Étude de revêtements intumescents sous flux solaire concentré et modélisation numérique

Mathieu GILLET^{1*}, Lætitia PEREZ², Laurent AUTRIQUE³, Jean-Jacques SERRA¹

¹Direction Générale de l'Armement - DGA / DT / TA / MT / MTO 10 route des Fours Solaires - 66120 Font-Romeu ²LTN, UMR 6607 - Ecole polytechnique de l'université de Nantes Rue C. Pauc - BP 50609 - 44306 NANTES Cedex 3 ³LISA, Université d'Angers, 62 avenue Notre Dame du Lac, 49000 Angers *(auteur correspondant : gillet.ghf@wanadoo.fr)

Résumé - La protection des matériels militaires contre les agressions thermiques est une problématique capitale dans le domaine de la défense. Dans ce contexte, les revêtements intumescents offrent une solution efficace et aisée à mettre en œuvre : lorsqu'ils atteignent une température seuil, ces revêtements gonflent pour former une couche isolante performante. Cette étude présente une série d'essais expérimentaux réalisés au moyen d'un four solaire de 45 kW et propose la méthode de la transformation de Landau pour faciliter la modélisation des phénomènes de gonflement.

Nomenclature

- t Temps, s
- x Variable d'espace, m
- y Variable d'espace du domaine transformé, m
- *p* Epaisseur du substrat, *m*
- *e* Epaisseur initiale substrat + peinture, *m*
- C Chaleur spécifique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$
- f(t) Position du front de pyrolyse, m
- g(t) Position du front d'intumescence, m
- \dot{f} Vitesse du front de pyrolyse, *m.s*⁻¹
- \dot{g} Vitesse de gonflement, *m.s⁻¹*
- H_p Enthalpie de vaporisation, $J.kg^{-1}$

Symboles grecs :

- θ Température, K
- λ Conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
- ρ Masse volumique, kg.m⁻³
- ε Emissivité
- κ Coefficient cinétique, s^{-1}
- Indices :
- *i* Indice relatif au substrat (1), à la peinture ablative (2), ou à la couche croissante (3).
- *j* Indice relatif aux coefficients X_j et K_j

1. Introduction

Dans le but de prolonger la durée de vie de matériels militaires pouvant être exposés à des agressions thermiques potentiellement violentes (incendies, explosions, lasers, etc.), la protection par revêtement intumescent représente une solution efficace et avantageuse à plus d'un titre. Le recours à ce type de protection peut en effet être envisagé pour une vaste gamme de matériels, en particulier ceux comportant des matériaux énergétiques sensibles aux élévations de température. Les revêtements intumescents réagissent lorsqu'ils sont soumis à une agression thermique en formant progressivement un système multicouche dont la composition varie suivant les étapes du processus réactif entre une et trois couches stratifiées : une couche neutre de peinture vierge, une couche réactive visqueuse, et une couche charbonneuse solidifiée. Cet ensemble assure l'isolation thermique du substrat durant la phase réactive ainsi qu'en fin de réaction, notamment grâce au caractère poreux de la couche carbonisée, qui lui confère une résistance thermique importante. La composition chimique et le processus réactif sont exposés dans [1], [2], et l'évolution du système est schématisé dans la figure 1 ci-après.



Figure 1 : étapes de la réaction d'intumescence

2. Etude expérimentale des revêtements intumescents

Plusieurs études ont été menées afin d'observer le comportement des peintures intumescentes sous hauts flux et d'évaluer leurs performances, notamment dans un cadre militaire, et sur des substrats en acier [3]. Le moyen d'essai utilisé pour ces études ainsi que pour les essais présentés ci-après est le Four Solaire de 45 kW (FS45) de la Direction Générale pour l'Armement [4]. Afin d'étendre le domaine de l'étude, les performances des peintures intumescentes sur des substrats composites ont été testées.

2.1. Protocole d'essai

Les échantillons utilisés ici sont des plaques de matériau composite kevlar / époxy de 10 cm de côté et d'une épaisseur de 1,1 mm. Ce matériau est notamment utilisé dans le domaine aéronautique pour des applications missiles. Afin de mettre en évidence l'efficacité d'une protection intumescente sur ces matériaux, des tirs consécutifs sont effectués avec une densité de flux de 250 kW.m⁻² sur un échantillon « nu » puis sur un échantillon revêtu de 2 mm de peinture intumescente. Lors des essais, la température de la face arrière est mesurée par pyrométrie dans la bande 8-12 µm en visant une tache de peinture à haute émissivité ($\varepsilon = 0.92$) réalisée au centre de la plaque.

2.2. Résultats des essais

La durée d'éclairement prévue initialement est de 5 minutes. En pratique, nous avons constaté que l'échantillon non protégé a subi une dégradation très importante et a été détruit après environ 50 secondes, sa face arrière atteignant une température supérieure à 620 degrés. En ce qui concerne la plaque protégée, la température maximale atteinte au bout de 5 minutes est inférieure à 240 degrés, et aucune dégradation du substrat n'est à déplorer (figure 2). Le comportement typique d'une couche de peinture intumescente blanche épaisse d'un millimètre exposée à un flux constant de 170 kW.m⁻² (représentatif du rayonnement d'un incendie très violent) est décrit précisément dans [3]. En règle générale, il se caractérise par un important dégagement de fumées dans un premier temps, immédiatement accompagné par le gonflement et le noircissement progressifs des zones les plus chaudes. Si l'éclairement est maintenu, la réaction d'intumescence se poursuit jusqu'à ce que tout le revêtement vierge soit consommé et jusqu'à ce que la couche réactive soit complètement carbonisée.



Figure 2 : températures mesurées sous un flux de 250 kW.m⁻²

Afin de compléter cette étude expérimentale, un modèle mathématique décrivant le comportement d'un substrat revêtu de peinture intumescente sous haut flux a été développé.

3. Modélisation sous haut flux et transformation de Landau

Sur la base d'un modèle mathématique 1D ayant été précédemment développé et validé [5], on propose d'introduire une simplification visant à passer d'un domaine géométrique à frontières mobiles à un domaine à frontières fixes. Le changement de variable dit « transformation de Landau » [6] est utilisé.

3.1. Modèle initial

Les figures 3 et 4 ci-dessous présentent le domaine géométrique du modèle initial, respectivement à t = 0 (avant le début de la réaction d'intumescence) et à t > 0.



Figures 3 et 4 : domaine géométrique pour le problème direct

Comme le montrent les figures ci-dessus, le domaine géométrique se compose d'un substrat d'épaisseur p et d'une couche de peinture d'épaisseur g(0) - p à l'instant initial. Le sous domaine correspondant à la couche « croissante » a une épaisseur quasi nulle à l'instant initial (pour éviter tout problème numérique, on considère en pratique une épaisseur initiale

de 10^{-6} m). La modélisation des transferts thermiques se fait dans chacun des sous-domaines grâce aux équations suivantes :

$$\rho_{1}C_{1}\frac{\partial\theta(x,t)}{\partial t} - \lambda_{1}\Delta\theta(x,t) = 0 \qquad \text{pour } 0 < x < p \tag{1}$$

$$\rho_2 C_2 \frac{\partial \theta(x,t)}{\partial t} - \lambda_2 \Delta \theta(x,t) = -\rho_2 \kappa (\theta(x,t)) H_p \qquad \text{pour } p < x < f(t)$$
⁽²⁾

$$\rho_{3}C_{3}\frac{\partial\theta(x,t)}{\partial t} - \lambda_{3}\Delta\theta(x,t) = 0 \qquad \text{pour } f(t) < x < g(t)$$
(3)

Un ensemble d'équations, détaillé dans [5], permet également de calculer le déplacement des frontières mobiles f(t) et g(t), ainsi que la perte de masse subie par le revêtement durant la réaction. Le coefficient cinétique $\kappa(\theta(x,t))$ est calculé dans la zone de pyrolyse au moyen d'une expression de type Arrhénius.

3.2. Méthode de la transformation de Landau

On procède aux changements de variables suivants :

$$\begin{cases} si \quad x \in [0, p] & y \in [0, p] & y = x & x = y \\ si \quad x \in [p, f(t)] & y \in [p, e] & y = \frac{p(f(t) - x) + e(x - p)}{f(t) - p} & x = \frac{p(e - y) + f(t)(y - p)}{e - p} \\ si \quad x \in [f(t), g(t)] & y \in [e, 2e] & y = 2e + \frac{e(x - g(t))}{g(t) - f(t)} & x = g(t) + \frac{(y - 2e)(g(t) - f(t))}{e} \end{cases}$$
(4)

La géométrie du domaine ainsi modifié devient :



Figure 5 : domaine géométrique à frontières fixes pour le système transformé

On constate ici que l'épaisseur du substrat p reste inchangée, et que l'épaisseur initiale de peinture e représente désormais une frontière permanente. La couche $y \in]p, e[$ correspond au matériau ablatif et ce sont ses propriétés intrinsèques qui vont être modifiées afin de prendre en compte son ablation $x \in]p, f(t)[$. A noter que la transformation de Landau ajoute aussi un terme de diffusion. On propose par la suite de tester la validité de cette approche sur un système d'équations semblable au modèle de comportement évoqué au paragraphe 3.1, mais admettant des solutions exactes.

3.3. Modèle test : problème exact non transformé

Dans ce problème exact, qui ne prend pas en compte les aspects cinétiques de la réaction, on considère que les propriétés thermiques du matériau sont uniformes. Ces simplifications permettent de décrire les transferts thermiques dans le milieu avec cette seule équation :

$$\rho C \frac{\partial \theta(x,t)}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda(\theta) \frac{\partial \theta(x,t)}{\partial x} \right) = 10^6 \left(2 - \left[6.10^6 \right] x^2 - 2t \right)$$
(5)

Le déplacement des frontières mobiles, effectif avant l'application de la transformation de Landau, est décrit par les équations suivantes :

$$\dot{f} = \frac{df(t)}{dt} = -\frac{2t}{300^2} \left(e - p - 10^{-6} \right)$$
(6)

$$\dot{g} = -30\dot{f} \tag{7}$$

3.4. Modèle test : problème exact transformé

L'application de la transformation de Landau entraîne des modifications des dérivées spatiales et temporelles, et implique de traiter les différentes couches du matériau séparément. On obtient donc, pour décrire les échanges de chaleur respectivement dans chacune des trois couches, les équations suivantes :

$$\rho C \frac{\partial \theta(y,t)}{\partial t} - \lambda(\theta) \frac{\partial^2 \theta(y,t)}{\partial y^2} = 10^6 \left(2 - \left(6.10^6 \right) y^2 - 2t \right)$$
(8)

$$\frac{\rho C}{K_{1}(t)(e-p)} \frac{\partial \theta(y,t)}{\partial t} - \lambda(\theta) K_{1}(t)(e-p) \frac{\partial^{2} \theta(y,t)}{\partial y^{2}} = \frac{10^{6}}{K_{1}(t)(e-p)} \Big[2 - (6.10^{6}) X_{1}^{2} - 2t \Big] + \rho C \frac{y-p}{e-p} \dot{f}(t) \frac{\partial \theta(y,t)}{\partial y}$$

$$(9)$$
avec $X_{1} = \frac{p(e-y) + f(t)(y-p)}{e-p}$ et $K_{1}(t) = \frac{1}{f(t)-p}$.

$$\frac{\rho c}{K_{2}(t)e} \frac{\delta c(y,t)}{\partial t} - \lambda(\theta) K_{2}(t)e \frac{\delta c(y,t)}{\partial y^{2}} = \frac{10^{6} \left[2 - (6.10^{6}) X_{1}^{2} - 2t\right]}{K_{2}(t)e} + \rho C K_{2}(t) \left[(X_{2} - f(t)) \dot{g}(t) + (g(t) - X_{2}) \dot{f}(t) \right] \frac{\partial \theta(y,t)}{\partial y}$$
(10)
avec $X_{2} = g(t) + \frac{(y - 2e)(g(t) - f(t))}{e}$ et $K_{2}(t) = \frac{1}{g(t) - f(t)}$.

On remarque qu'en dépit de l'absence de frontière mobile, les paramètres f(t) et g(t) sont toujours calculés par le modèle, étant nécessaires pour l'évaluation des coefficients X_j et K_j .

4. Résultats et validation de l'approche

Les résultats présentés ici sont des comparaisons entre la solution exacte analytique du modèle non transformé évoqué au § 3.3, et les résolutions numériques par éléments finis du modèle non transformé et du modèle transformé présenté au § 3.4.



Figures 6 et 7 : comparaison des solutions exactes / numériques avec Landau

La figure 6 ci-dessus présente les écarts relatifs entre la température calculée numériquement par le modèle transformé et la solution exacte en quatre points pour une simulation de 300 secondes. On constate que l'écart maximal observé est inférieur à 0,4 %.

La figure 7 présente la même comparaison pour les positions des fronts f(t) et g(t), l'erreur maximale est alors d'environ 0,05 %. Ces bons résultats permettent de confirmer la validité de la transformation de Landau dans ce cadre.

5. Conclusions et perspectives

L'ensemble de cette étude a permis de constater l'efficacité du moyen d'essai utilisé pour tester les revêtements intumescents sous hauts flux. Les performances de ces peintures ont été mises en évidence dans le cadre de la protection de matériaux composites. De plus, afin de s'affranchir des frontières mobiles dans la modélisation, la transformation de Landau est proposée et validée sur un problème exact. Cette simplification pourra permettre, à terme, de faciliter la résolution de modèles en géométrie 2D, et le développement d'outils prédictifs opérationnels utilisables sur le terrain.

Références

- [1] S. Duquesne, S. Magnet, C. Jama, R. Delobel, Intumescent paints: fire protective coatings for metallic substrates, *Surface and Coatings Technology*, 180-181 (2004) 302-307.
- [2] S. Rodier, L. Autrique, L. Perez, N. Ramdani, J.J. Serra, Fire protective coatings evaluation : test and modeling based on a nonlinear PDE system, Proceedings in CD-ROM, 17th World Congress IMACS (Scientific Computation Applied Mathematics and Simulation), (2005)
- [3] M. Gillet, L. Autrique, et L. Perez, Mathematical model for intumescent coatings growth: application to fire retardant systems evaluation. *Journal of Physics D : Applied Physics*. vol 40, pp. 883-899, 2007.
- [4] L. Autrique, M. Gillet, L. Perez, Le four solaire principal : un démonstrateur pour l'expertise. *Journées démonstrateurs en Automatique, JESA Angers,* 28 - 29 mars 2006.
- [5] M. Gillet, Analyse de systèmes intumescents sous haut flux : modélisation et identification paramétrique. *Thèse de l'Université d'Angers, laboratoire LISA, ED STIM*, 2009.
- [6] H.G. Landau, Heat conduction in a melting solid, *Quarterly of Applied Mathematics 8 (1)*, pp. 81–95, 1951.

Remerciements

{Les auteurs remercient le Dr. Fabien Chassagne et M. Félix Daguisé du CAEPE.}