

Calcul des propriétés radiatives d'un matériau projeté plasma.

Lucile ROBIN^{1*}, Agnès DELMAS^{2*}, Frédéric OELHOFFEN¹

¹CEA CESTA

BP2 – 33114 Le Barp

²CETHIL UMR5008, Bât. Sadi Carnot

20 avenue Albert Einstein 69621 Villeurbanne CEDEX

* (auteur correspondant : lucile.robin@cea.fr)

Résumé - L'étude présentée s'inscrit dans le cadre de la modélisation des transferts thermiques couplés rayonnement – conduction dans des matériaux céramiques élaborés par projection plasma. L'approche choisie pour la modélisation est de type énergétique ; elle fait intervenir l'équation du transfert radiatif (ETR) et l'équation de la chaleur. Préalablement à la résolution de l'ETR, il s'avère essentiel de calculer les propriétés radiatives de ces matériaux. La difficulté du calcul réside dans la complexité de la microstructure des matériaux projetés plasma et notamment dans le caractère absorbant de la matrice poreuse qui les constitue. Nous présentons ici, la démarche de calcul des propriétés radiatives de particules contenues dans une matrice absorbante, basée sur une approche électromagnétique en champ proche. Cette technique bien qu'exclusivement appliquée à des particules sphériques dans cette étude préliminaire, présente l'avantage de pouvoir être étendue à des particules non sphériques ce qui correspond à la forme des porosités dans les matériaux projetés plasma.

L'influence de la matrice absorbante, sur les propriétés radiatives et sur la luminance émise, est étudiée pour deux types de matériaux – alumine et zircone stabilisée – et pour différentes tailles de particules représentatives des microstructures de matériaux projetés plasma.

Nomenclature

E	vecteur champ électrique, $V.m^{-1}$	W	flux, $W.m^{-2}$
H	vecteur champ magnétique, T	<i>Symboles grecs</i>	
k	partie imaginaire de l'indice de réfraction	κ	coefficient d'absorption volumique, m^{-1}
k	vecteur unité	λ	longueur d'onde, μm
n	partie réelle de l'indice de réfraction	ν	fréquence, Hz
p	fonction de phase	σ	coefficient de diffusion, m^{-1}
Q	facteur d'efficacité	<i>Indices et exposants</i>	
r	rayon, m	dif	diffusé
S	surface, m^2	inc	incident
x	paramètre de taille de Mie	*	complexe conjugué

1. Introduction

Les revêtements céramiques ayant fonction de barrière thermique (TBC) sont le plus souvent soumis à des températures extrêmement élevées. C'est le cas par exemple des protections thermiques de composants de turbine à gaz ou encore des revêtements de navettes spatiales. La modélisation des transferts thermiques dans les matériaux s'avère alors essentielle pour s'assurer de la compatibilité des matériaux aux températures élevées.

Le travail présenté s'inscrit dans le cadre de la modélisation des transferts thermiques couplés rayonnement – conduction dans des matériaux céramiques élaborés par projection plasma. L'approche utilisée est dite énergétique ; elle fait intervenir l'équation de la chaleur couplée à l'équation du transfert radiatif. La difficulté principale de la modélisation réside dans l'obtention des données d'entrée du modèle de calcul des transferts thermiques et plus

particulièrement dans l'obtention des propriétés radiatives des matériaux en raison de leur microstructure complexe. En effet, le procédé de projection plasma confère aux matériaux une structure lamellaire faite de pores elliptiques remplis d'air noyés dans une matrice de céramique considérée comme homogène d'un point de vue des propriétés radiatives. Pour la modélisation, les conséquences sont multiples. Le calcul des propriétés radiatives doit se faire par une technique capable de tenir compte de la géométrie non sphérique des pores et du caractère absorbant de la matrice. De plus, il s'agit de modéliser les transferts thermiques dans des matériaux à diffusion anisotrope. Dans le travail présenté, nous nous intéresserons exclusivement au calcul des propriétés radiatives de particules sphériques contenues dans une matrice absorbante.

Plusieurs travaux ont été consacrés au calcul des propriétés radiatives de particules sphériques contenues dans une matrice absorbante. Les premières études font appel à l'approximation des champs lointains. Dans les travaux de Mundy *et al.* [1], le coefficient d'extinction est défini en calculant le flux net traversant une large sphère d'intégration concentrique à la particule incluse dans le milieu absorbant. En raison de l'absorption de la matrice, les propriétés radiatives calculées par cette approche sont dépendantes du rayon de la sphère d'intégration, alors que d'un point de vue physique, elles ne peuvent dépendre que des caractéristiques de la particule et du milieu absorbant environnant. Pour remédier à ce problème, les études récentes sont réalisées en champ proche [2-4]. Lebedev *et al.* [3] et Fu et Sun [4] calculent les propriétés radiatives en évaluant le flux net traversant la particule dont l'enveloppe constitue la surface d'intégration. Dans leur article Fu et Sun, montrent que les propriétés radiatives dépendent du coefficient d'absorption de la matrice et du paramètre de taille de Mie $x = 2\pi r/\lambda$. Cependant ces travaux sont tous spécifiques aux particules sphériques contenues dans une matrice absorbante. Notre démarche se distingue des travaux relatifs au formalisme de Mie puisque les propriétés sont calculées à partir de la résolution des équations de l'électromagnétisme et la méthode pourra être utilisée par la suite pour des particules non sphériques.

Dans une première partie, nous introduirons le problème et nous décrirons la microstructure des matériaux. La méthode de calcul des propriétés radiatives sera ensuite détaillée. Enfin, l'impact de l'absorption de la matrice, sur les propriétés radiatives puis sur la luminance émise par le matériau sera étudié pour deux matériaux – alumine et zircone stabilisée – et pour plusieurs tailles de particules.

2. Présentation du problème et spécificité des matériaux étudiés

2.1. Présentation du problème

Les transferts thermiques dans les matériaux céramiques sont modélisés par un code de calcul 1D de transferts thermiques couplés rayonnement – conduction en milieux semi-transparents [5]. La méthode de résolution numérique de l'équation du transfert radiatif (ETR) est basée sur une méthode itérative de type méthode des ordonnées discrètes simple et les calculs sont réalisés dans l'hypothèse de symétrie azimutale pour le champ de luminance. Le couplage entre l'équation de la chaleur et l'ETR est résolu par une méthode itérative. Le critère de convergence de la méthode porte conjointement sur les champs de luminances et de températures. Les données d'entrée de la modélisation sont les propriétés optiques (partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction), thermophysiques (conductivité thermique), radiatives (coefficient d'absorption, coefficient de diffusion et fonction de phase) du matériau et le flux incident sur une lame de ce matériau.

Comme précisé précédemment c'est la microstructure complexe des matériaux projetés plasma que nous étudions, qui a guidé le choix de la démarche de calcul des propriétés radiatives. Les caractéristiques structurales de ces matériaux sont détaillées dans le paragraphe suivant.

2.2. Description de la microstructure des matériaux étudiés

La projection plasma est une technique de dépôt qui permet de projeter sur un substrat des gouttelettes de poudre, fondues superficiellement, à l'aide d'une source à haute température constituée par un plasma thermique produit par un arc électrique. La microstructure d'un dépôt plasma se caractérise par un empilement microfissuré de lamelles écrasées. Les pores d'air observés ont des tailles comprises entre quelques micromètres et quelques dizaines de micromètres. Ils ont en majorité une forme allongée et sont orientés principalement dans la direction perpendiculaire à la direction de projection.

Ces caractéristiques de microstructure sont communes à tous les matériaux projetés plasma. En revanche, la taille et la répartition volumique des pores est fonction des paramètres du processus de projection plasma. Dans cette étude, nous présentons des résultats généraux pour des paramètres de taille de particules représentatifs de matériaux projetés plasma.

3. Présentation de la méthode de calcul des propriétés radiatives basée sur l'électromagnétisme

Dans cette étude, nous considérons que ce sont les pores remplis d'air contenus dans la matrice de céramique qui constituent les particules diffusantes. La diffusion du rayonnement par les joints de grain est négligée en raison du plus faible contraste optique au niveau d'un joint par rapport au contraste optique à l'interface pore/céramique. Le coefficient d'absorption volumique du matériau (matrice + pores) est donc calculé exclusivement à partir de la partie imaginaire de l'indice de réfraction de la céramique selon la formule :

$$\kappa = \frac{4\pi k \nu}{c_0} \quad (1)$$

Où c_0 représente la vitesse de la lumière dans le vide ($c_0 = 2,98.10^8 \text{ m.s}^{-1}$)

Le coefficient de diffusion et la fonction de phase sont déterminés à partir de la valeur des champs électromagnétiques. Un code d'électromagnétisme 3D développé au CEA permet d'obtenir les champs électromagnétiques résultant de l'interaction entre une onde plane monofréquentielle harmonique et un objet [6]. Le code est basé sur une formulation en équations intégrales surfaciques des équations de Maxwell. Les hypothèses restrictives sont l'utilisation de matériaux homogènes isotropes bornés entourés d'un milieu infini homogène.

Connaissant la valeur des champs électromagnétiques en tout point de l'espace, il est possible de calculer le facteur d'efficacité de diffusion de la particule. Il est donné par le rapport entre le flux diffusé W_{dif} par la particule et le flux incident sur la particule W_{inc} [7].

$$Q_{dif} = \frac{W_{dif}}{W_{inc}} \quad (2)$$

Le flux diffusé à travers la surface de la particule est calculé en intégrant le vecteur de Poynting relatif au flux diffusé sur cette surface.

$$W_{dif} = \frac{1}{2} \int_{S_{part}} \Re\{(\vec{E}_{dif} \wedge \vec{H}_{dif}^*)\} \cdot \vec{n} dS \quad (3)$$

Où S_{part} est la surface de la particule et \vec{n} représente le vecteur unitaire normal à chaque surface élémentaire dS .

Le flux incident est calculé en intégrant le vecteur de Poynting du flux incident sur la demi-surface supérieure de la particule.

$$W_{inc} = \frac{1}{2} \int_{\frac{1}{2}S_{part}} \Re\{(\vec{E}_{inc} \wedge \vec{H}_{inc}^*)\} \cdot \vec{n} dS \quad (4)$$

La fonction de phase fonction de l'angle d'incidence sur la particule (θ_{inc}) et de l'angle de diffusion (θ_{dif}) est calculée en champ lointain [7]. Son expression est la suivante :

$$f(\theta_{inc}, \theta_{dif}) = \frac{\frac{1}{2} \Re\{(\vec{E}_{dif} \wedge \vec{H}_{dif}^*)\} \cdot \vec{n}}{W_{dif}} \quad (5)$$

La validation du calcul des propriétés radiatives a consisté, dans un premier temps, à comparer les propriétés calculées en champ proche pour une matrice non absorbante avec celles obtenues avec la théorie de Mie. Dans un second temps, les propriétés radiatives obtenues en champ proche en présence d'une matrice absorbante ont été comparées avec celles présentées dans [4]. Un bon accord a été constaté entre les résultats du code et ceux de la littérature.

4. Influence de l'absorption de la matrice sur le calcul des propriétés radiatives puis de la luminance émise

L'influence de l'absorption de la matrice est étudiée, dans une première étape, au niveau des propriétés radiatives, puis sur la luminance émise évaluée à partir de ces propriétés radiatives. Deux matériaux classiquement utilisés comme protection thermique sont étudiés ici. Il s'agit de la zircone stabilisée et de l'alumine.

4.1. Influence de la matrice absorbante sur le calcul des propriétés radiatives

Les précédentes études [4] ont montré que l'effet de l'absorption de la matrice est d'autant plus important que l'indice imaginaire de réfraction k , qui dépend de la longueur d'onde et le paramètre de Mie x sont grands.

4.1.1. Zircone stabilisée

Les indices de réfraction utilisés pour la modélisation sont ceux de Synowicki et Tiwald [8], ils correspondent à des propriétés à température ambiante car aucune donnée en température n'est présentée dans la littérature. Les propriétés radiatives sont calculées pour deux particules sphériques de rayon respectif 5 et 10 μm . Sur les figures 1 et 2 est présentée le facteur d'efficacité de diffusion calculé selon la démarche présentée en 3. Est représenté également sur les figures le facteur d'efficacité de diffusion calculé sans prise en compte des pertes dues à l'absorption de la matrice.

L'absorption de la matrice a un impact sur les propriétés de la particule d'autant plus grand que le paramètre de Mie est grand (soit pour une taille de particule donnée, plus la longueur d'onde est faible) ; or pour la Zircone, c'est aux grandes longueurs d'onde que l'absorption est importante. Ainsi comme ces tendances sont inversées, il existe une longueur d'onde pour laquelle l'écart entre les propriétés de la zircone calculées avec et sans absorption est maximal (de 25 % à 11,2 μm pour une sphère de rayon 10 μm), cf. figures 1 et 2.

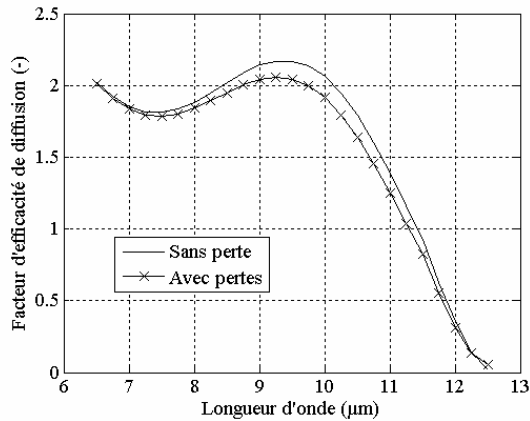


Figure 1 : Facteur d'efficacité de diffusion pour des particules d'air ($r = 5 \mu\text{m}$)

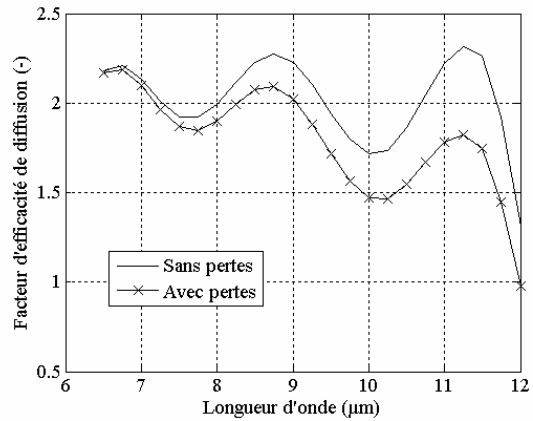


Figure 2 : Facteur d'efficacité de diffusion pour des particules d'air ($r = 10 \mu\text{m}$)

Pour la zircone, la prise en compte du caractère absorbant de la matrice sur le calcul des propriétés radiatives semble nécessaire pour le domaine de longueur d'onde [6 - 12,5 μm] dès lors que la taille des particules dépasse 5 μm .

4.1.2. Alumine

Les indices de réfraction utilisés pour la modélisation sont ceux de Brun [9], ils correspondent à des propriétés à 2007 K.

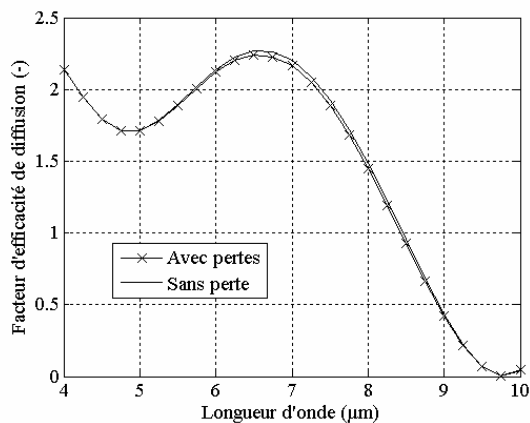


Figure 3 : Facteur d'efficacité de diffusion pour des particules d'air ($r = 5 \mu\text{m}$)

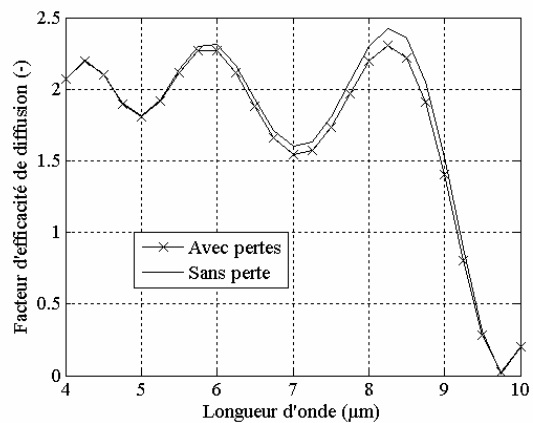


Figure 4 : Facteur d'efficacité de diffusion pour des particules d'air ($r = 10 \mu\text{m}$)

Les figures permettent de conclure que, dans le cas de l'alumine, la prise en compte des pertes est beaucoup moins critique que pour la zircone. Ceci est dû à la valeur de la partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'alumine qui est inférieure à celle de la zircone.

4.2. Influence de la matrice absorbante sur le calcul de luminance émise

La luminance émise par un échantillon de zircone à 1500 K est calculée avec le code de calcul des transferts thermiques décrit dans 2.1 ; le facteur d'émission défini par le rapport de la luminance émise sur la luminance donnée par la loi de Planck à la température du matériau est représenté sur la figure 5. Les paramètres de calcul sont récapitulés dans le tableau 1.

Table 1 : Paramètres de calcul de la luminance émise par une lame de zircone

Matrice	Particule	Taux de charge	Température	Épaisseur	Type d'interface
ZrO ₂	Air ($r = 10 \mu\text{m}$)	10 %	1500 K	500 μm	Réflexion spéculaire

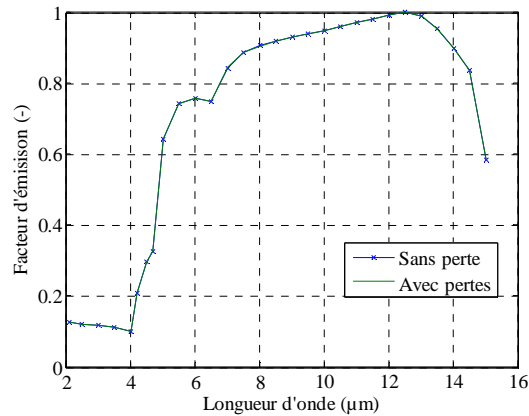


Figure 5 : Facteur d'émission d'une lame de zirconium calculé avec et sans tenir compte des pertes

La figure 5 permet de conclure que les courbes représentant le facteur d'émission sont très similaires dans les deux cas (avec ou sans prise en compte des pertes).

5. Conclusion

Une méthode de calcul des propriétés radiatives de particules contenues dans une matrice absorbante a été présentée. Les facteurs d'efficacité de diffusion ont été calculés pour deux matériaux. La comparaison entre les propriétés calculées avec et sans tenir compte des pertes permet de conclure qu'elles ont une influence non négligeable sur la valeur du coefficient de diffusion dans le cas de la zirconium. En revanche, elles n'influencent que très peu la valeur de la luminance émise par une lame de zirconium. Aussi pourrions nous, dans cette configuration, négliger les pertes lors du calcul des propriétés radiatives.

L'influence de la matrice ayant été étudiée, le travail se poursuit par l'étude de l'impact de la structure lamellaire du matériau sur la luminance émise en modélisant la diffusion par des pores de formes non sphériques (ellipsoïdes à géométrie variable).

Références

- [1] W.C. Mundy, J. A. Roux, A.M. Smith, Mie scattering by sphere in an absorbing medium, *Journal of the Optical Society of America*, vol 64, 12 (1974), 1593-1597.
- [2] I. Wayan Sudiarta, P. Chylek, Mie formalism for spherical particles embedded in an absorbing medium, *Journal of the Optical Society of America*, vol 18, 6 (2001), 1275-1278.
- [3] A.N. Lebedev, M. Gartz, U. Kreibig and O. Stenzel, Optical extinction by spherical particles in an absorbing medium: Application to composite absorbing films, *The European Physical Journal D*, 6 (1999), 365-373.
- [4] Q. Fu, W. Sun, Mie theory for light scattering by a spherical particle in an absorbing medium, *Applied Optics*, vol 40, 9 (2001), 1354-1361.
- [5] L. Robin, A. Delmas, F. Oelhoffen, T. Lanternier, V. Ducamp, Experimental and theoretical determination of spectral heat flux emitted by a ceramic under axial temperature gradient, *Proc. International Heat Transfer Conference* (Sydney Australie, 13-18 août 2006).
- [6] J.P. Heliot, Prise en compte des problèmes d'antennes dans un code d'équations intégrales, *Thèse de doctorat de l'université de Bordeaux* (1996).
- [7] C.F. Bohren, D.R. Huffman, Absorption and scattering of light by small particles, *John Wiley and Son*, 1983.
- [8] R.A. Synowicki et T.E. Tiwald, Optical properties of bulk c-ZrO₂, c-MgO and a-As₂S₃ determined by variable angle spectroscopic ellipsometry, *Thin Solid Films*, 455-456, (2004), 248-255.
- [9] J-F. Brun, Mesure et analyse de l'émittance spectrale d'oxydes diélectriques à haute température. Une approche des phénomènes préfusionnels, *Thèse de doctorat de l'université d'Orléans* (2003).