

Aspect thermique de la projection de poudre de zircone nanométrique agglomérée pour obtenir un dépôt partiellement nanostructurés

Fadhel Ben Ettouil^{1,*}, Olga Mazhorova², Bernard Pateyron¹, Mohammed El Ganaoui¹, Pierre Fauchais¹

¹ SPCTS UMR 66 38 CNRS Université de Limoges. FST 123 Av Albert Thomas 87060 Limoges.

² Keldysh Institute of Applied Mathematics RAS, 4, Miusskaya pl., Moscow 125047, Russia

* auteur correspondant : fadhel.ben@etu.unilim.fr

Résumé – Les dépôts par plasma de zircone partiellement nano structurés sont obtenus en projetant des particules nano structurées agglomérées qui, au moment de l'impact sur le substrat, ne doivent être fondues qu'à la périphérie afin de conserver un cœur nano structuré. Pour optimiser ce procédé, un programme de calcul couplant les comportements dynamiques et thermiques (avec propagation de fronts de fusion et d'évaporation) de particule nanométrique de zircone a été mis au point en 2D pour le jet plasma et en 3D pour la particule. Il permet de traiter en une dizaine de seconde sur PC, les calculs de jet et de la particule pour des conditions de tir données et aussi d'optimiser ces dernières dans le but de conserver un maximum de structure nanométrique.

Nomenclature :

c_p : chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	\mathcal{G}_v : vitesse du front de vaporisation ($m.s^{-1}$)
C_D : coefficient de traînée (-)	\mathcal{G}_r : vitesse du retrait ($m.s^{-1}$)
d_p : diamètre de la particule (m)	$\alpha = \frac{\text{volume des pores}}{\text{volume de la particule}}$ (-)
h : coefficient de transfert de chaleur ($W.m^{-2}.K^{-1}$)	κ : conductivité thermique du solide ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
L_{sl} : chaleur latente de fusion ($J.kg^{-1}$)	κ_{eff} : conductivité thermique de la particule poreuse ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
L_{lv} : chaleur latente de vaporisation ($J.kg^{-1}$)	ρ : masse spécifique ($kg.m^{-3}$)
m : masse (kg)	σ : Constante de Stefan-Boltzmann = $5.67.10^{-8}$ ($W.m^{-2}.K^{-4}$)
M : masse molaire ($kg.mole^{-1}$)	Indices :
Ma : nombre de mach (-)	eb : ébullition
Nu : nombre de Nusselt (-)	l : liquide
p : pression (Pa)	p : particule
Pe : nombre de Peclet (-)	sat : saturation
r : rayon de la particule (m)	s : solide
R : constante des gaz parfaits = 8.314 ($J.mol^{-1}.K^{-1}$)	v : vapeur
Re : nombre de Reynolds(-)	∞ : plasma
T : température (K)	
T_a : température ambiante (K)	
u : vitesse de la vapeur ($m.s^{-1}$)	
U : vitesse du plasma ($m.s^{-1}$)	
\mathcal{G}_{sl} : vitesse du front de fusion ($m.s^{-1}$)	

1. Introduction

La projection plasma consiste à introduire des particules de poudres solides dans un jet plasma à hautes températures et hautes vitesses d'écoulements. Ces particules totalement ou partiellement fondues s'écrasent en environ une microseconde sur le substrat préalablement préparé, se solidifient et s'empilent pour former le dépôt.

La projection plasma des poudres agglomérées est encore dans ses débuts mais a déjà montré beaucoup d'avantages et des résultats prometteurs [1] comme l'amélioration de la résistance à l'abrasion et l'augmentation de la dureté de la surface (projection de WC/Co). La projection de ces poudres agglomérées présentes un défi majeur qui est de garder une grande partie de la

structure nanocristalline de la particule jusqu'au substrat et à la formation du dépôt, comme l'explique la figure 1. Ceci implique un choix judicieux des conditions opératoires qui favorisent une fusion partielle des particules et gardent la structure nano cristalline aux cœurs des particules. Plusieurs travaux expérimentaux et de modélisation [1, 2, 3] ont traité la projection de poudre agglomérée pour obtenir du dépôt partiellement nano structuré. Le présent travail présente une modélisation numérique du traitement dynamique et thermique des particules de zircono nanométriques agglomérées en vue d'obtenir du dépôt partiellement nano structuré. Le modèle développé couple les effets de propagation de la chaleur à la dynamique de la particule dans le jet plasma. Celui ci simule la dynamique de la particule dans le jet plasma en calculant sa trajectoire, sa vitesse, sa température de surface, ainsi que la conduction de la chaleur, interne à la particule, et l'évolution des fronts de changement de phases.

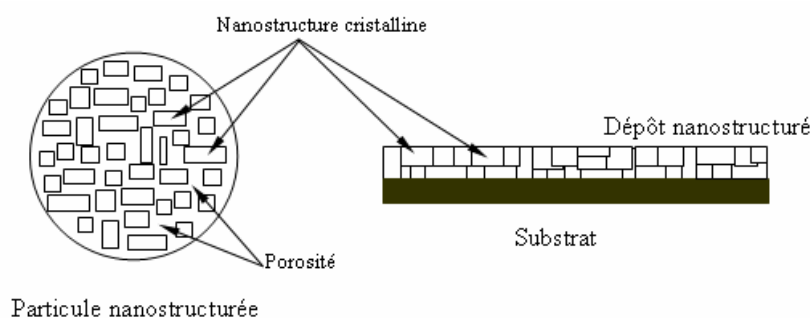


Figure 1 : Mécanisme de projection de particules agglomérées et formation du dépôt nano structuré.

2. Modélisation

2.1 Traitement dynamique de la particule

La trajectoire d'une particule isolée dans le jet plasma est calculée à partir du bilan des forces exercées sur celle-ci. Les forces autres que la force de traînée (force de Basset, de thermophorèse, de gravité, de masse ajoutée et la force due à la rotation de la particule) ont été négligées en accord avec les études consacrées à l'importance relative de ces forces [4]. Dans le cas d'une particule de zircono dans un plasma Ar-25%H₂, avec une vitesse relative plasma-particule de 500m/s (qui semble être une valeur surestimée), l'étude des rapport de ces différentes forces à la force de traînée a montré que la plus importante de ces forces (la force de Basset) varie entre 0,1% et moins de 10% de la force de traînée [5].

Les grandes variations de température, et donc de propriétés du gaz dans la couche limite thermique entourant la particule, sont pris en compte par l'introduction d'un coefficient correctif au coefficient de traînée qui s'écrit comme suit :

$$C_D = \left(\frac{24}{Re} \right) (1 + 0.11 \cdot Re^{0.81}) f' \cdot f'' \quad (1)$$

Où f' est le coefficient correctif proposé par Lee [6] pour tenir compte du gradient de température dans la couche limite, f'' est le facteur correctif correspondant à l'effet Knudsen [7]

2.2 Traitement Thermique de la particule

La propagation de la chaleur dans la particule est régie par l'équation de continuité du flux d'énergie thermique, adapté à sa géométrie sphérique. Les conditions aux limites prennent en compte l'énergie absorbée par évaporation et les pertes par rayonnement.

Comme pour le coefficient de traînée, et compte tenu de la variation des propriétés du plasma dans la couche limite, plusieurs corrections ont été proposées au niveau du traitement thermique de la particule dans le jet plasma. La première correction concerne la conductivité

thermique. L'analyse théorique détaillée du problème par Bourdin et al [8] a montré que cette propriété doit être évaluée comme une valeur moyenne intégrale :

$$\bar{\kappa}(T) = \frac{1}{T - T_a} \int_{T_a}^T \kappa(\theta) d\theta \quad (2)$$

Dans notre modèle, on considère un nombre de Nusselt modifié :

$$Nu = \left(2 + 0.6 Re_p^{0.5} Pr_p^{0.33}\right) f_0 \cdot f_1 \cdot f_2 \quad (3)$$

Où f_0 , f_1 et f_2 sont respectivement les facteurs correctifs liés au gradient de température dans la couche limite, à l'effet Knudsen et à l'évaporation [9, 10, 11].

Dans ces conditions, Le coefficient de transfert thermique h est donné par :

$$h = \frac{Nu \cdot \bar{\kappa}}{d_p} \quad (4)$$

La conductivité thermique de la particule poreuse est calculée en fonction de la conductivité thermique de la matrice solide et la porosité.

$$\kappa_{eff} = \kappa_s (1 - \alpha) \quad (5)$$

L'évolution de l'interface solide-liquide est régie par l'équation suivante :

$$\kappa_s \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_- - \kappa_l \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_+ = \rho_l L_{sl} \mathcal{G}_{sl} \quad (6)$$

Les chaleurs latentes de fusion et d'évaporation, étant rapporté à l'unité de masse de matière, ne sont pas affectées par la porosité. Le retrait de la particule dû à la perte de porosité suite à la fusion, est déduit de la vitesse du front de fusion :

$$\mathcal{G}_r = \alpha \cdot \mathcal{G}_{sl} \cdot \left(\frac{r_s}{r_l}\right)^2 \quad (7)$$

Pour découpler le calcul de l'évaporation de la particule du problème de la dynamique du gaz nous utilisons le résultat de J. C. Knight [12] qui donne en particulier la fraction de flux massique quittant la couche Knudsen en fonction du nombre de Mach ($0.01 \leq Ma \leq 0.4$ dans nos conditions opératoires). L'avancement du front d'évaporation est déduit de la conservation de masse traduite par l'équation :

$$\rho_l \mathcal{G}_{lv} = \rho_v (\mathcal{G}_{lv} - u) \quad (8)$$

L'équation (6) peut être réécrite comme suit :

$$\mathcal{G}_{lv} = \frac{\rho_v u}{(\rho_v - \rho_l)} = W_{fr} \frac{\rho_{sat} \sqrt{(R/M)T}}{\sqrt{2\pi}} \frac{1}{(\rho_v - \rho_l)} \quad (9)$$

où W_{fr} est la fraction massique émise par la particule et qui quitte la couche de Knudsen (le domaine adjacent à la particule) décrite par des équations moyennes continues:

$$W_{fr} = \frac{\rho_v u}{\rho_{sat} \sqrt{RT/2\pi M}} \quad (10)$$

Compte tenu de l'approximation $\rho_v \ll \rho_l$ et l'équation d'état des gaz parfaits $p_{sat} = \rho_{sat} (R/M)T$, l'équation (9) devient :

$$\mathcal{G}_{lv} = - \frac{W_{fr} \rho_{sat} \sqrt{(R/M)T}}{\rho_l \sqrt{2\pi}} = - \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{W_{fr}}{\rho_l} \frac{p_{sat}}{\sqrt{(R/M)T}} \quad (11)$$

La pression de saturation p_{sat} à la température T est donnée par :

$$p_{sat} = p_{eb} \text{Exp} \left[\frac{ML_{lv}}{RT_{eb}} \left(1 - \frac{T_{eb}}{T}\right) \right] \quad (12)$$

Pour traiter le problème des interfaces en mouvement sans passer par un modèle enthalpique, un maillage adaptatif est utilisé, dans lequel les positions des fronts de changement de phase

sont fixes. La transformation de coordonnées ne dépend donc que des vitesses des interfaces [13]. Dans ce système de coordonnées, un schéma implicite de différences finies a été écrit.

3. Résultats

La figure 2 montre l'évolution axiale de la température dans deux particules de zircon de porosité $\alpha=0.5$ et de diamètres respectives 40 et 60 μm . La température de surface de la particule s'élève très rapidement mais continûment dès son entrée dans le jet plasma. Pour la première particule, la fusion est totale et la structure nanocristalline est totalement détruite, tandis que la température au centre de la deuxième particule n'atteint pas la température de fusion contrairement à celle de la surface, ceci montre que la particule fond partiellement et garde un cœur solide préservant la structure nanocristalline recherchée à l'arrivée au substrat.

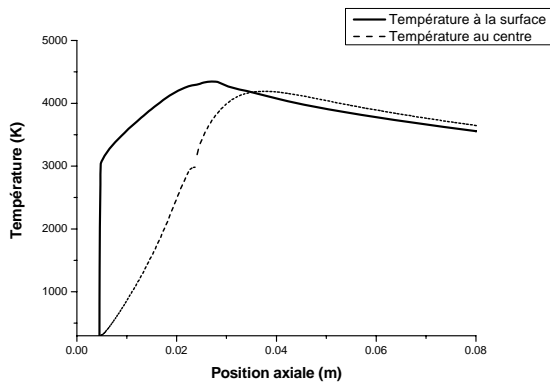


Figure 2.a : $d_p = 40 \mu\text{m}$

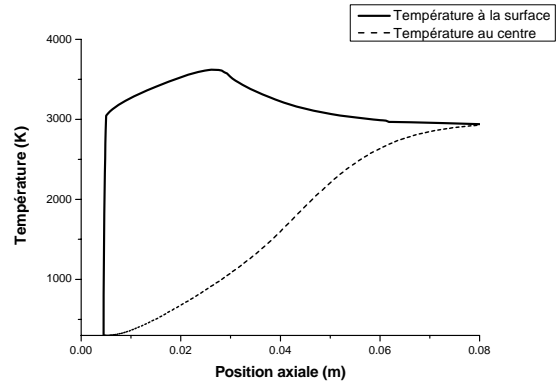


Figure 2.b : $d_p = 60 \mu\text{m}$

Figure 2 : Evolution axiale de la température de particules de zircon

Le résultat précédent est confirmé par le suivi de l'évolution des fronts de fusion dans ces deux mêmes particules, présenté sur la figure 3. La fusion atteint le centre de la particule de 40 μm à 25 mm de la sortie de la tuyère ou la particule est encore dans la zone la plus chaude du jet, le dard plasma. La particule de diamètre de 60 μm sort de cette zone la plus chaude du jet avec un cœur solide qu'elle va garder jusqu'à son impact sur le substrat, la simulation faite estime le diamètre de ce cœur solide à 47 % du rayon initial.

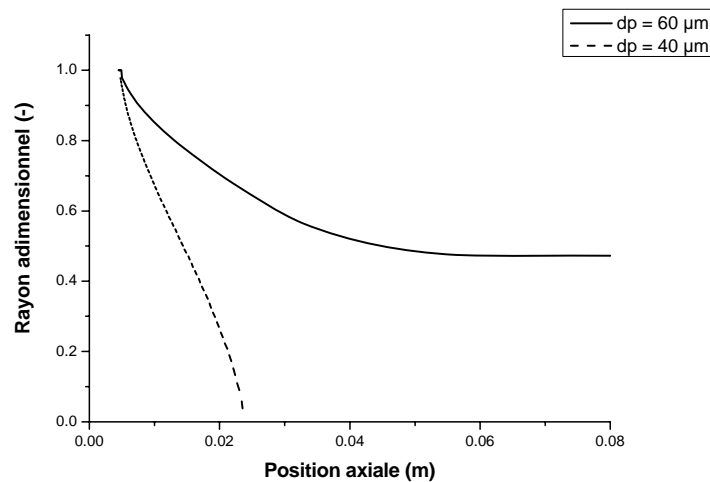


Figure 3 : Evolution axiale des fronts de fusion dans deux particules de zircon de différents diamètres

La figure 4 illustre l'évolution du front de fusion dans une particule de zircon de diamètre $50\ \mu\text{m}$ et de porosité $\alpha=0.5$, pour différentes vitesses d'injection. On note que la fusion est moins importante pour la plus grande vitesse d'injection (20 m/s) et devient plus importante avec la diminution de cette vitesse. Ceci s'explique par le faite que pour les plus faibles vitesses d'injection la particule reste plus longtemps dans la zone la plus chaude du jet. Quand on augmente la vitesse d'injection, la particule tend à traverser le dard plasma pour passer dans des zones plus froides, ce qui freine l'avancement du front de fusion.

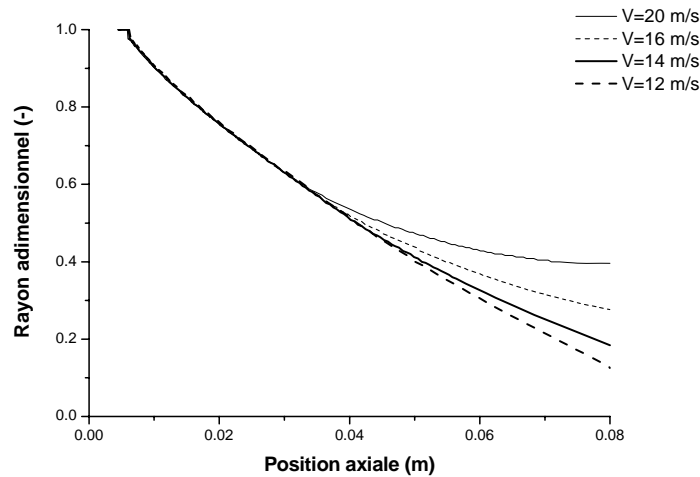


Figure 4 : Evolution axiale du front de fusion dans une particule de zircon $d_p=50\mu\text{m}$ pour différentes vitesses d'injection

La figure 5 trace l'évolution axiale du front de fusion dans deux particules de zircon de même diamètre de $50\mu\text{m}$ mais de différentes porosité, respectivement 25 et 50%. On note que la fusion est totale dans la dernière particule vu qu'elle constitue une faible quantité de matière par rapport à la deuxième qui atteint le substrat avec un noyau solide, à structure nano structuré, de diamètre d'environ $12\ \mu\text{m}$.

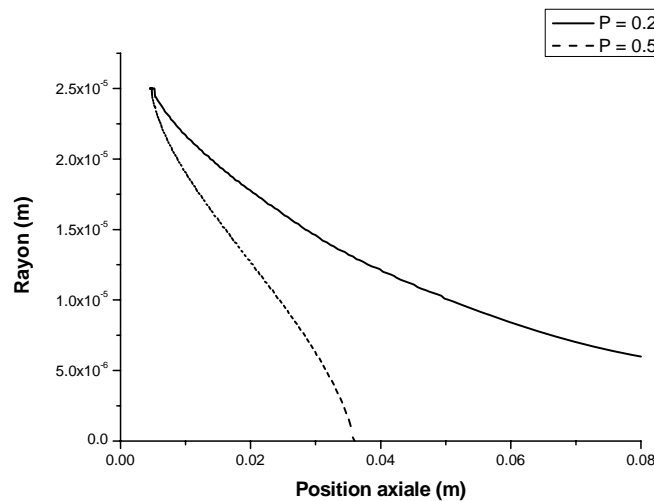


Figure 5 : Evolution axiale du front de fusion dans deux particule de zircon de diamètre $50\ \mu\text{m}$ et de porosité respective de 25 et 50%

4. Conclusion

Les résultats de la simulation de l'histoire thermique et dynamique des particules de zircone nanométrique agglomérée, injectées dans un jet plasma, ont été présentés. L'évolution des fronts de changement de phase, notamment celui de fusion, a montré que la préservation recherché d'un cœur solide nano structuré est lié au paramètres particules (taille, porosité ...) et à celui des paramètres d'injection dans le jet (vitesse). Expérimentalement pour des conditions opératoires déterminées, la conservation d'un noyau solide nano structuré est assurée pour une taille minimum de particule, au dessous de laquelle la fusion est totale, ainsi que le confirme ce modèle. La trajectoire de la particule dans le jet est déterminante quant au résultat final de la projection. En effet une vitesse d'injection qui favorise un séjour prolongé dans la zone la plus chaude du jet favorise également la fusion ce qui réduit la taille du cœur solide nano structuré.

Remerciements : École Doctorale STS de l'Université de Limoges

Référence :

- [1]. P. Fogarassy, D. Gerday, A. Lodini, *Agglomerated nanostructured particles disintegration during the plasma thermal spraying process*. Mechanic Research Communications, 32-2 (2005), 221-239.
- [2]. R. S. Lima, A. Kucuk and C. Berndt. *Bimodal Distribution of Mechanical Properties on Plasma Sprayed Nanostructured Partially Stabilized Zirconia*, *Mat. Sci. Eng. A327* (2002), 224-232.
- [3]. R. S. Lima, A. Kucuk and C. Berndt. *Integrity of nanostructured partially stabilized zirconia after plasma spray process* *Mater. Sci. Eng. Vol. 313*, (2001) 75-82
- [4] E. Pfender, *Particle behaviour in thermal plasma*, *Plasma Chem. And Plasma Proc*, 9-1, (1989), 167S-194S.
- [5] B. Dussoubs, *Modélisation tridimensionnelle du procédé de projection plasma: influence des conditions d'injection de la poudre et des paramètres de projection sur le traitement et la répartition des particules dans l'écoulement*, Thèse de doctorat de l'Université de Limoges, n° d'ordre 23-1998, juin 1998
- [6] Y.C. Lee, C. Hsu, E. Pfender, *Modelling of particle Injection into a D.C plasma jet* 5th International Symposium on plasma Chemistry , Edinburgh, Scotland, 2, (1981), 795-801
- [7] X.Chen, *Heat and Momentum Transfer between Thermal Plasma and Suspended Particles for different Knudsen Numbers*. *Thin Solid Films*, 345, (1999), 140-145.
- [8]. E. Bourdin, P. Fauchais, M. Boulos, *Transient heat conduction under plasma condition*. *Int. J. Heat Mass Transfer* 26-4, (1983), 582-652.
- [9] Y.P. Wan, V. Prasad, G.-X Wang, S. Sampath, J.R. Fincke, *Model and Powder Particle Heating, Melting, Resolidification, and Evaporation in Plasma Spraying Processes*. *J. Heat Transfer ASME*, 121 (1999), 691-699.
- [10] X. Chen, *Heat and Momentum Transfer between Thermal Plasma and suspended particles for different Knudsen numbers*. *Thin Solid Films*, 345 (1999), 140-145.
- [11] X. Chen, Y.P. Chyou,, Y.C. Lee, E. Pfender, *Heat-Transfer to a Particle Under plasmaConditions With Vapor Contamination from the Particle*. *Plasma Chem. Plasma Process*. 5 (1985) 119-141.
- [12] C. J. Knight, *Theoretical modelling of rapid surface vaporization with back pressure*, *AIAA journal*, 17- 5, (1979), 519-523
- [13] H. Hu, S. A Argyropoulos, *Mathematical modelling of solidification and malting: a review* *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 4 (1996), 371-396.