

# Détermination des conditions de contact de milieux avec cinétique de solidification rapide

Fahmi LOGHMARI<sup>1</sup>, Cédric LE BOT<sup>2</sup>, Mohamed. RADY<sup>2</sup>, Didier DELAUNAY<sup>3</sup>,  
Dominique GOBIN<sup>1</sup>

<sup>1</sup> FAST, Campus Universitaire - Bât.502, 91405 Orsay Cedex

<sup>2</sup> TREFLE, 16 avenue Pey Berland, 33607, Pessac Cedex

<sup>3</sup> Laboratoire Thermocinétique de Nantes, rue Christian Pauc, 44306 Nantes

(auteur correspondant : [loghmari@fast.u-psud.fr](mailto:loghmari@fast.u-psud.fr))

**Résumé** - Cette étude présente les phénomènes thermiques d'un point de vue expérimental et numérique lors de la solidification d'un métal (indium) avec une vitesse de refroidissement constante lors du contact avec un autre matériau métallique (acier). Le suivi de la cinétique de changement de phase et des échanges thermiques en cas de solidification rapide permet de bien contrôler les phénomènes qui peuvent intervenir lors de l'impact d'une goutte de métal fondu sur un substrat froid, notamment la résistance thermique de contact et la surfusion.

## Nomenclature

Cp	Capacité calorifique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	x	longueur, m
L <sub>f</sub>	chaleur latente, $J.kg^{-1}$	s	sensibilité, K/W
K	fonction cinétique	e	épaisseur de l'indium, m
T <sub>f</sub>	température de fusion, K	<i>Symboles grecs</i>	
T	Température, K	$\alpha$	fraction solide
Sc	terme source, $J.kg^{-1}$	$\rho$	masse volumique, $kg.m^{-3}$
R <sub>TC</sub>	résistance thermique de contact, $m^2.K.W^{-1}$	$\varphi$	flux de chaleur, $W.m^{-2}$
t	temps, s	$\lambda$	conductivité thermique, $W.K^{-1}.m^{-1}$

## 1. Introduction

Lors de l'impact de gouttes métalliques sur un substrat solide froid, de nombreux phénomènes dynamiques et thermiques interviennent, tels que l'étalement, le refroidissement et la solidification. Beaucoup de ces phénomènes restent difficiles à maîtriser, en particulier la cinétique de solidification du métal. De plus, le changement de phase dépend de la valeur de la résistance thermique de contact entre le « splat » (forme de la goutte après étalement) et le substrat. Cette résistance est alors difficile à déterminer correctement [1-2].

L'objectif de cette étude est de déterminer expérimentalement la cinétique de solidification d'un métal donné (indium) à l'aide d'un dispositif basé sur une mesure par calorimétrie différentielle à balayage (DSC). A partir d'un échantillon, la mesure du flux de chaleur dégagé et celle de la température du matériau, lors de la solidification permettent d'identifier le modèle de cinétique de solidification correspondant [3].

Une fois cette cinétique déterminée, un autre dispositif constitué d'une mini-presse et destiné à réaliser le contact brusque de deux milieux métalliques dont l'un change de phase permettra de préciser la résistance thermique de contact entre les deux zones. Les résultats permettront de définir comment le métal liquide peut évoluer lors de l'impact sur une surface en considérant un contact non parfait et la solidification du métal.

Une fois la cinétique de solidification rapide et la résistance thermique de contact déterminées, les valeurs seront utilisées dans un code numérique pour simuler l'impact d'une goutte métallique sur un substrat froid. Une comparaison pourra alors être effectuée entre la solidification d'un splat en cours de solidification à température constante (solidification à l'équilibre, pas de cinétique particulière) et celle d'un splat soumis à la cinétique de solidification rapide.

## 2. Dispositifs expérimentaux

### 2.1 Principe de la calorimétrie

Quand un matériau subit un changement d'état physique ou bien réagit chimiquement, de la chaleur est soit absorbée, soit dégagée. De tels processus peuvent être initiés simplement en augmentant la température du matériau, c'est le principe de l'analyse thermique. Un appareil de DSC (figure 1) est constitué de deux dispositifs calorimétriques. Ils sont placés dans le même environnement : température, isolation par rapport à l'extérieur, nature et pression du gaz environnant. En pratique, on utilise deux creusets dans lesquels sont placés respectivement un échantillon de référence et l'échantillon à tester, de masse connue (de l'ordre de 10 mg). Il est fréquent que le creuset de référence soit vide.

Le protocole de l'étude est décrit en référence [3]. La détermination de la cinétique de l'indium a été obtenue grâce à l'estimation du flux de chaleur dégagé par l'échantillon et de sa température lors d'un refroidissement à vitesse constante. Dans le cas de l'indium, le modèle d'Avrami permet d'exprimer ce terme de dégagement sous la forme suivante [3] :

$$K(T) = 0,02 \exp(-2,33 \cdot (T_f - T)) \quad (1)$$

### 2.2 Principe de l'appareil « Lagardère »

Le suivi de l'évolution de la résistance thermique de contact entre l'indium et l'acier est déterminé grâce à un appareil dit « Lagardère ». Cet appareil est conçu de telle façon à établir une mise en contact brusque entre deux milieux dont l'un est en phase fondue (indium), tout en suivant finement les flux échangés. La conception de l'appareil est telle que, durant les premiers instants, les transferts restent 1D dans la direction de la normale au plan de contact, ce qui permet de simplifier la modélisation. Un schéma de l'appareil est présenté en figure 2.

Un disque d'indium (diamètre de 49 mm et épaisseur de 2,7 mm) est placé dans un anneau en élastomère de faible module d'Young qui permet d'assurer une isolation latérale ainsi que le maintien de l'échantillon pendant la fusion. L'ensemble est placé entre deux plateaux équipés de résistances chauffantes : le plateau supérieur  $P_1$ , mobile latéralement grâce à un système pneumatique à air comprimé, et le plateau inférieur fixe  $P_2$ . Ces deux plateaux permettent la fusion du métal et de le maintenir à une température constante afin d'atteindre un régime stationnaire.

Un troisième plateau  $P_0$  mobile verticalement grâce à un système d'air comprimé, joue le rôle de plaque froide. Il est constitué par un cylindre d'acier de 78 mm de diamètre et est équipé d'un capteur de flux non intrusif dont le rôle est d'évaluer les transferts de chaleurs entre le moule et l'indium en cours de solidification. Un circuit d'eau permet d'imposer au plateau une température initiale avant le contact comprise entre 10°C et 90°C.

Le contact brusque entre les deux matériaux (acier et indium) se produit au moment où le système d'air comprimé est déclenché. Au même moment, le plateau mobile  $P_1$  se déplace

latéralement et le plateau cylindrique  $P_0$  tombe sur l'indium fondu provoquant le refroidissement rapide recherché.

Le capteur de flux au niveau du plateau  $P_0$  est constitué de trois thermocouples  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  situés à  $x_1=0.2738 \text{ mm}$ ,  $x_2=2.03645 \text{ mm}$  et  $x_3=4.8979 \text{ mm}$  de la surface de contact. L'échantillon qui subit le changement de phase est aussi équipé d'un thermocouple placé sur la surface inférieure du cylindre d'indium en contact avec le plateau inférieur  $P_2$ . Ce thermocouple de  $80 \mu\text{m}$  de diamètre est tendu selon les isothermes et sort de la cellule à travers l'anneau d'élastomère. Le matériau utilisé pour les essais est de l'indium pur à 99,99% dont les caractéristiques thermiques sont données dans le tableau 1.

	<i>Masse volumique</i> ( $\text{kg/m}^3$ )	<i>Capacité Calorifique</i> ( $\text{J/K.kg}$ )	<i>Conductivité</i> ( $\text{W/m.K}$ )	<i>Température de fusion</i> ( $^\circ\text{C}$ )	<i>Enthalpie de fusion</i> ( $\text{J/kg}$ )
Indium (liquide)	7020	273,5	81,1	156,6	28500
Indium (Solide)	7300	233	81,6	-	-
Acier	7345	465	36,5	-	-

Tableau 1: Caractéristiques de l'indium et de l'acier

### 3. Résultats expérimentaux:

Sur la figure 3 sont représentées les évolutions des températures de l'indium et de l'acier (au niveau du capteur de flux du plateau  $P_0$ ). Dès le contact, la température de l'indium ( $T_{\text{ind}}$ ), initialement égale à  $180^\circ\text{C}$ , décroît rapidement jusqu'à atteindre un palier aux alentours de  $157^\circ\text{C}$  après 1 s. Ce palier correspond à la solidification du métal qui prend fin après 3,4 s de contact direct. Ensuite, la diffusion de la chaleur vers le plateau  $P_0$  se poursuit, et la température décroît encore à la vitesse de refroidissement initiale, avant de converger vers un deuxième palier correspondant à l'équilibre thermique.

Du côté de la paroi en acier, dans le capteur de flux, les thermocouples proches de la surface enregistrent une augmentation plus rapide de la température, montrant une évolution caractéristique. Environ 1 s après la mise en contact (début de la solidification de l'indium), la température au niveau des trois thermocouples  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  est respectivement de  $40,5^\circ\text{C}$ ,  $30,7^\circ\text{C}$  et  $21,1^\circ\text{C}$ . Pour les deux plus éloignés du point d'impact ( $T_2$  et  $T_3$ ), cette température augmente encore avec une vitesse différente avant d'atteindre un palier aux alentours de  $40^\circ\text{C}$ . En ce qui concerne le premier thermocouple situé à  $200 \mu\text{m}$  de la surface, au début de la solidification de l'indium, la température augmente légèrement avant d'atteindre le même palier que les autres thermocouples. Ce type de comportement, aussi observé par [4] et [5], est caractéristique de la solidification rapide.

Avec les mesures de températures obtenues par les thermocouples  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  dans le moule, et la température  $T_{\text{ind}}$  à l'intérieur de l'échantillon d'indium, une méthode inverse est utilisée pour déterminer le flux de chaleur  $\varphi$  qui traverse l'interface depuis l'échantillon chaud vers le moule froid, ainsi que la température de surface du moule,  $T_{s,m}$  (figure 4). Cette méthode inverse est basée sur la méthode de Beck [6], et utilise la prédiction du flux, constant sur un nombre donné de pas de temps futurs. Le flux de chaleur à déterminer correspond à l'une des conditions limites du système à résoudre. L'autre condition à la limite – de type Dirichlet – est la température  $T_1$ .

En ce qui concerne les expériences avec changement de phase, des essais en calorimétrie différentielle à balayage ont permis de proposer un modèle de cinétique de solidification de

l'indium en tenant compte de la surfusion du métal. Cette cinétique est basée sur la loi proposée par Nakamura [7] et exprimée sous forme différentielle par Patel [8] :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = n.K(T).(1-\alpha).\left[-\ln(1-\alpha)\right]^{n-1} \quad (2)$$

L'algorithme de la méthode inverse repose sur le calcul des sensibilités  $s$  définies par :

$$s = \frac{\partial T}{\partial \varphi} \quad (3)$$

La combinaison du système direct et des équations (1) (2) et (3) permet de reconstituer le système des sensibilités (4), nécessaire à la correction du flux de chaleur estimé.

$$\begin{cases} \rho C_p \frac{\partial s}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 s}{\partial x^2} + 2,33.s.S_c \\ s(x=e) = 0 \\ -\lambda \left(\frac{\partial s}{\partial x}\right)_{x=0} = 1 \\ s(x,t=0) = 0 \end{cases} \quad (4)$$

En l'absence de cinétique de solidification, le même système peut être résolu dans l'échantillon de métal avec un terme source  $S_c = \rho L_f \frac{\partial \alpha}{\partial t}$ , afin de déterminer la température de surface de l'échantillon  $T_{s,e}$ . Grâce aux deux températures de surface et au flux de chaleur, on déduit la valeur au cours du temps de la résistance thermique de contact.

$$R_{TC} = \frac{T_{s,e} - T_{s,m}}{\varphi}.$$

La figure 5 montre l'évolution de la  $R_{TC}$  au cours du temps pour deux cas différents : solidification sans cinétique de surfusion (a) et solidification avec cinétique de surfusion (b). Au début du contact, la  $R_{TC}$  est la même: la résistance part d'une valeur faible vers une valeur élevée  $4,3 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ . Puis elle descend à une valeur faible  $3,5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$  à  $t = 0,8\text{s}$ . C'est le temps nécessaire au refroidissement sans solidification.. Dès que le changement de phase intervient, la  $R_{TC}$  change : elle s'arrête de diminuer et remonte à une valeur plus élevée avant de redescendre de nouveau dès lors que la phase de solidification s'arrête ( $t = 2,4\text{s}$ ) dans le premier cas (figure 5(a)). En revanche, elle continue de descendre jusqu'à une valeur plus faible au même instant ( $3,2 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$  à  $t = 0,8\text{s}$ ) dans le deuxième cas (figure 5 (b)). Ensuite elle remonte légèrement avant de redescendre à la fin de la phase de solidification, plus court quand la cinétique intervient,  $t = 1,8\text{s}$ ). Enfin, elle converge vers une valeur fixe de l'ordre de  $5,0 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ . Ceci serait lié à la rétraction du métal pendant la solidification, le contact avec le moule d'acier étant à ce moment moins prononcé. Le moule étant amovible, le contact redevient mieux réalisé, ce qui tend à diminuer la résistance thermique de contact.

#### 4. Conclusion

Des expériences de solidification rapide d'un métal en contact avec un moule d'acier ont été réalisées afin de relier la cinétique de changement de phase et la résistance thermique de contact correspondante. Les résultats, obtenus à l'aide d'une méthode inverse, ont montré que la résistance thermique de contact évolue dans le temps, la valeur dépendant de l'état : une

valeur faible est obtenue durant la phase liquide, et une valeur élevée apparaît lors de la solidification, entre autres à cause de la rétraction du métal. D'autres expériences vont permettre de confirmer ou infirmer les résultats obtenus.

## Références :

- [1] M. Vardelle, A. Vardelle, A.C Léger, P. Fauchais, D. Gobin, Influence of particle parameters at impact on splat formation and solidification in plasma spraying processes, *J. Thermal Spray Tech.*, 4(1) (1994), 50-58.
- [2] F. Loghmari, N. Ferguen, A.Vardelle, D. Gobin, Spreading and solidification of droplets impacting on a cold substrate, *13th International Heat Transfer Conference* (Sydney, Australia, 13-18 August 2006).
- [3] C. Le Bot, D. Delaunay, Rapid solidification of indium : Modelling subcooling, *Mater. Charact.*, 59 (2008), 519-527.
- [4] T. Loulou, Etude expérimentale de l'évolution des conditions thermiques de contact lors de la solidification d'une goutte tombant sur une paroi métallique refroidie. Thèse de doctorat, Université de Nantes (1995).
- [5] P. Le Bot, Comportement thermique des semi cristallins injecté. Application à la prédiction des retraits. Thèse de Doctorat, Université de Nantes (1998).
- [6] J.V. Beck, B. Blacwell, C.R. St Clair, Inverse heat conduction: ill posed problem, *Willey Intersc.*, *New-York* (USA), 1985.
- [7] K. Nakamura, T. Watanabe, K. Katayama, T. Amano, Some aspect of nonisothermal crystallization of polymers. I. Relationship between crystallization temperature, crystallinity and cooling conditions, *J. Appl. Polym. Sci.*, 16 (1972), 1077-1091.
- [8] R.M. Patel, J.E. Sprueil,. Crystallization kinetics during polymer processing analysis of available approaches for process modelling, *Polym. Eng. Sci.*, 31 (1991), 730-738.
- [9] R. Le Goff, Etude et modélisation des transferts thermiques lors de la solidification de pièces injectées en polymère semi cristallin chargé de fibres. Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes (2006).

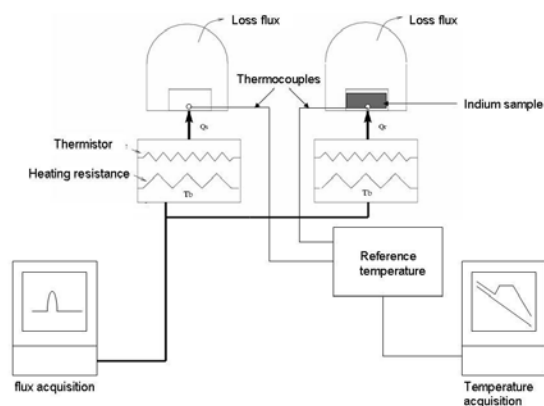


Figure 1 : Schéma de principe de la DSC [3]

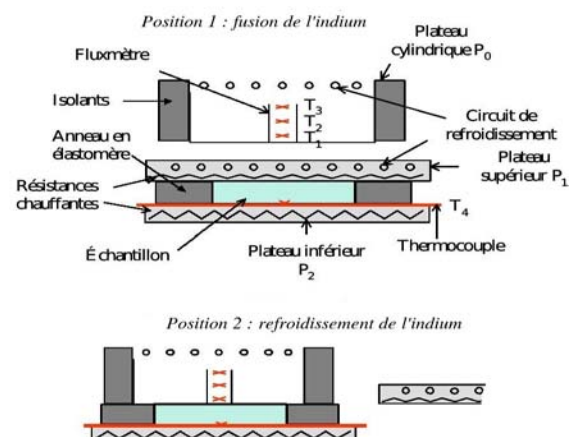


Figure 2 : Schéma de principe Lagardère [9]

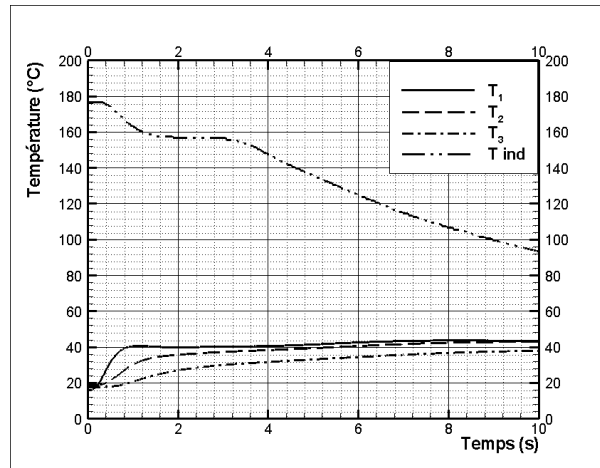
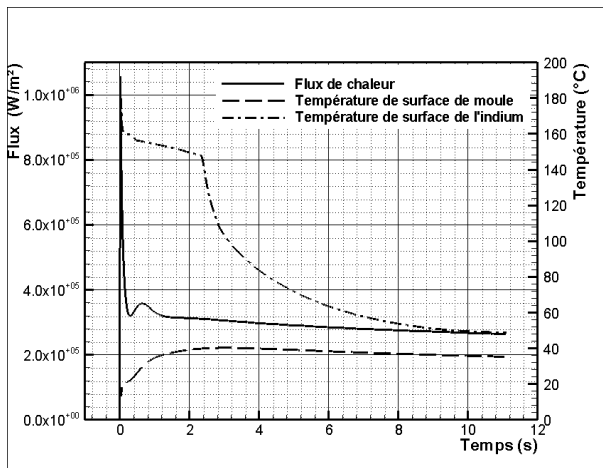
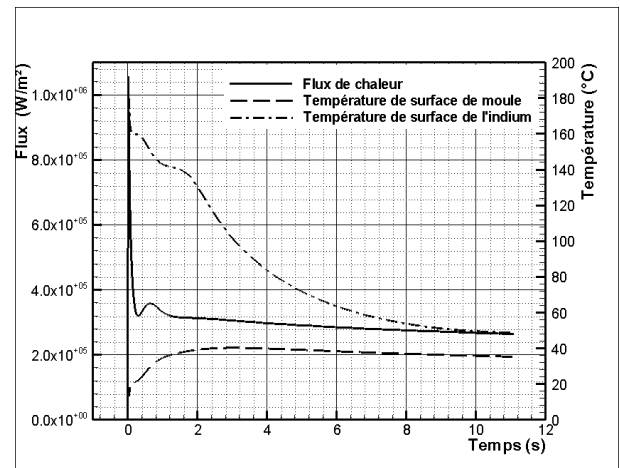


Figure 3 : Evolution des températures dans l'acier ( $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$ ) et dans l'indium ( $T_{ind}$ ) avec changement de phase



(a)



(b)

Figure 4 : Evolution du flux de chaleur, de la température de surface de moule et de l'indium  
(a) Sans cinétique de solidification (b) Avec cinétique de solidification

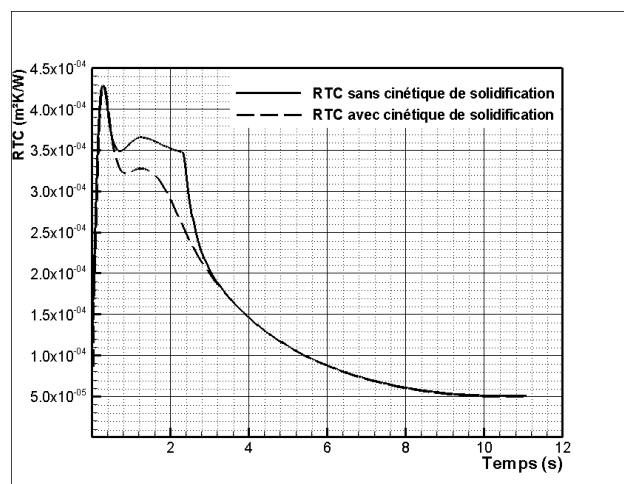


Figure 5 : Evolution de la RTC lors d'un contact