

Identification des propriétés radiatives et du champ de température de matériaux fibreux de faible densité : Application aux barrières thermiques hautes températures

Sébastien LE FOLL¹, Agnès DELMAS¹, Frédéric ANDRE¹

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

Résumé Dans une optique d'identification des propriétés radiatives et du champ de température de matériaux fibreux de faible densité une technique associant un banc de mesures spectrométriques hautes températures à un modèle de prédiction de la luminance partante a été développée. Les résultats obtenus pour des matériaux constitués de fibres de silice, sont présentés et comparés à ceux obtenus par d'autres méthodes couramment utilisées pour ce type de matériau.

Nomenclature

			Symbole grecs
T	Température (K)		
I	Luminance ($\text{W.m}^{-2}.\mu\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$)	$\bar{\beta}$	Coefficient d'extinction de Rosseland (cm^{-1})
c_p	Capacité calorifique ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	ε	Emissivité
t	Temps (s)	λ	Longueur d'onde (μm)
k_e	Conductivité thermique effective ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	ν	Nombre d'onde (cm^{-1})
k_p	Conductivité phonique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	ρ	Masse volumique (kg.m^{-3})
q	Flux radiatif surfacique (W.m^{-2})	σ_s	Constante de Stephan-Boltzmann ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$)

1. Introduction

Jusqu'au début des années 2000, le transfert de chaleur au travers des barrières thermiques de type céramique pour les applications à haute température, était généralement considéré comme purement conductif. Augmenter les performances d'isolation thermique et diminuer le poids de ces protections (TPS) a conduit au développement de matériaux poreux de très faible densité.

L'approche purement conductive des transferts de chaleur au travers de tels milieux n'est alors plus pertinente. L'impact des transferts radiatifs volumiques en leur sein doit être pris en compte et reste un domaine de recherche en développement et encore peu couvert.

Des études ont été menées au CETHIL pour tenter de mieux comprendre le comportement radiatif de ces matériaux. Un banc expérimental a été développé pour mesurer la transmittance ainsi que la réflectance de matériaux en fibres de verre et mousses de carbone [1], [2] pour identifier le coefficient d'extinction, l'albédo ainsi que les paramètres de la fonction de phase approchée de type Nicolau. Ces études ont conduit à la connaissance des propriétés radiatives d'isolants thermiques mais à température ambiante. Ces résultats sont pertinents pour des applications dans le domaine de la thermique de l'habitat ; en revanche, ils peuvent s'avérer invalides pour des applications à haute température.

Plus récemment, une approche basée sur des mesures de réflectance et de transmittance normales hémisphériques a également été utilisée pour déduire l'épaisseur optique et l'albédo de matériaux en SiC renforcés par des fibres de carbone avec une fonction de phase approchée de type Henyey-Greenstein [3]. Des travaux visant l'identification du facteur d'émission d'une alumine en utilisant des mesures d'émission spectrales normales et directionnelles ont

été menés par Lee et al [4] mais également à basse température. La caractérisation à haute température de céramiques de type zircone yttrée et alumine, basée sur des mesures d'émission spectrales normales [5] a conduit à la connaissance du facteur d'émission à des températures supérieures à 1500°C ; dans le cadre de ces travaux, c'est une pyrométrie au point de Christiansen qui était mise en œuvre pour mesurer la température et ainsi obtenir le facteur d'émission à partir de la puissance radiative.

Une autre approche pour la caractérisation des propriétés radiatives consiste à les calculer via un modèle basé sur la connaissance des indices de réfraction qui sont identifiés. Il existe des techniques d'identification de ces indices dont le principe est la reconstruction de la fonction diélectrique des matériaux étudiés à partir de mesures spectrométriques d'émission radiative [6], [7], [8].

Le travail rapporté ici concerne une nouvelle méthode de caractérisation des propriétés radiatives de milieux fibreux de faible densité. Elle basée sur des mesures d'émission, spectrales directionnelles à haute température, associées à un modèle de transfert radiatif en milieu absorbant et diffusant, dans lequel la fonction de phase est décrite par la théorie de Mie et le terme d'émission propre très significatif. Cette technique permet également l'identification du champ de température au sein de la couche d'isolant. Dans un premier temps le dispositif expérimental de mesure d'émission haute température est décrit succinctement. Sont ensuite présentés des mesures obtenues sur un matériau en fibres de silice, et les résultats obtenus par notre méthode, plus spécifiquement le facteur d'émission. Une comparaison entre l'émission mesurée et celle calculée avec les propriétés identifiées est établie. Les valeurs du champ de température identifié seront comparées d'une part au profil interne de température obtenu par un modèle de couplage conduction-rayonnement basé sur l'approximation de Rosseland, d'autre part à la température de surface obtenue par pyrométrie au point de Christiansen.

2. Description du banc de mesure spectrométrique d'émission

Cette section a pour objet la description du banc de mesure spectrométrique à haute température développé pour cette étude dont une photographie est présentée *figure 1*. Elle se compose d'une première partie, consacrée au système de chauffage à haute température par laser CO₂, la seconde partie décrivant le système de mesure du flux radiatif émis par l'échantillon par spectrométrie FT-IR.

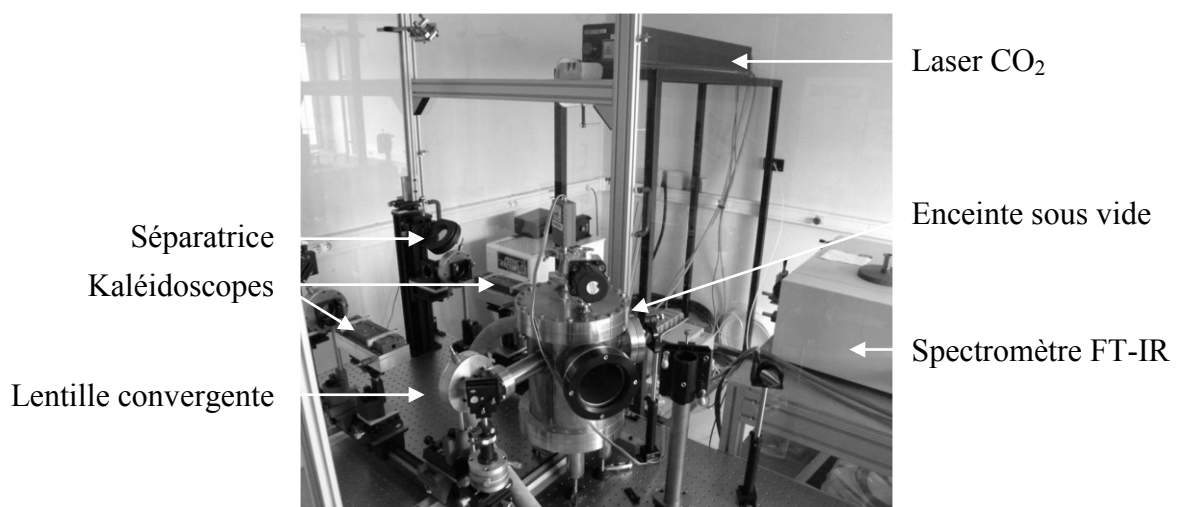


Figure 1. Photo du banc de mesure spectrométrique à haute température

2.1 Système de chauffage

Le chauffage des échantillons de matériaux étudiés est réalisé à l'aide d'un laser CO₂ d'une puissance de 300 W. Pour assurer une répartition de la température la plus homogène possible en surface et au sein de l'échantillon, un dispositif optique de conditionnement du faisceau laser est situé en amont du porte échantillon. Il comprend une lame séparatrice 50/50 séparant le faisceau initial en deux faisceaux identiques de même puissance incidents sur chaque face de l'échantillon. Chaque faisceau passe ensuite à travers un système optique comprenant un kaléidoscope associé à une lentille convergente en entrée et en sortie du dispositif réalisant ainsi son homogénéisation énergétique de sorte qu'avec un porte échantillon parfaitement isolant l'échantillon serait isotherme. Le porte échantillon est réalisé en mullite matériau céramique de faible conductivité thermique ($k = 1.1 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$) et ayant une très bonne tenue mécanique aux hautes températures (~2500 K). Enfin, le dispositif devant permettre d'étudier des échantillons de nature variée, le porte échantillon est placé dans une enceinte sous vide pour éliminer la possible oxydation de l'échantillon, cela a aussi pour effet de supprimer toute perte convective. Il est également possible d'opérer un balayage de l'enceinte par un gaz neutre. Quatre hublots sont placés sur l'enceinte cylindrique: deux en ZnSe permettant l'acheminement du faisceau laser sur l'échantillon, un en CaF₂ permettant une mesure optique entre 1 et 10 μm et un hublot en pyrex permettant un contrôle pyrométrique à 1 μm . Enfin il est possible de fermer une des voies de chauffage pour réaliser des mesures sur un échantillon anisotherme.

2.2 Spectrométrie FT-IR

Les mesures du flux radiatif émis par le matériau sont réalisées à l'aide d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FT-IR). Cet appareil équipé d'un détecteur DTGS permettant une mesure dans la plage 1000 à 7500 cm^{-1} (soit 10 à 1,3 μm) est placé au cœur d'un chemin optique acheminant le rayonnement provenant soit de l'échantillon soit d'un corps noir haute température ($T_{\text{max}} = 1650^\circ\text{C}$) pour l'étalonnage, vers le port d'entrée du spectromètre. Il a été montré que la fonction 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. Un miroir plan placé sur un axe rotatif permet la sélection de la cible de la mesure (échantillon ou corps noir).

3. Identification des propriétés radiatives et du champ de température

Cette section présente les résultats d'une campagne d'identification réalisée sur des matériaux composés de fibres de silice (SiO₂). La méthode d'identification utilise les mesures obtenues sur le banc décrit dans la section précédente conjointement à un code de Monte Carlo modélisant l'émission directionnelle spectrale de matériaux fibreux développé spécialement pour cette méthode [9]. Ce modèle utilise la théorie de Mie pour un cylindre infini pour calculer les propriétés de fibres de différents diamètres qui sont ensuite homogénéisées à l'ensemble du matériau fibreux. L'indice de réfraction nécessaire au calcul de la solution de Mie, est obtenu avec un modèle de la fonction diélectrique de SiO₂ basé sur des oscillateurs ayant un profil gaussien [7].

3.1 Mesures de luminances émises par l'échantillon de SiO₂

Les mesures sont réalisées sur des échantillons de dimensions 11x11x3 mm de densité 0.71 g.cm^{-3} . Les fibres de silice de diamètre variant entre 9 et 14 μm sont orientées aléatoirement dans l'espace comme illustré sur la *figure 2* pour un matériau proche de celui étudié. Les mesures sont réalisées sur la plage 1000 à 5000 cm^{-1} (10 à 2 μm) avec un chauffage symétrique pour trois puissances différentes : 15, 20 et 25 W.cm^{-2} .

Un exemple de luminances spectrales mesurées est présenté sur la *figure 3*.



Figure 2 : *Imagerie MEB (200 μm) d'un échantillon en fibres de silice (CREE-Saint Gobain, SilPower data book)*

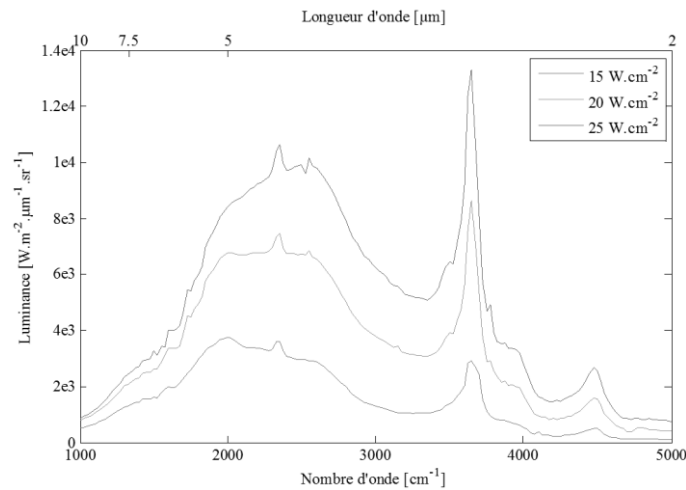


Figure 3 : *Luminance déterminée expérimentalement en configuration symétrique*

3.2 Résultats de l'identification

Les résultats obtenus avec la méthode d'identification sont présentés dans le *tableau 1* pour la température de surface, ils seront ensuite comparés à ceux obtenus par deux autres méthodes utilisées pour la détermination des températures. Une comparaison entre la luminance déterminée expérimentalement (*figure 3*) et celle calculée à partir des propriétés radiatives identifiées est présentée *figure 4.a* ; les propriétés associées font l'objet de la *figure 4.b* et sont présentées sous la forme du facteur d'émission.

Puissance laser	15 W.cm ⁻²	20 W.cm ⁻²	25 W.cm ⁻²
Température identifiée [K]	1121 K	1466 K	1678 K

Tableau 1 : *Température identifiée en fonction de la puissance laser*

La *figure 4.a* montre que la méthode de prédiction de la luminance est capable de rendre compte de façon très fidèle du comportement spectral très marqué de la silice, optiquement

mince entre 2 à 5 μm et très optiquement épaisse de 5 et 10 μm . D'autre part le calcul rend également compte du pic d'absorption présent aux alentours de 2.7 μm et observé sur le spectre expérimental. En ce qui concerne la modélisation de la luminance, l'écart relatif maximum sur la luminance totale est inférieur à 4%.

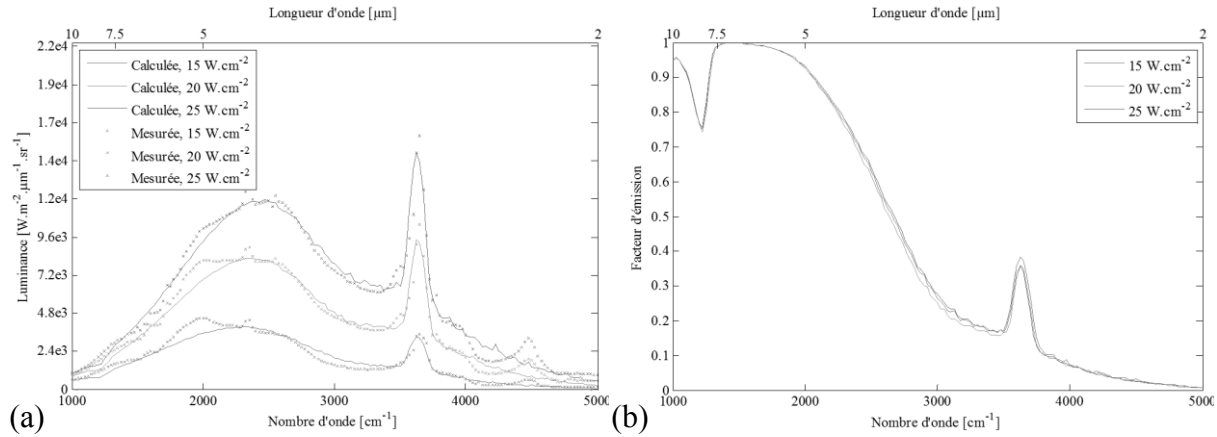


Figure 4 : Comparaison en fonction de la puissance laser du flux mesuré et du flux calculé avec les propriétés identifiées (a) et des facteurs d'émissions (b)

4. Comparaison des températures obtenues par les différentes méthodes

Cette section comporte une brève description des deux autres méthodes utilisées pour la détermination des températures. Comme explicité ci après (§ 4.1) la pyrométrie Christiansen permet de déterminer une température de surface. La résolution du couplage conduction rayonnement avec une conductivité équivalente de Rosseland (§ 4.2) conduit au profil de température interne au matériau d'épaisseur 3 mm qui sera comparé à celui obtenu avec notre méthode dans la troisième partie.

4.1 Principe de la Pyrométrie au point de Christiansen

La pyrométrie au point de Christiansen est basée sur la connaissance de l'émissivité à la fréquence (respectivement longueur d'onde) dite de Christiansen [10] à laquelle le matériau se comporte comme un corps noir son émissivité étant donc égale à 1. Cette fréquence est identifiable sur l'indice de réfraction comme la fréquence à laquelle la partie réelle de l'indice devient inférieure à 1 avec une partie imaginaire très proche de 0. Tout matériau diélectrique hétéropolaire possède une fréquence de Christiansen. L'intérêt pour nous d'étudier ce type de matériau est double : cela permet de valider l'identification de la température dans le cas du chauffage symétrique pour lequel le matériau est censé être isotherme d'une part, et de valider l'identification des propriétés radiatives d'autre part, en comparant la longueur d'onde de Christiansen théorique à celle obtenue avec les paramètres de l'identification. Pour SiO_2 , la longueur d'onde de Christiansen est égale à 7.3 μm et l'émissivité est supérieure à 0.99 sur la plage 6.3 à 7.6 μm .

4.2 Modèle basé sur l'approximation de Rosseland

Pour un matériau semi-transparent, on peut écrire l'équation de la chaleur en régime transitoire pour un couplage conduction-rayonnement sous la forme :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \text{div}(k_p \cdot \overrightarrow{\text{grad}} T) - \text{div}(\vec{q}) \quad (1)$$

L'approximation de Rosseland, pertinente pour un milieu optiquement épais, permet de simplifier l'équation (1) en traitant les transferts radiatifs à l'aide d'une conductivité équivalente ce qui permet ainsi de supprimer la divergence du flux radiatif et de traiter le problème comme un problème de conduction :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \text{div}(k_e \cdot \overrightarrow{\text{grad}} T), \text{ avec : } k_e = k_p + \frac{16\sigma_s T^3}{3\rho \bar{\beta}} \quad (2)$$

Dans l'équation (2), $\bar{\beta}$ est le coefficient d'extinction moyen de Rosseland, il est obtenu à partir des propriétés identifiées précédemment ; ici $\bar{\beta} = 230 \text{ cm}^{-1}$ soit une épaisseur optique $\tau = 69$. Le modèle développé est un modèle 3D de l'échantillon et de son porte échantillon, le couple masse volumique et capacité calorifique dépend de l'espace et la conductivité équivalente dépend de l'espace et de la température. L'échantillon étant dans une enceinte sous vide, les conditions aux limites sont purement radiatives. Ce modèle est résolu à l'aide d'un schéma ADI (implicite à directions alternées) de Douglas.

4.3 Comparaison des résultats

Dans un premier temps, une validation de la méthode d'identification des températures est réalisée en comparant la température identifiée du matériau supposé isotherme car chauffé de façon symétrique, avec celle obtenue par pyrométrie au point de Christiansen.

Comme on peut le voir dans le *tableau 2*, la température identifiée est sensiblement identique à la température obtenue par pyrométrie au point de Christiansen. L'écart relatif maximum est de l'ordre de 8% ce qui est inférieur à la variation relative de la température obtenue par pyrométrie Christiansen ; variation induite par les incertitudes de mesure sur la luminance.

Puissance laser	15 W.cm ⁻²	20 W.cm ⁻²	25 W.cm ⁻²
Température identifiée [K]	1121 K	1466 K	1678 K
Température Christiansen [K]	1213 K	1553 K	1702 K

Tableau 2 : Comparaison température identifiée et température par pyrométrie de Christiansen

Dans un second temps, on s'intéresse au couplage conduction-rayonnement. On compare les profils de température obtenus avec notre méthode d'identification et une conductivité phonique, avec ceux obtenus par un modèle basé sur l'approximation de Rosseland faisant appel à une conductivité effective. Les calculs ont été réalisés pour un échantillon de densité 0.71 g.cm^{-3} chauffé avec une puissance surfacique laser allant de 15 à 25 W.cm⁻².

Les résultats sont présentés *figure 5(b, c et d)*. La dépendance en température de ces conductivités est présentée parallèlement *figure 5.a*. Ces résultats permettent de mettre en évidence l'importance de la part radiative dans les transferts globaux au travers de ce type de matériau aux températures étudiées, les transferts radiatifs en volume étant le mode principal de transfert au-delà de 1500 K. Enfin on peut constater que les prévisions du modèle de Rosseland, bien que mettant en évidence la chute de température globale dans l'isolant, ne permettent pas d'obtenir les niveaux réels de température. En effet, une différence allant jusqu'à 200°C (pour la puissance laser de 15 W.cm⁻²) est constatée entre la température de surface prédite par le modèle utilisant l'approximation de Rosseland, et la température obtenue par les deux autres techniques.

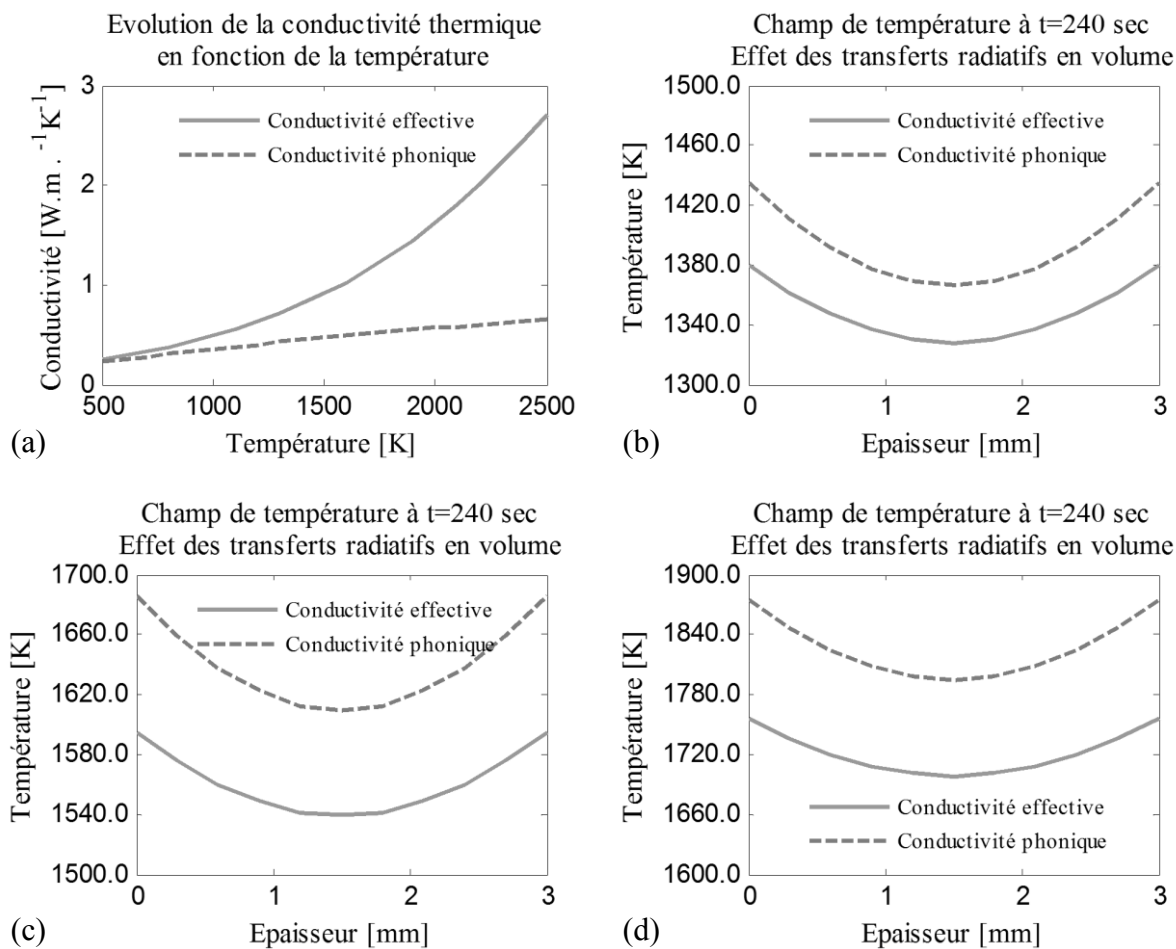


Figure 5 : Conductivité thermique (a) et champ de température pour une puissance laser de 15 (b), 20(c) et 25 W.cm^{-2} (d)

La *figure 6* présente une cartographie de la température en surface de l'ensemble échantillon/porte-échantillon, la puissance laser dans ce cas est de 25 W.cm^{-2} . Bien que le porte échantillon ne soit pas une garde parfaite (la conductivité thermique de la mullite, de $1.1 \text{ W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$, étant presque toujours supérieure à celle de la conductivité phonique de l'échantillon) on peut voir que la température de l'échantillon reste relativement homogène ce qui assure que la mesure de luminance reste peu dépendante de la position du point de mesure.

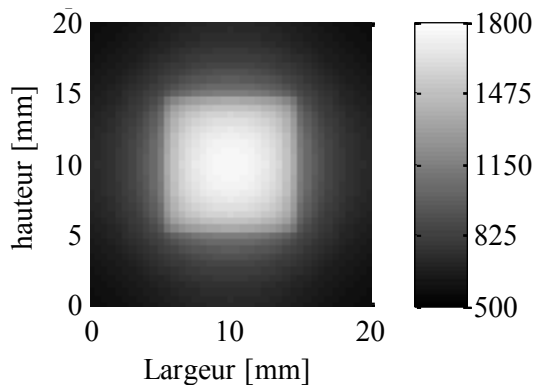


Figure 6 : Cartographie des températures calculées en surface de l'échantillon en utilisant la conductivité effective de Rosseland

5. Conclusion

Une nouvelle méthode d'identification des propriétés radiatives à haute température de milieux participants basée sur des mesures de l'émission radiative est présentée. Elle utilise l'émission spectrale directionnelle mesurée par un système développé spécifiquement pour cette méthode et la compare à celle modélisée par un code Monte Carlo utilisant la théorie de Mie pour calculer les propriétés radiatives. Le champ de température également identifiable par cette méthode a été comparé à la température de surface mesurée par pyrométrie au point de Christiansen et au champ de température calculé par un modèle utilisant l'approximation de Rosseland. Les résultats obtenus par cette méthode en termes de température de surface sont très proches des résultats obtenus par Christiansen. Les prévisions du modèle utilisant l'approximation de Rosseland sont quant à elles plus éloignées. L'effet des transferts radiatifs en volume met bien en évidence un niveau de température plus faible dans l'isolant qu'en conduction pure mais l'approximation de Rosseland ne semble pas en mesure d'en rendre compte de manière significative.

Références

- [1] V. de P. Nicolau, "Identification des propriétés radiatives des matériaux semi transparents diffusants," Thèse de Doctorat, 1994.
- [2] L. M. Moura, "Identification des propriétés radiatives des matériaux semi transparents diffusants en situation de non symétrie azimutale du champ radiatif," Thèse de Doctorat, 1998.
- [3] D. Alfano, L. Scatteia, S. Cantoni, and M. Balat-Pichelin, "Emissivity and catalycity measurements on SiC-coated carbon fibre reinforced silicon carbide composite," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 29, no. 10, pp. 2045–2051, Jul. 2009.
- [4] 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, pp. 1234–1246, Apr. 2011.
- [5] A. Delmas, L. Robin-Carillon, and F. Oelhoffen, "Experimental and Theoretical Characterization of Emission from Ceramics at High Temperature : Investigation on Ytria-Stabilized Zirconia and Alumina," *Int. J. Thermophys.*, vol. 31, pp. 1092–1110, 2010.
- [6] D. De Sousa Meneses, G. Gruener, M. Malki, and P. Echegut, "Causal Voigt profile for modeling reflectivity spectra of glasses," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 351, no. 2, pp. 124–129, Jan. 2005.
- [7] D. De Sousa Meneses, M. Malki, and P. Echegut, "Structure and lattice dynamics of binary lead silicate glasses investigated by infrared spectroscopy," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 352, no. 8, pp. 769–776, Jun. 2006.
- [8] 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, pp. 50–57, Mar. 2013.
- [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, p. 012028, Jun. 2012.
- [10] B. Rousseau, J. F. Brun, D. D. S. Meneses, and P. Echegut, "Temperature Measurement: Christiansen Wavelength and Blackbody Reference," *Int. J. Thermophys.*, vol. 26, no. 4, pp. 1277–1286, Jul. 2005.

Remerciement

Les auteurs remercient le CREE-Saint Gobain pour la fourniture des échantillons nécessaires à l'étude, ainsi que de leurs caractéristiques morphologiques.

Réponses complémentaires aux reviewers

En ce qui concerne les termes « absorbant, émettant », la distinction est faite par rapport aux nombreuses études sur des matériaux absorbant ne prenant pas en compte le terme d'émission propre du matériau ; hors à haute température ce terme est très significatif. C'est d'ailleurs un point important de ce travail par rapport aux précédents.

En ce qui concerne les mesures, c'est bien un flux qui est mesuré par le spectromètre FTIR. Cependant à partir de la fonction d'étalonnage c'est une luminance qui est déterminée et c'est bien cette luminance qui est présentée sur la figure 3 et qui est utilisée par la méthode d'identification présentée.

Enfin pour Rosseland, il faut noter que le coefficient d'extinction moyen de Rosseland du milieu est ici très élevé (230 cm^{-1}) et que malgré cela l'hypothèse de Rosseland, qui par ailleurs fonctionne particulièrement bien pour certains milieux d'épaisseur optique bien plus faible, ne fonctionne pas ici ; probablement car la part de l'absorption dans l'extinction est quasiment nulle entre 2 et 5 μm .

Les autres remarques ont été prises en compte.