

Etude numérique de la solidification rapide d'une lamelle en contact avec un substrat froid.

Fahmi LOGHMARI¹, Cédric LE BOT², Didier DELAUNAY³, Dominique GOBIN¹

¹FAST, Campus Universitaire - Bât.502, 91405 Orsay Cedex

²TREFLE, 16 avenue Pey Berland, 33607, Pessac Cedex

³Laboratoire Thermocinétique de Nantes, rue Christian Pauc, 44306 Nantes

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

Résumé - Le sujet de cet article s'inscrit dans une démarche de modélisation du procédé de projection thermique par plasma pour le dépôt de matériaux métalliques ou céramiques sur des substrats métalliques, dont on souhaite améliorer les propriétés de surface. Dans ce travail, l'enjeu de la modélisation est d'étudier les phénomènes d'impact et d'étalement de gouttelettes liquides sur un substrat, puis leur solidification et leur refroidissement ultérieur.

Nomenclature

C_p	capacité calorifique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	N_{avrami}	nombre d'Avrami
L_f	chaleur latente, $J.kg^{-1}$	f_s	fraction solide
K	fonction cinétique		
T_f	température de fusion, K		
T	Température, K		
S_c	terme source, $J.kg^{-1}$		
RTC	résistance thermique de contact, $m^2.K.W^{-1}$	ρ	masse volumique, $kg.m^{-3}$
t	temps, s	φ	flux de chaleur, $W.m^{-2}$
		λ	conductivité thermique, $W.K^{-1}.m^{-1}$

Symboles grecs

1. Introduction

Lors de l'impact d'une goutte sur un substrat sec, du point de vue de la dynamique (problème isotherme), la compétition entre les différents mécanismes agissant sur la phase d'étalement conduit à des régimes d'étalement très différents: étalement simple (formation de splat), étalement et rebond ou éclatement (splashing). Quand il s'agit d'introduire le transfert de chaleur avec le substrat et plus particulièrement le processus de solidification, le problème devient d'autant plus complexe que les temps caractéristiques ne sont pas assez différents pour pouvoir découpler les deux processus et le nombre de paramètres augmente significativement. De plus les modèles de solidification utilisés jusqu'alors sont des modèles à l'équilibre [1] [2] [3] ne permettant pas de prendre en compte des conditions de solidification rapide.

L'objectif de la présente étude est de déterminer d'un point de vue expérimental la cinétique de solidification d'un métal donné (indium) à partir d'un dispositif basé sur une mesure par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) [4]. A partir d'un échantillon, la mesure du flux de chaleur dégagé lors de la solidification et de la température du matériau permet de proposer un modèle de cinétique de solidification correspondant.

Une fois la cinétique de solidification rapide déterminée, le modèle numérique sera implémenté dans un code numérique pour simuler le refroidissement d'une lamelle déjà posée sur un substrat solide plat. L'étude porte sur l'influence de la résistance thermique de contact entre le splat et la surface ainsi que des paramètres du modèle de la cinétique de solidification rapide.

2. Dispositif expérimental : Principe de la calorimétrie

La solidification rapide a une influence importante sur l'évolution de la température du matériau en cours de changement de phase. En effet, les échanges thermiques sont très rapides et la surfusion peut atteindre des valeurs importantes. La détermination de la cinétique de changement de phase 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 par un dispositif dit Calorimétrie Différentielle à Balayage (DSC) [4]. La DSC est constituée 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 (creuset vide) et l'échantillon à tester, de masse connue (de l'ordre de 10 mg).

Selon ce principe, les 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 grâce à l'acquisition de la température de l'échantillon et du flux de chaleur en fonction du temps [4]. En effet, la DSC fournit le flux de chaleur $dh(t)/dt$ dégagé par la solidification du métal au cours du temps. L'évolution de la chaleur dégagée en fonction du temps $h(t)$ est calculée par une intégration du flux obtenu durant le transfert de chaleur entre le matériau et la DSC. Ensuite, le taux de cristallisation f_s , dont l'évolution obéit à une relation liée à la germination et à la croissance de type : $g(f_s) = (1 - f_s)[- \ln(1 - f_s)]^{(N_{avrami}-1)/N_{avrami}}$, avec N_{avrami} le nombre d'Avrami, qui dépend de la forme des germes solides [5], est calculé en divisant la chaleur dégagée par la chaleur latente totale du matériau. Enfin, l'évolution de la fonction $K(T)$ est estimée par un rapport entre le flux dégagée et la fonction $g(f_s)$:

$$K(T) = 0.03 \exp(2.33(T_f - T)) \quad (1)$$

La cinétique utilisée est une expression proposée par Nakamura [6]. Cette cinétique est basée sur la fonction $K(T)$ pour l'évolution de la fraction solide lors du changement de phase d'un milieu.

3. Le modèle numérique

Le problème de transfert de chaleur et de la solidification rapide du splat sur un substrat est simulé en résolvant l'équation de l'énergie en intégrant le modèle de solidification rapide déterminé grâce à la DSC sous forme d'un terme source S_C :

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + (u \cdot \nabla) T \right) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + S_c \quad (2)$$

Le terme source est exprimé par :

$$S_c = \rho L_f \frac{\partial f_s}{\partial t} = \rho L_f g(f_s) K(T) \quad (3)$$

La résolution numérique est basée sur un maillage fixe à pas constant. L'équation de l'énergie est résolue par un schéma spatial centré, implicite, et un schéma temporel de type Gear du premier ordre. La solution du terme source S_c est déterminée par méthode itérative du point fixe autour de la valeur de la fraction solide f . La résistance thermique est prise en compte par adaptation d'une conductivité équivalente λ_e de part et d'autre de l'interface :

$$\frac{2\Delta x}{\lambda_e} = \frac{\Delta x}{\lambda_1} + RTC + \frac{\Delta x}{\lambda_2} \quad (4)$$

Notre étude porte sur des problèmes d'écoulements diphasiques à phases séparées (lamelle, air). Afin de déterminer la position de chaque phase au cours du temps, une équation d'advection est résolue :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \cdot \nabla C = 0 \quad (5)$$

La variable C , (fonction de phase) définit les zones correspondant au fluide (air) ($C=0$) et celle de la lamelle ($C=1$). La surface libre de la lamelle se situe dans la zone où $0 < C < 1$. Cette équation est résolue par un schéma *VOF* (Volume Of Fluid). Les caractéristiques physiques des milieux sont réactualisées en fonction de cette variable C de manière linéaire :

$$Var = C \cdot Var_{lamelle} + (1 - C) \cdot Var_{air} \quad (6)$$

4. Résultats numériques

Le problème est composé d'un splat d'indium de 1mm d'épaisseur initialement à 240°C déposé sur un substrat en acier inoxydable à 25°C. Le contact entre ces deux milieux est imparfait, il est caractérisé par une résistance thermique de contact RTC (figure 1). Le tableau 1 présente les propriétés des différents matériaux utilisés.

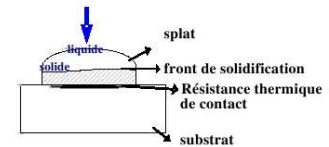


Figure 1 : Définition du problème

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

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

4.1 Effet de la résistance thermique de contact

Tout d'abord, une étude paramétrique du problème est considérée. L'effet de la résistance thermique de contact sur la cinétique du refroidissement du splat est étudié pour des valeurs de la RTC entre $10^{-5} m^2.K/W$ et $10^{-7} m^2.K/W$. Les figures 2 et 3 présentent la température en fonction du temps de trois positions (respectivement à la surface supérieure, inférieure du splat et à la surface du substrat) pour les deux valeurs extrêmes de RTC . On remarque tout d'abord que les trois étapes caractéristiques de la solidification sont bien identifiées. Au début le splat se refroidit rapidement puis sa température reste constante durant la solidification suivie d'une phase de refroidissement du splat déjà solidifié.

Une surfusion de l'ordre de $0,5^{\circ}C$ au niveau de la température de la surface de la lamelle avant sa solidification est remarquée dans la figure 4. En effet, cette température atteint la température de fusion de l'indium ($156,6^{\circ}C$) et continue de diminuer jusqu'à une température critique, puis remonte à la température de fusion où le plateau de solidification commence. Par contre, le degré de surfusion (différence entre température de fusion et température critique) est constant pour les différentes valeurs de RTC utilisées. Le modèle de solidification rapide utilisé dépend des paramètres internes k_{nak} , E_{nak} , et du coefficient d'Avrami N_{avrami} (Si on écrit l'expression de la cinétique comme suit $K(T) = k_{nak} \cdot exp(E_{nak} \cdot \Delta T)$). Pour la température du bas du splat, sa diminution est rapide dans le cas d'une faible valeur de RTC ($10^{-7} m^2.K/W$) et le substrat atteint une température de l'ordre de $150^{\circ}C$ au cours de la

phase de solidification de la lamelle. La température des trois positions atteint une asymptote au bout de 0,3 ms (voir figure 2). La figure 3, montre que pour une RTC élevée ($10^{-5} \text{ m}^2 \text{ K/W}$), la température en bas du splat se refroidit lentement et le taux de refroidissement diminue plus lentement pendant le dégagement de la chaleur latente. De plus, le substrat est moins chauffé et la température des trois positions atteint le plateau de solidification d'équilibre pour une température de 170°C après 0,5 ms (à peu près deux fois le temps).

Pour un couple donné de splat/substrat, ces temps caractéristiques (de solidification et d'équilibre thermique) sont très influencés par la qualité du contact à l'interface. Pour quantifier ces paramètres, la figure 5 présente l'évolution du front de solidification pour différentes valeurs de RTC au niveau des faces inférieure et supérieure du splat. Le modèle de la cinétique de solidification rapide utilisé permet d'avoir une évolution de la fraction solide sous forme exponentielle et pas sous forme d'une transition franche (solidification à l'équilibre). En effet, une lente évolution du front est remarquée dans le cas d'un contact imparfait ($RTC = 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$), alors qu'une évolution rapide est notée dans le cas de contact parfait ($RTC = 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$). On remarque que le bas du splat se solidifie plus rapidement que le haut, pour une même valeur de RTC dû essentiellement au contact direct de la lamelle avec le substrat initialement à 25°C . L'évolution de la fraction solide et liquide totale au niveau du splat, représentée sur la figure 6, confirme la solidification plus rapide de la lamelle pour des faibles RTC .

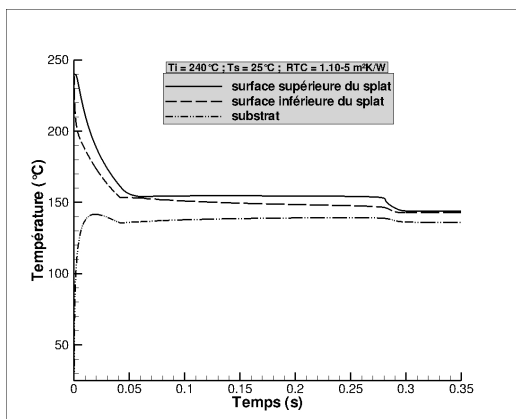


Figure 2: Profil de température du splat et substrat : $RTC = 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ K/W}$

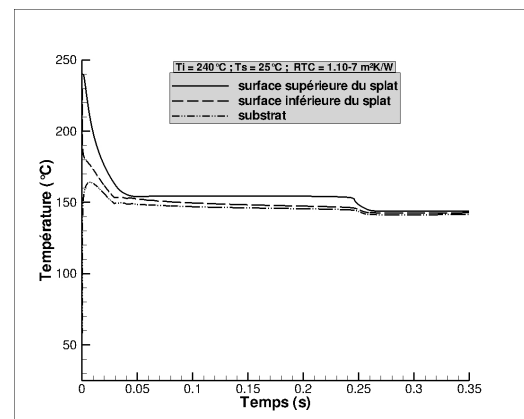


Figure 3: Profil de température du splat et substrat : $RTC = 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ K/W}$

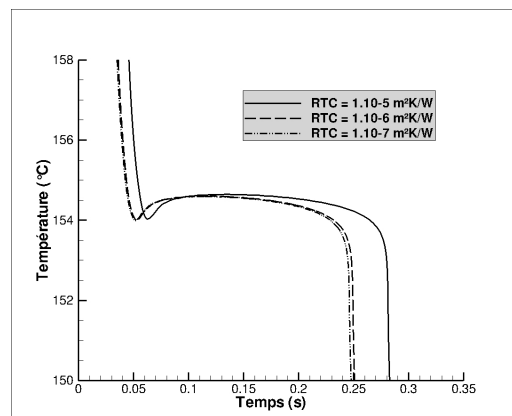


Figure 4 : Zoom sur le profil de température de la surface supérieure du splat avec surfusion pour différentes valeurs de la RTC

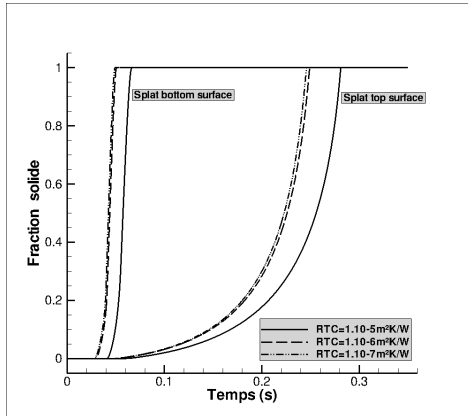


Figure 5: Evolution du front de solidification au niveau de la surface supérieure et inférieure de la lamelle pour différentes valeurs de la RTC

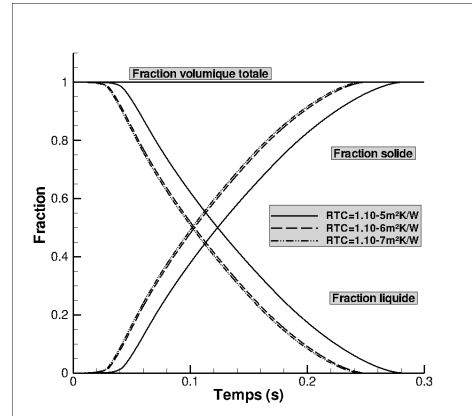


Figure 6: Evolution de la fraction solide et liquide totale au niveau du splat pour différentes valeurs de la RTC

4.2 Effet des paramètres du modèle de solidification rapide

La cinétique proposée pour la solidification rapide de l'indium est sous la forme : $K(T) = k_{nak}.exp(E_{nak}.\Delta T)$. Une étude numérique est réalisée sur le paramètre k_{nak} et le nombre d'Avrami N_{avrami} , pour une même RTC ($10^{-6}m^2K/W$). Les résultats sont présentés sur les figures 7, 8, 9 et 10. On remarque que le paramètre k_{nak} influence le plateau de solidification (figure 7). Plus il est faible et plus la solidification de la lamelle est retardée et apparaît à une température plus basse par rapport à sa température de fusion. Au niveau du front de solidification (figure 8), l'effet de ce paramètre se sent davantage au niveau de la surface supérieure de la lamelle où la solidification est plus lente quand k_{nak} est plus faible.

Le nombre d'Avrami N_{avrami} , influence quant à lui le degré de surfusion (figure 9). La température de surface supérieure du splat descend jusqu'à $1^\circ C$ en dessous de la température de fusion avant de remonter brusquement, pour $N_{avrami} = 7$, alors qu'elle était de $0,5^\circ C$ pour $N_{avrami} = 3$ (germes sous forme de sphère). La largeur du plateau reste par contre constante. Pour une valeur de $N_{avrami} = 1$, la surfusion n'intervient plus. L'évolution du front de solidification (figure 10) dépend aussi de ce nombre notamment au niveau de la surface supérieure de la lamelle où la solidification se fait plus lentement. On remarque par contre que le temps de solidification est le même pour les différentes valeurs de N_{avrami} choisies.

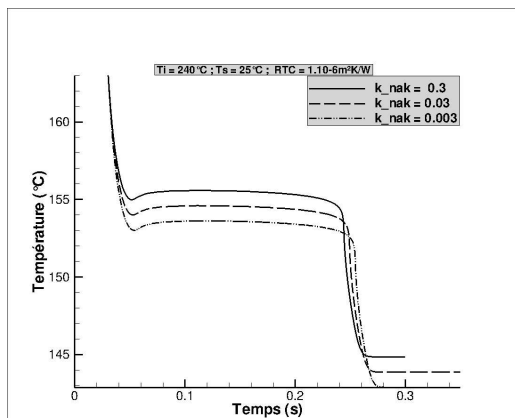


Figure 7: Evolution de la température supérieure de la lamelle pour différentes valeurs de k_{nak}

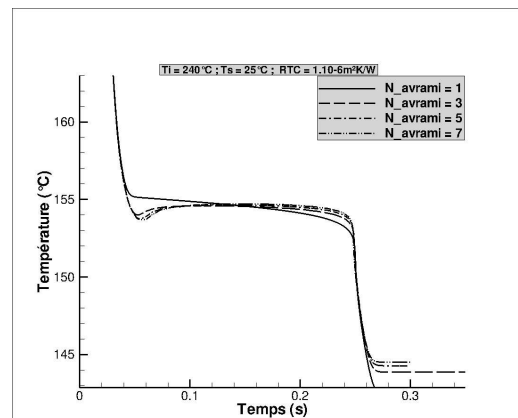


Figure 8: Evolution de la température supérieure de la lamelle pour différentes valeurs du nombre d'Avrami N_{avrami}

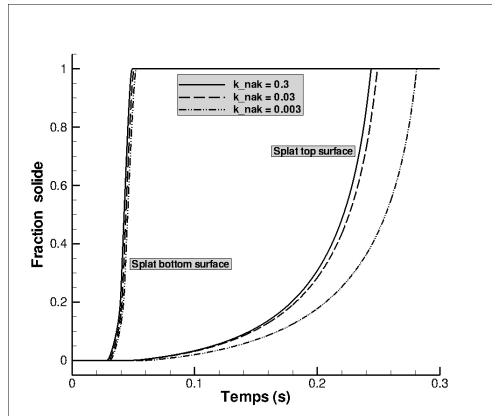


Figure 9: Evolution de la fraction solide au niveau de la surface supérieure et inférieure de la lamelle pour différentes valeurs de k_{nak}

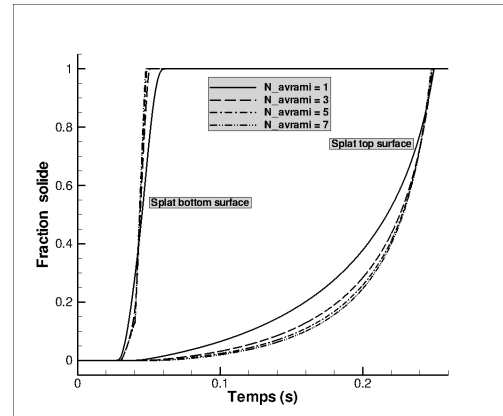


Figure 10: Evolution de la fraction solide au niveau de la surface supérieure et inférieure de la lamelle pour différentes valeurs du nombre d'avrami N_{avrami}

5. Conclusion

Une étude numérique de solidification d'une lamelle en indium en contact imparfait avec un substrat froid en acier est réalisée. Le refroidissement est basé sur un modèle de transfert de chaleur tenant compte du phénomène de changement de phase avec cinétique de solidification rapide déterminé grâce à une DSC.

L'intérêt porte sur l'aspect transitoire de l'étude qui permet d'étudier le refroidissement de la lamelle déposée. Cette étude prédit l'effet de la nature du contact sur la cinétique de solidification du splat et donc sur la morphologie du dépôt formé. Les résultats obtenus permettent de préparer une autre étude en cours de développement pour prendre en compte l'aspect dynamique et thermique en même temps lors d'impact de goutte sur un substrat solide avec surfusion, ainsi que de proposer une loi cinétique plus proche de la réalité pour la relation de $K(T)$.

Références :

- [1] M. Pasandideh-Fard, R. Bhola, S. Chandra and J. Mostaghimi, "Deposition of tin droplets on a steel plate: simulations and experiments," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 1998, Vol. 41, pp 2929-2945.
- [2] D. Poulikakos and J. M. Waldvogel, 'Heat Transfer and Fluid Dynamics in the Process of Spray Deposition,' (1996): 1-73.
- [3] Z. Zhao, D. Poulikakos and J. Fukai, 'Heat transfer and fluid dynamics during the collision of a liquid droplet on a substrate,' /*Int. J. Heat Mass Transfer./ Part I-modelling*. 39. 13 (1996): 2771-2789.
- [4] C. Le Bot, D. Delaunay, Rapid solidification of indium : modeling subcooling. *Materials characterization*, 59 Issue 5 (2008), 519-527
- [5] Avrami, M. Kinetics of phase change I. *J. Chem. Phys.* 7 (1939), 1103-1112.
- [6] 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