

Conductivité thermique homogénéisée de structures poreuses élaborées par projection thermique

Rodolphe BOLOT*, Jiang-Hao QIAO, Ghislain MONTAVON, Christian CODDET

Laboratoire d'Etudes et de Recherches sur les Matériaux, les Procédés et les Surfaces
Université de Technologie de Belfort-Montbéliard, Site de Sévenans – 90010 Belfort Cedex

* (auteur correspondant : rodolphe.bolot@utbm.fr)

Résumé - Cette étude présente les applications d'un modèle numérique bidimensionnel destiné à l'estimation de la conductivité thermique apparente de dépôts élaborés par projection thermique. Ce modèle représente non pas une alternative mais un complément aux mesures expérimentales menées en parallèle. Il est basé sur une méthode par différences finies où l'image d'une coupe micrographique du dépôt sert de maillage. Après une description du modèle pour lequel plusieurs options ont été développées, différentes possibilités d'applications et exemples sont présentées.

1. Introduction

La projection thermique est une technique de mise en œuvre de dépôts protecteurs qui permet de conférer à un matériau des propriétés de surface dont il ne dispose pas à l'état brut. Ses applications industrielles sont multiples (usure, corrosion, tribologie, barrières thermiques). Suivant l'application, la gamme des matériaux projetés est très différente. Dans la lutte contre l'usure par exemple, on appliquera des matériaux durs et résistants tels que des carbures et des oxydes en cherchant à fabriquer des dépôts les plus denses possibles. Au contraire, dans d'autres cas, on peut être amené à vouloir favoriser l'usure contrôlée du matériau. C'est par exemple le cas des dépôts abrasables utilisés comme joints entre l'extrémité d'un aubage de compresseurs ou de turbines et leur stator. Dans ce cas, on utilisera soit des matériaux composites friables, soit des dépôts très poreux dont la résistance à l'usure sera de fait diminuée. Dans d'autres applications on cherchera à isoler électriquement le composant avec une couche projetée d'un diélectrique tel que l'alumine ou la cordiérite. Lorsque la pièce à protéger doit être amenée à travailler à haute température (chambres de combustion, etc.), on va refroidir le matériau tout en le protégeant au niveau de sa surface directement exposée en lui apposant une barrière thermique. On utilisera alors des matériaux réfractaires à faible conductivité thermique intrinsèque et on cherchera à favoriser la formation de résistances thermiques au sein de la structure *via* des pores longitudinaux orientés perpendiculairement au flux afin de conférer au dépôt une conductivité thermique apparente encore inférieure à celle intrinsèque du matériau.

Quel que soit le procédé, la projection thermique consiste à fondre un matériau initialement sous forme de poudres ou de fils au moyen d'une source enthalpique et à accélérer les gouttelettes fondues en direction de la surface à revêtir. Les dépôts ainsi formés sont constitués d'un enchevêtrement de lamelles. De plus, ils renferment des pores globulaires, des décohésions inter-lamellaires, des fissures intra-lamellaires (céramiques), des oxydes (métaux et alliages) ainsi que des particules partiellement infondues. Au final, l'architecture du réseau poreux influence très largement les propriétés apparentes des dépôts.

La connaissance des propriétés de ces dépôts est toujours nécessaire si l'on veut maîtriser leur comportement en service. Concernant l'aspect thermique, la technique de mesure classique utilisée pour estimer la conductivité thermique apparente des dépôts est la mesure de diffusivité par flash laser où un pulse d'énergie est imposé à une face de l'échantillon dont

on souhaite mesurer la conductivité. L'expression de Parker [1,2] permet alors de déduire la diffusivité thermique du matériau en fonction du temps auquel la face arrière atteint 50% de son augmentation maximale. Une fois la diffusivité connue, la conductivité est calculée en considérant la masse volumique du matériau et sa chaleur spécifique. Les incertitudes peuvent être importantes et des méthodes plus précises peuvent être utilisées en lieu et place de l'expression de Parker, comme le suggèrent Degiovanni *et al.* [3,4].

En complément de cette technique expérimentale, différents outils de modélisation sont aujourd'hui utilisés. Par exemple, le logiciel OOF (*Object Oriented Finite Element Analysis of Microstructures*) développé par NIST (*National Institute of Standard and Technology*, Gaithersburg, MA, USA) permet de simuler des sollicitations mécaniques et/ou thermiques sur des coupes micrographiques de matériaux. Ce logiciel disponible sous LINUX est interfacé vers Abaqus (SIMULIA, Providence, RI, USA). OOF seul requière cependant une capacité en mémoire vive très conséquente (à tel point que la notice du logiciel stipule à propos de cette capacité : le plus est le meilleur !). Consécutivement, pour des sollicitations de type thermique par exemple et en considérant un maillage basé sur une cellule par pixel, le nombre maximal de pixels est de 400000 en effectuant les calculs avec un PC équipé de 4 Go de RAM fonctionnant sous un système LINUX 32 bits (soit le maximum de RAM pris en compte). Sous LINUX 64 bits, la capacité requise de mémoire vive est encore beaucoup plus élevée.

La méthode des différences finies offre une alternative intéressante aux éléments finis notamment dans le cas de maillages simples (ce qui est le cas en considérant qu'une image constitue elle-même directement le maillage). Dorvaux *et al.* [5] ont été les premiers à utiliser ce type de méthode pour calculer des conductivités à partir de coupes micrographiques de dépôts. Suivant leur modèle, chaque pixel de l'image binaire est interprété comme une cellule d'intégration de l'équation de conduction de la chaleur en régime stationnaire. La conductivité thermique de chaque pixel est affectée directement par sa couleur et on dérive alors une équation linéaire par pixel traduisant la conservation des flux. En imposant un gradient thermique entre deux faces opposées de l'image, le calcul donne la valeur du flux de chaleur, dont on déduit une conductivité dite effective, apparente ou encore homogénéisée. Un modèle semblable a aussi été développé par Tan *et al.* [6].

En 2004, nous avons commencé le développement d'un code basé sur une approche similaire à celle de Dorvaux *et al.*, suivi par une version plus aboutie dès 2005 [7,8] en optimisant les méthodes numériques de résolution des systèmes d'équations pour tendre vers des temps de calcul raisonnables (quelques minutes). Au final, les procédures SOR (Successive Over Relaxation) et LSOR (Line Successive Over Relaxation) ont été retenues. En 2008, nous avons identifié le fait que OOF et notre code conduisaient à des résultats différents pour des calculs réalisés sur des dépôts abrasables [9]. L'explication [10,11] réside en ce que les logiciels d'éléments finis sont basés sur une méthode de discrétisation nodale où les températures sont calculées aux nœuds des pixels. Au contraire, les méthodes basées sur les différences finies considèrent des formulations mathématiques où les températures sont calculées aux centres des cellules. Lorsqu'il existe de fortes discontinuités d'un pixel à l'autre (c'est toujours le cas lorsque 2 pixels juxtaposés sont de valeurs différentes), les 2 formulations (nodale ou centrée) donnent alors des résultats dissemblables.

Au vu de cette situation, nous avons développé une version nodale de notre code permettant d'obtenir des résultats en bien meilleur accord avec OOF. Toutefois, aucun élément probant ne nous a permis de dire qu'une formulation nodale donnait des résultats plus pertinents. Néanmoins, en augmentant les résolutions d'images, les deux formulations semblent fournir des résultats convergents. Aussi, nous avons été amenés à développer une méthode de fractionnement des pixels (4 cellules, voire 16, par pixel) permettant de limiter les différences entre les 2 formulations.

2. Formulation mathématique

En régime stationnaire, l'équation de conduction de la chaleur au sein d'un milieu non isotrope s'écrit :

$$-\vec{\nabla} \cdot (\kappa \vec{\nabla} T) = -\frac{\partial}{\partial x} \left(\kappa \frac{\partial T}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(\kappa \frac{\partial T}{\partial y} \right) = 0 \quad (1)$$

La figure 1 présente une comparaison de la discrétisation pour des formulations centrée et nodale. Dans les 2 cas, on aboutit pour chaque pixel à une équation linéaire qui peut être mise sous la forme :

$$A_p(i, j)T(i, j) = A_x(i, j)T(i-1, j) + A_x(i+1, j)T(i+1, j) + A_y(i, j)T(i, j-1) + A_y(i, j+1)T(i, j+1) \quad (2)$$

Pour une formulation centrée, les coefficients peuvent être définis par :

$$A_x(i, j) = \frac{2}{\frac{1}{\kappa(i, j)} + \frac{1}{\kappa(i-1, j)}} ; A_y(i, j) = \frac{2}{\frac{1}{\kappa(i, j)} + \frac{1}{\kappa(i, j-1)}} \quad (3)$$

$$\text{Et : } A_p(i, j) = A_x(i, j) + A_x(i+1, j) + A_y(i, j) + A_y(i, j+1) \quad (4)$$

Pour une formulation nodale, il vient cette fois :

$$A_x(i, j) = \frac{\kappa(i, j) + \kappa(i, j+1)}{2} ; A_y(i, j) = \frac{\kappa(i, j) + \kappa(i+1, j)}{2} \quad (5)$$

Dans ces expressions des A_x et A_y , chaque relation doit être considérée avec les indices liés à sa propre figure. On voit que pour une formulation centrée, les résistances thermiques entre 2 pixels juxtaposés sont en série. Au contraire, pour une formulation nodale, 2 pixels juxtaposés sont en parallèle vis-à-vis des nœuds, d'où une moyenne simple de la conductivité de part et d'autre, plutôt qu'une moyenne harmonique.

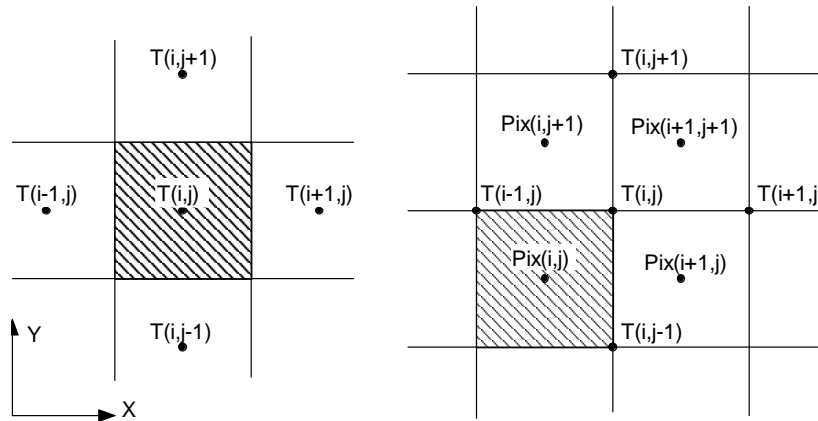


Figure 1 : Schémas de principe pour des discrétisations centrée et nodale.

3. Exemples d'applications

La figure 2 présente une image binaire (dimension 712x484 pixels et résolution 0,144 $\mu\text{m}/\text{pixel}$) d'une coupe micrographique d'un dépôt de zircone partiellement stabilisée à l'yttria ($\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$, 8% en masse) pour laquelle les résultats calculés avec une discrétisation centrée ont été publiés [7,8]. Le dépôt a été produit par projection plasma APS (air à pression atmosphérique) d'une poudre PLASMATEX 108S (Saint-Gobain, Avignon, France). Le taux de porosité calculé (protocole de Delesse) est ici 12,7%.

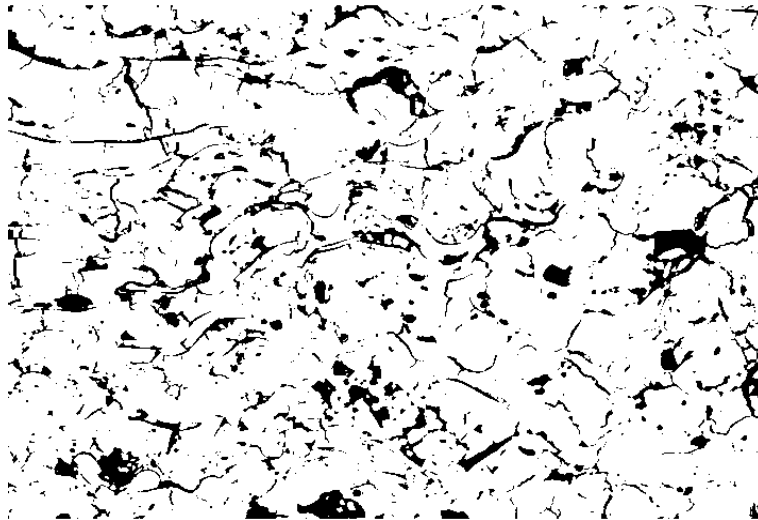


Figure 2 : Image binaire produite à partir d'une micrographie d'un dépôt de zircone [7].

Le tableau 1 présente les valeurs de conductivités apparentes calculées en fonction de la méthode de discrétisation et en utilisant une ou quatre cellules par pixel. Des valeurs de conductivités intrinsèques de $2,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour la zircone (pixels blancs) et de $0,025$ pour les pores (pixels noirs) ont été considérées. Pour le modèle à une cellule/pixel, la différence de conductivité calculée entre les versions centrée et nodale est d'environ 10% pour moins de 6% pour la formulation à quatre cellules/pixel.

Formulation	$\kappa (\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$ – direction y	
	Version centrée	Version nodale
1 cellule /pixel	1,18	1,31
4 cellules /pixel	1,21	1,28

Tableau 1 : Conductivités thermiques calculées pour l'image de la figure 2 en fonction des options de calcul (formulations centrée ou nodale / 1 cellule ou 4 par pixel).

La figure 3 présente une comparaison de deux images binaires (1024x768 pixels) correspondant à des dépôts d'alumine élaborés à l'aide de deux procédés différents [12]. La figure 3a correspond à un dépôt élaboré *via* le procédé conventionnel APS (matériau précurseur sous forme de poudre) et la figure 3b à un dépôt élaboré à l'aide du procédé flamme (procédé ROKIDE®, Saint-Gobain Coating Solutions, Avignon, France).

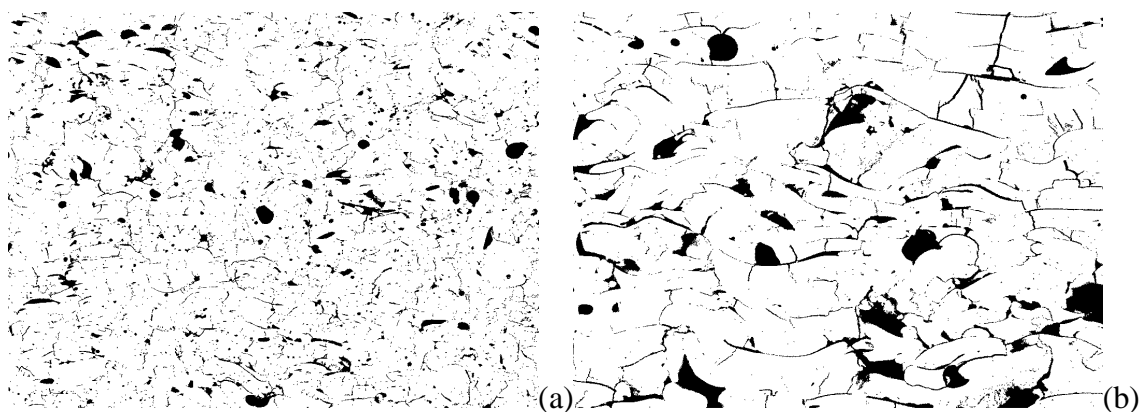


Figure 3 : Images binaires de dépôts d'alumine élaborés par (a) projection APS et (b) projection flamme.

La structure du dépôt APS est plus fine que celle du dépôt flamme car la dimension des particules de la poudre projetées en APS est inférieure à celle des gouttes atomisées par la flamme à l'extrémité de la baguette. De plus, les taux respectifs de porosité sont de 7,9% et 10,7% pour le dépôt APS et le dépôt flamme, respectivement.

Le tableau 2 présente les conductivités thermiques apparentes calculées pour chaque image en considérant des conductivités intrinsèques de $29 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (valeur à 20°C) pour la matrice d'alumine et de $0,025 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour les pores. Le procédé flamme conduit à des dépôts offrant des conductivités apparentes deux fois plus faibles que celles des dépôts APS.

Formulation	Image (a)		Image (b)	
	centrée	nodale	centrée	nodale
$\kappa (\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$	18,8	20,9	8,8	10,5

Tableau 2 : Conductivités thermiques effectives calculées à 20°C pour les dépôts d'alumine de la figure 3.

La figure 4 présente un dépôt abrasable Al-Si/polyester produit à partir d'une poudre DURABRADE 1605 (Sulzer-Metco, Wohlen, Suisse) où les pixels blancs correspondent à l'alliage Al-Si (12% Si) et les pixels noirs à la phase polyester. La résolution de l'image (756×541 pixels) est de $3 \mu\text{m}/\text{pixel}$: il existe donc un facteur 20 sur la taille de chaque pixel entre cette image et celle présentée par exemple sur la figure 2. Pour des images de barrières thermiques (figure 2), l'important est de capturer les fissures inter-lamellaires qui agissent comme résistances thermiques. Pour des images de couches abrasables (figure 4), l'important est de couvrir une zone suffisamment représentative de la connectivité de la phase métallique. Dans le cas inverse (plus forts grossissements), des chemins de percolation de la porosité pourront connecter deux cotés de l'image, conduisant à des valeurs erronées de la conductivité thermique apparente (la taille de l'image devient inférieur à la surface élémentaire représentative, SER, de la structure). En considérant des valeurs de conductivités thermiques intrinsèques de $130 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour l'alliage Al-Si et de $0,17 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le polyester, le tableau 3 présente les valeurs de la conductivité apparente calculée. La valeur mesurée expérimentalement étant de $0,53 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, l'ordre de grandeur des valeurs calculées est satisfaisant (20% d'écart moyen). En effet, il existe une marge d'incertitude liée à différents éléments, tels que les valeurs de conductivités intrinsèques de chaque phase, la méthode de seuillage de l'image binaire ou encore la non différenciation des pores relativement à la phase polyester.

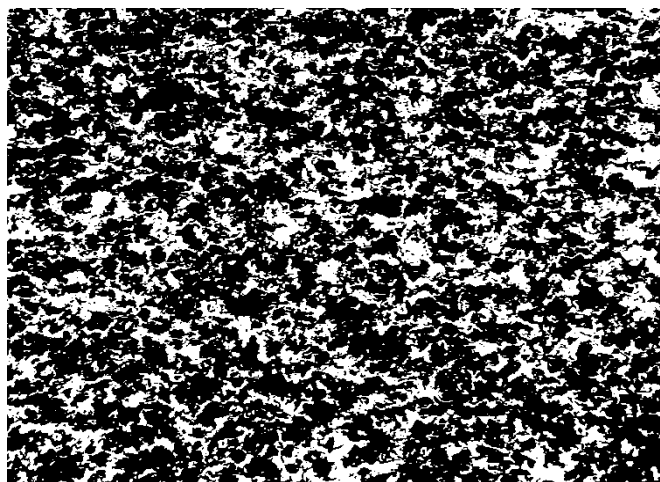


Figure 4 : Image binaire produite à partir d'une coupe micrographique d'un dépôt composite abrasable de type Al-Si/polyester [10].

Formulation	$\kappa (W.m^{-1}.K^{-1})$	
	centrée	nodale
1 cellule / pixel	0,614	0,725
4 cellules / pixel	0,634	0,701

Tableau 3 : Valeurs de conductivités calculées en fonction de l'option de calcul.

4. Conclusions

Une méthode numérique complémentaire aux mesures expérimentales pour quantifier la conductivité thermique effective de structures poreuses telles que des dépôts élaborés par projection thermique, a été présentée et illustrée par des résultats issus de trois exemples. La formulation mathématique utilisée joue un rôle non négligeable sur les valeurs calculées. Ainsi, une formulation nodale majore systématiquement les conductivités calculées par rapport à une formulation de type centrée. Toutefois, cette différence tend à se réduire lorsque la résolution est augmentée ou lorsque les pixels sont fractionnés en plusieurs cellules. Aujourd'hui une version 3D du code est en cours de développement. Pour des images volumiques générées artificiellement, les premiers résultats tendent à indiquer une influence de l'hypothèse bidimensionnelle utilisée lorsque l'on travaille à partir de coupes micrographiques de dépôts. En effet, les résultats peuvent être différents suivant si l'on moyenne les résultats obtenus sur des coupes ou si l'on considère le modèle 3D. Les développements futurs s'orientent donc vers des calculs réalisés à partir d'images tomographiques. Néanmoins, la question de la résolution devra être considérée car les porosités inter-lamellaires fines influent fortement sur la conductivité thermique en agissant comme résistances thermiques : de hautes résolutions seront exigées pour ces images.

Références

-
- [1] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott, *J. Appl. Phys.*, 32-9 (1961), 1679–1684.
 - [2] H. Wang and R. B. Dinwiddie, *J. Thermal Spray Technol.*, 9-2 (2000), 210–214.
 - [3] A. Degiovanni, M. Laurent, *Revue Phys. Appl.* 21 (1986), 229-237.
 - [4] A. Degiovanni, J.C. Batsale, D. Maillet, *Revue Générale de Thermique*, 35 (1996), 141-147.
 - [5] J. M. Dorvaux, O. Lavigne, R. Mévrel, M. Poulain, Y. Renollet, and C. Rio, *Proc. 85th AGARD SMP Meeting on Thermal Barrier Coatings*, (Aalborg, Denmark, 1997).
 - [6] Y. Tan, J.P. Longtin, and S. Sampath, *Proc. of the International Thermal Spray Conference* (Seattle, Washington, USA, 2006).
 - [7] R. Bolot, G. Antou, G. Montavon, C. Coddet, *Numerical Heat Transfer Part A: Applications*, 47-9 (2005), 875-898.
 - [8] R. Bolot, G. Antou, G. Montavon, C. Coddet, *actes du colloque MATERIAUX 2006* (Dijon, 13-17 novembre 2006).
 - [9] R. Bolot, J.L. Seichepine, F. Vucko, C. Coddet, D. Sporer, P. Fiala, B. Bartlett, *Welding and Cutting*, 8-2 (2009), 104-109.
 - [10] R. Bolot, J.L. Seichepine, J.H. Qiao, and C. Coddet, *Proc. of the International Thermal Spray Conference* (Singapore, 2010, à paraître).
 - [11] R. Bolot, J.H. Qiao, G. Bertrand, P. Bertrand, C. Coddet, Effect of thermal treatment on the effective thermal conductivity of YPSZ coatings, soumis à *Surface and Coatings Technology*, 2010.
 - [12] S. Costil, C. Verdy, R. Bolot, C. Coddet, *J. Thermal Spray Technol.*, 16 (5-6) (2007), 839-843.