrie au point de Christiansen sont indiquées dans le Tableau 1. Rappelons que l'échantillon est isotherme.

P_{laser}	$T_{Christiansen}$
W.cm ⁻²	K
15	1248
20	1585
25	1722

Tableau 1 : Puissance du laser CO₂ et température de l'échantillon

Les mesures de flux sont réalisées en régime permanent lorsque la température indiquée par le pyromètre LAND est stabilisée.

4.2. Mesures et propriétés identifiées

Un exemple des luminances mesurées et prédites est présenté Figure 4 pour les trois valeurs de puissance laser indiquées dans le Tableau 1.

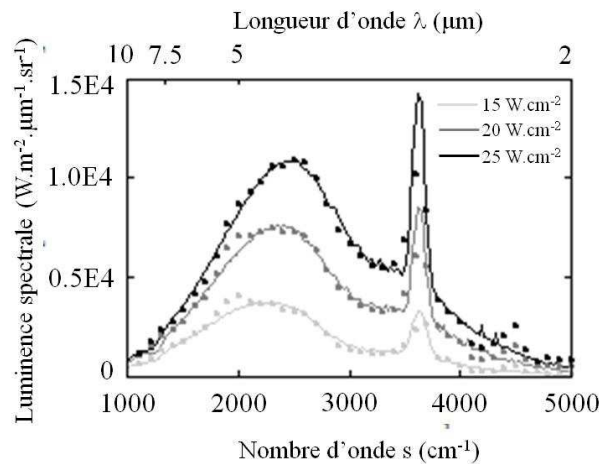


Figure 4 : Luminance spectrale mesurée (symboles) et prédite (ligne)

La longueur d'onde de Christiansen pour la Silice est de 7,3 μm. Nous ne présentons pas ici le facteur d'émission spectrale mais il est égale à 1 à cette longueur d'onde. A partir des mesures de luminance et en suivant le procédé d'identification décrit précédemment section 2.1, les propriétés spectrales macroscopiques peuvent être identifiées. Il est à noter que

seulement 5 paramètres de la fonction diélectrique qui en comporte 17 sont identifiés. La fonction diélectrique est donc préalablement dégradée pour réduire le nombre de paramètres à identifier ce qui explique que le modèle ne rend pas compte du petit pic d'émission observé expérimentalement proche de 4500 cm^{-1} . Une étude de sensibilité de la luminance spectrale L_σ , aux différents paramètres de la fonction diélectrique, permet de réduire le nombre de paramètres à identifier.

Ce sont les coefficients d'absorption $\kappa_{\text{abs}}(\sigma)$ et de diffusion $\kappa_{\text{diff}}(\sigma)$ spectraux figurant dans l'équation de transfert radiatif (ETR) qui sont présentés Figure 5 comme exemples de résultats pouvant être obtenus par cette méthode d'identification.

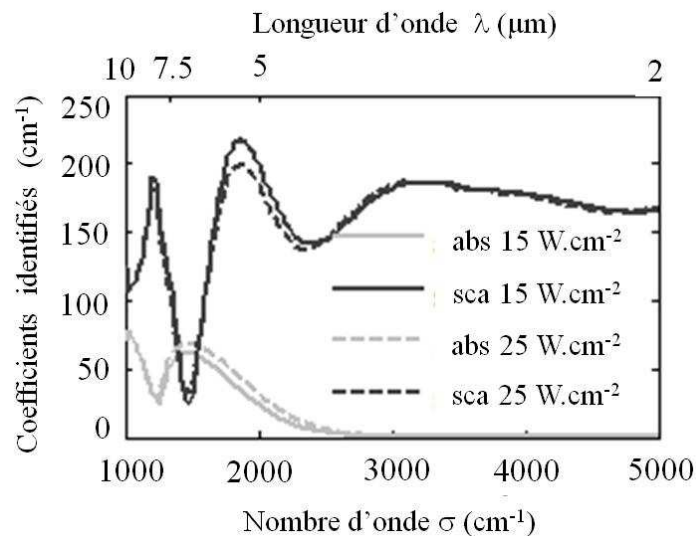


Figure 5 : Propriétés radiatives identifiées (coefficients d'absorption et de diffusion spectraux) à partir des mesures d'émission présentées Figure 4.

5. Conclusions et perspectives

Une méthode permettant de déterminer les propriétés radiatives macroscopiques de matériaux hétérogènes a été développée et mise en œuvre principalement sur des matériaux fibreux. Une des particularités de cette méthode réside dans la capacité à permettre la détermination des propriétés radiatives à des températures autres que l'ambiante, et plus particulièrement à des températures supérieures à 1500 K.

Les résultats présentés ici ont été obtenus sur des échantillons isothermes dont la température est déterminée à partir d'une pyrométrie au point de Christiansen. Des travaux en cours ont pour objectif de traiter des configurations anisothermes avec de forts gradients thermiques internes aux matériaux. L'approche présentée ici est associée à l'étude du couplage des transferts couplé conduction-rayonnement dans des matériaux hétérogènes pour déterminer la part du transfert radiatif dans le transfert de chaleur global.

Références

- [1] A. Maricocchi, A. Bartz, D. Wortman, PVD TBC experience on GE aircraft engines, *J. of Th. Spray Technology*, Vol. 6, 2, (1997).
- [2] F.O. Soechting, Design perspective on thermal barrier coatings, *J. of Th. Spray Technology*, vol. 8, no. 4, (1999), pp. 505–511.
- [3] R.A. Miller, Thermal barrier coatings for aircraft engines: history and directions, *J. of Th. Spray Technology*, Vol. 6, 1(1997).

- [4] X.Q. Cao, R. Vassen, D. Stoeber, Ceramic materials for thermal barrier coatings, *J. of the European Ceramic Society*, 24, (2004), pp. 1-10.
- [5] G. Pulci, J. Tirillò, F. Marra, F. Fossati, C. Bartuli and T. Valente, Carbon–phenolic ablative materials for re-entry space vehicles: Manufacturing and properties *Composites: Part. A* **41** 1483–90, (2010).
- [6] P. Sadooghi, Transient heat transfer in a spherical protective material submitted to flux and mixed boundary conditions : an investigation on zirconia, *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Vol. 93, (2005), pp. 461-472.
- [7] I. O. Golosnoy, A. Cipitria, T. W. Clyne, Heat Transfer Through Plasma-Sprayed Thermal Barrier Coatings in Gas Turbines: A Review of Recent Work, *J. of Thermal Spray Technology* (2009), Vol.18, 5, pp 809–821.
- [8] A. Delmas, L. Robin-Carillon, and F. Oelhoffen, Experimental and Theoretical Characterization of Emission from Ceramics at High Temperature : Investigation on Yttria-Stabilized Zirconia and Alumina, *Int. J. Thermophys.*, vol. 31, (2010), pp. 1092–1110.
- [9] S. Le Foll, F. André, A. Delmas, J. M. Bouilly, and Y. Aspa, Radiative transfer modelling inside thermal protection system using hybrid homogenization method for a backward Monte Carlo method coupled with Mie theory, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 369, (2012), 012028.
- [10] G. W. Lee, S. Jeon, N. J. Yoo, C. W. Park, S.-N. Park, S. Y. Kwon, and S.-H. Lee, Normal and Directional Spectral Emittance Measurement of Semi-Transparent Materials Using Two-Substrate Method: Alumina, *Int. J. Thermophys.*, vol. 32, no. 6, (2011), pp. 1234–1246.
- [11] D. De Sousa Meneses, M. Eckes, L. del Campo, C. N. Santos, Y. Vaills, and P. Echegut, Investigation of medium range order in silicate glasses by infrared spectroscopy, *Vib. Spectrosc.*, vol. 65, (2013), pp. 50–5.
- [12] B. Rousseau, J. F. Brun, D. De Sousa Meneses, P. Echegut, Temperature Measurement: Christiansen Wavelength and Blackbody Reference, *I. J. of Thermophysics* , Vol. 26, Issue 4, (2005), pp. 1277-1286.
- [13] L. Robin, A. Delmas, T. Lanternier, Surface temperature measurement of semitransparent ceramics at high temperature . Comparison between pyrometry at the Christiansen frequency and infrared thermography, *QIRT Journal*, Vol. 4/2, (2007), pp. 165-186.
- [14] J. R. Howell, “Application of Monte Carlo to heat transfer problems,” *Adv Heat Transf.*, vol. 5, (1968), pp. 1–54,.
- [15] F. Modest, *Radiative Heat Transfer*, 3rd ed. Academic Press, (2013)
- [16] S. LeFoll, Modélisation du couplage Conduction-Rayonnement dans les systèmes de protection thermique soumis à de très hauts niveaux de température, Thèse de l’INSA-Lyon, (2014).
- [17] L. A. Dombrovsky, J. H. Randrianalisoa, W. Lipiński, & D. Baillis, Approximate analytical solution to normal emittance of semi-transparent layer of an absorbing, scattering, and refracting medium. *J. Quant Spectrsc Radiat Transfer*, 112(12), 1987-1994, (2011).

Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier AIRBUS pour sa contribution au financement de la thèse CIFRE de S. Le Foll ainsi que le CREE-Saint Gobain pour la fourniture des échantillons de céramique qui ont permis de tester la méthode d’identification.