

Mesure de la conductivité thermique de verre de silice liquide

Vincent SCHICK^{1*}, Benjamin REMY¹, Alain DEGIOVANNI¹, Johann MEULEMANS² et Pierre LOMBARD²

¹Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA/CNRS)

2, avenue de la Forêt de Haye – TSA 60604 – 54504 Vandœuvre-lès-Nancy Cedex, France

²Saint-Gobain Recherche

39, Quai Lucien Lefranc BP 135– 93303 Aubervilliers Cedex, France

* (auteur correspondant : vincent.schick@univ-lorraine.fr)

Résumé - Une méthode pulsée avec mesure en face arrière est utilisée pour estimer la conductivité thermique phonique de verre de silice fondu de 1100°C à 1500°C. L'échantillon liquide est placé dans une cellule de mesure parallélépipédique. Le modèle utilisé est numérique 3D et prend en compte le transfert couplé conducto-radiatif. Il est implémenté sous FlexPDE et couplé à Matlab pour l'identification des propriétés thermiques du matériau. Des mesures de validation ont tout d'abord été effectuées sur l'eau à température ambiante, suivies d'essais à haute température sur du verre liquide.

Nomenclature

a	Diffusivité thermique, $m^2 s^{-1}$
C_p	Chaleur massique, $J kg^{-1} K^{-1}$
e	Épaisseur, m
k	Conductivité thermique, $W m^{-1} K^{-1}$
h	Coefficient d'échange, $W m^{-2} K^{-1}$
L	Luminance, $W m^{-2} sr^{-1}$
n	Indice de réfraction
T	Température, K
<i>Indices et exposants</i>	
ph	phonique
r	radiative
fav	face avant

Symboles grecs

α	Coefficient de couplage radiatif, m^{-1}
β	Coefficient d'absorption, m^{-1}
ε	Emissivité
ρ	masse volumique, $kg m^{-3}$
σ	Constante de Stefan-Boltzmann, $W m^{-2} K^{-4}$
τ	Épaisseur optique
\emptyset	Diamètre du four, m
<i>Indices et exposants</i>	
o	Corps noir
app	apparente
far	face arrière

1. Mesure des propriétés thermiques d'un liquide à haute température

L'objectif de cette étude est de réaliser la mesure de la conductivité thermique « phonique » du verre à haute température, plus particulièrement lorsque celui-ci est à l'état liquide. Ces travaux doivent permettre à l'industrie verrière de disposer des propriétés thermiques en vue d'optimiser les procédés de fabrication par l'utilisation d'outils numériques. Cette étude se base sur de précédentes études réalisées au LEMTA sur l'estimation des propriétés thermophysiques des fluides [1]. La méthode de mesure est basée sur une méthode pulsée (méthode Flash), une cellule contenant le liquide est éclairée en face avant. L'élévation de température générée par cette excitation est ensuite mesurée en face arrière. L'estimation des propriétés se fait, quant à elle, par méthode inverse. La principale difficulté de cette étude repose sur la modélisation des transferts thermiques au sein de l'échantillon. En effet, une faible viscosité, un faible allongement de la cellule de mesure ou un fort gradient de température peuvent rendre la convection naturelle non négligeable. De plus, à haute température pour un matériau semi-transparent, les transferts de chaleur se font par conduction et par rayonnement. C'est en particulier le cas du verre liquide à haute température. Aussi, sur ce thème, la littérature fait principalement état d'études utilisant la

mesure de conductivité thermique « apparente » [2,3]. Cette dernière n'est pas une grandeur intrinsèque à l'échantillon et dépend fortement de la configuration expérimentale (géométrie de cellule notamment) et des propriétés optiques du matériau analysé. La conductivité phonique est extraite de la valeur « apparente » en utilisant l'approximation de Rosseland basée sur un caractère diffusif du transfert radiatif. Cette dernière hypothèse n'est cependant valable que pour des milieux optiquement épais ($\tau = \beta e \gg 1$). Cette étude présente ainsi une méthode de mesure adaptée à la caractérisation thermique du verre liquide à haute température de 1100°C à 1500°C. Dans un premier on réalise des estimations de conductivité thermique apparente, puis on calcule la composante phonique en utilisant des solutions asymptotiques adapté aux fortes et aux faibles épaisseurs optiques, l'objectifs étant de valider le montage a haute température. Puis on mettra cela en perspective avec un modèle permettant de réaliser cette estimation quelque soit τ .

2. Dispositif expérimental

Une cellule de mesure creuse (voir figure 1) contenant l'échantillon liquide est placée au centre d'un four tubulaire Carbolite TZF18/600 pouvant atteindre une température de 1800°C sous vide, sous gaz neutre ou air ambiant. Un laser CO2 de 130 W délivre une excitation créneau d'une durée variant de 0,1s à 7s. Le profil du faisceau laser est gaussien et son rayon est d'environ 2mm. La mesure se fait sur la face opposée à la face éclairée à l'aide d'une caméra infrarouge FLIR à capteur InSb large bande [1,5 μ m-3,5 μ m] (Voir figure 2). Cette dernière est munie d'un filtre monochromatique centré à 2,35 μ m pour les mesures au delà de 1000°C.

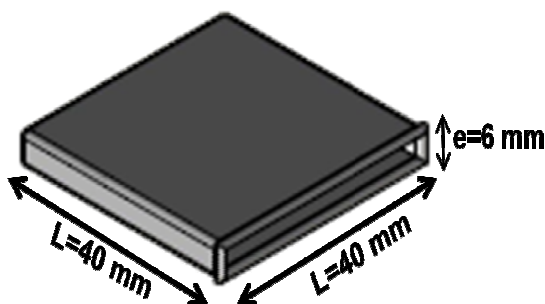


Figure 1 : Cellule de mesure en Platine Rhodié (10%) pour les liquides à haute température

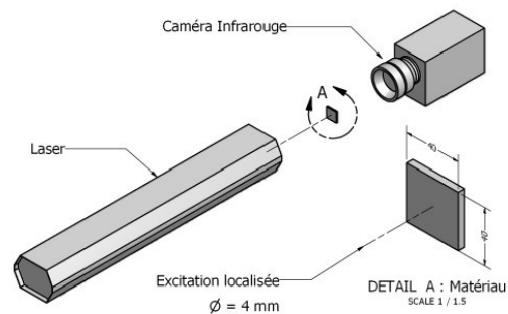


Figure 2 : Représentation simplifiée du dispositif expérimental de mesure des liquides à haute température

La cellule de mesure est un creuset parallélépipédique de 40*40*6mm (voir figure 1), ouvert sur le dessus, l'épaisseur des parois est de 1mm, ce qui laisse un espace interne de 4mm d'épaisseur pour le liquide. Ces dimensions sont choisies, d'une part pour l'épaisseur e afin d'avoir la meilleure estimation possible des propriétés thermiques et d'autre part pour la longueur L qui est limitée par le diamètre du four (\varnothing 75mm). L'idéal étant d'avoir le rapport L/e le plus important possible pour éviter les phénomènes de convection naturelle (voir partie 3). La cellule doit être stable chimiquement vis-à-vis du verre et de l'atmosphère et ne doit pas se déformer à haute température, c'est pourquoi elle est constituée de plaques de Platine Rhodié à 10%, assemblées par soudure laser afin d'assurer un bon contact thermique. A noter, la présence sur le pourtour supérieur de la cellule d'un fil de 1,5mm de diamètre afin d'éviter le débordement du fluide par capillarité à haute température. Enfin, du fait de la faible émissivité du Platine Rhodié à haute température [4] et pour maximiser l'absorption du

faisceau laser, cette cellule est recouverte d'une couche de Titane de 0,5 à 1 μm d'épaisseur qui passive en TiO_2 lors de la mesure à haute température.

3. Modélisation des phénomènes de transfert

Le choix de la géométrie de la cellule a été réalisé à partir d'une précédente étude [1] sur un fluide confiné entre deux parois. Une étude de sensibilité basée sur un modèle purement conductif unidimensionnel, montre que l'on peut estimer de manière décorrélée la conductivité thermique, la diffusivité thermique, les pertes et le flux surfacique reçu en face avant. Cette étude montre aussi que pour minimiser la variance sur les paramètres à identifier, l'épaisseur optimale de paroi/fluide/paroi doit être aux alentours de 1/4/1mm, quel que soit le fluide ou le métal constituant le creuset.

Cependant, comme le montre la figure 3, la géométrie de la cellule entraîne un court-circuit thermique du fluide par les parois latérales. De plus, la cellule est ouverte sur le dessus, on peut donc difficilement envisager une modélisation analytique des transferts de chaleur par conduction. C'est pourquoi ces transferts seront simulés numériquement avec une géométrie 3D. Une précédente étude de sensibilité réalisée au LEMTA [5] sur un modèle numérique 3D implémenté sous FlexPDE, montre cependant que l'on peut identifier indépendamment la conductivité thermique, la diffusivité thermique, les pertes et le flux surfacique reçu en face avant. C'est ce modèle numérique qui est utilisé ici pour simuler les transferts de chaleur par conduction au sein de la cellule de mesure.

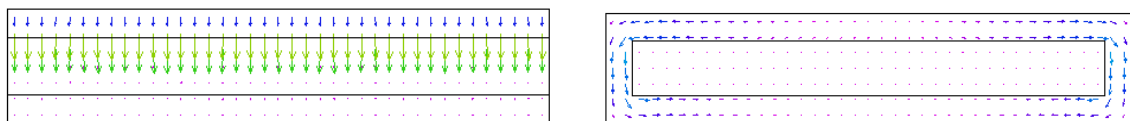


Figure 3 : Visualisation du court circuit thermique (vecteur du flux de chaleur) au sein de la cellule (40*40*6mm) de mesure sans parois latérales (1mm) et avec parois latérales - Simulations sous FlexPDE[®] avec une géométrie cartésienne 2D

Concernant la prise en compte de la convection naturelle dans le modèle, il convient de noter que le rapport L/e est d'environ 10. Cette valeur est suffisamment faible pour ne pas négliger la convection naturelle a priori. Cependant les verres fondus dans la cellule (voir tableau 1) sont visqueux et possèdent des nombres de Rayleigh faibles ($Ra < 200$) au cours de l'expérience (on considère ici $e=4\text{mm}$ et $\Delta T= 10^\circ\text{C}$). La convection naturelle peut donc être négligée pour le verre mais pas pour l'eau ou l'huile [6].

$\Delta T= 10^\circ\text{C}$, $e = 4\text{mm}$	Ra	Pr
Eau (25°C)	9000	7
Huile (Alcatel 100) (25°C)	1000	720
Verre fondu (1200-1600°C)	0,04-0,18	8000-2000

Tableau 1 : Nombre de Prandtl et de Rayleigh pour différents fluides types

Le verre est un matériau semi-transparent dans le proche et moyen infrarouge. A haute température, le rayonnement thermique joue un rôle prépondérant dans les transferts de chaleur au sein de l'échantillon liquide. Le principal phénomène de couplage intervenant au cours de l'expérience est donc le couplage conducto-radiatif. On souhaite le prendre en

compte dans le modèle utilisé pour l'inversion en résolvant de manière combinée l'équation de la chaleur (eq. 1) en régime transitoire et l'équation du transfert radiatif (ETR) pour un milieu gris émettant-absorbant. Le champ de température T est couplé à la luminance $L(s, \Omega)$ via la prise en terme source de la divergence du flux radiatif dans l'ETR (eq. 2).

- "Equation de la chaleur":

$$\nabla \cdot (k \nabla T) - \nabla \cdot [\mathbf{q}_r(s)] = \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} \quad \text{avec : } \nabla \cdot \mathbf{q}_r(s) = 4\pi\beta \left[n^2 \frac{\sigma T^4(s)}{\pi} - L(s) \right] \quad (1)$$

- "Equation du transfert radiatif " (E.T.R) dans un milieu semi transparent gris absorbant émettant:

$$\frac{dL(s, \Omega)}{ds} = -\beta L(s, \Omega) + \beta L_o[T(s)] \quad \text{ou} \quad \sum_{i=1}^3 l_i \frac{\partial L(s, \Omega)}{\partial x_i} = -\beta L(s, \Omega) + \beta L_o[T(s)] \quad (2)$$

β est le coefficient d'absorption et $L_o[T(s)]$ est la luminance du milieu à la température locale du milieu, (donnée par la loi de Planck: $L_o(s) = n^2 \sigma T^4 / \pi$.) et l_i représente les cosinus directeurs $\{l_1, l_2, l_3\} = \{\cos\theta, \sin\theta \cos\varphi, \sin\theta \sin\varphi\}$ dans les 3 directions \mathbf{x}_1 , \mathbf{x}_2 et \mathbf{x}_3 . Le terme de gauche de l'ETR représente le gradient de l'intensité dans la direction Ω . Les deux termes de droite décrivent respectivement les variations d'intensité dues aux phénomènes d'absorption et d'émission. Pour résoudre l'ETR, on souhaite utiliser la méthode PN [7]. On réalise l'approximation suivante : utilisant on utilise des harmoniques sphériques pour décrire les variations spatiales et angulaires de l'intensité radiative. En tronquant au premier ordre, l'intensité directionnelle radiative peut s'écrire comme la somme de ses différents moments :

$$L(s, \theta, \varphi) = \frac{1}{4\pi} \left(L^{(0)} + 3L^{(1)} \cos\theta + 3L^{(2)} \sin\theta \cos\varphi + 3L^{(3)} \sin\theta \sin\varphi \right) \quad (3)$$

Les variations angulaires sont données par des polynômes de Legendre et les inconnues du problème $L^{(0)}$, $L^{(1)}$, $L^{(2)}$ and $L^{(3)}$ qui représentent respectivement la luminance moyenne (moment d'ordre zéro de l'intensité) et les composantes radiatives du flux en \mathbf{x}_1 , \mathbf{x}_2 et \mathbf{x}_3 (moments du premier ordre) dépendent seulement des coordonnées \mathbf{x}_T .

$$L^{(0)} = \int_{\Omega=0}^{4\pi} L(s, \Omega) d\Omega \quad \text{et} \quad L^{(i)} = \int_{\Omega=0}^{4\pi} l_i L(s, \Omega) d\Omega \quad (4)$$

Les inconnues primaires correspondant à $L^{(0)}$ [7] peuvent être obtenues indépendamment des moments du premier ordre $L^{(1)}$, $L^{(2)}$, et $L^{(3)}$ en résolvant l'équation différentielle du deuxième ordre en régime permanent et en 3D suivante :

$$\frac{1}{3\beta} \left(\frac{\partial^2 L^{(0)}}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 L^{(0)}}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2 L^{(0)}}{\partial x_3^2} \right) = -(4\pi\beta L_o(T) - \kappa L^{(0)}) \quad (5)$$

Si besoin, les inconnues secondaire $L^{(1)}$, $L^{(2)}$, et $L^{(3)}$ (composantes du flux radiatif) peuvent être obtenue à partir de $L^{(0)}$, en utilisant les équations du premier ordre suivantes:

$$L^{(i)} = -\frac{1}{3\beta} \frac{\partial L^{(0)}}{\partial x_i} \quad (i = 1, 2 \text{ ou } 3) \quad (6)$$

Les conditions radiatives pures sont données par le terme de Marshak aux conditions limites [8]. (voir références [5,6] pour comparaison de différents modèles de prise en compte de ces couplages dans le cas de la méthode Flash). Ce modèle est implémenté sous FlexPDE et doit permettre de réaliser l'identification de la conductivité thermique pour des verres quelle que soit l'épaisseur optique $\tau = \beta.e$

Ce modèle est cependant lourd et peut poser des problèmes de convergence numérique. Aussi dans certaines conditions, pour des milieux de faible ou de forte épaisseur optique, on peut utiliser des modèles encore plus simplifiés.

Concernant les milieux à fortes épaisseurs optiques, on peut utiliser une approximation de Rosseland modifiée dans laquelle on assimile les transferts radiatifs à un phénomène de diffusion pure. La conductivité thermique « apparente » k_{app} est identifiée via un modèle purement conductif 3D sous FlexPDE. Cette grandeur est la somme de la conductivité thermique phonique k_{ph} et de la conductivité radiative k_r , pour extraire cette dernière du terme identifié on utilise l'approximation de Rosseland-Deissler [9]:

$$k_r = \frac{4n^2 \sigma T_{ext}^3 e}{\frac{1}{\epsilon_1} + \frac{1}{\epsilon_2} - 1 + \frac{3}{4} \beta e} \quad k_{app} = k_r + k_{ph} \quad (7)$$

Ce modèle nécessite cependant de bien connaître l'émissivité ϵ des parois et ne prend pas en compte le saut de température aux parois. Mais malgré cela, il permet de calculer k_r , car l'épaisseur de fluide est suffisante.

Concernant les milieux de faibles épaisseurs optiques ($\tau \ll 1$). On peut considérer qu'ils sont suffisamment peu absorbants pour découpler le transfert conductif du transfert radiatif, ce dernier se faisant sur des échelles de temps beaucoup plus courte. On peut utiliser un modèle avec échange direct du flux radiatif entre la face avant et la face arrière en parallèle du flux conductif [10] (voir figure 4). Ce modèle n'est cependant que valable pour de très faible épaisseur optique, et pour certaine géométrie, notamment celle-ci, avec face avant et face arrière réfléchissante.

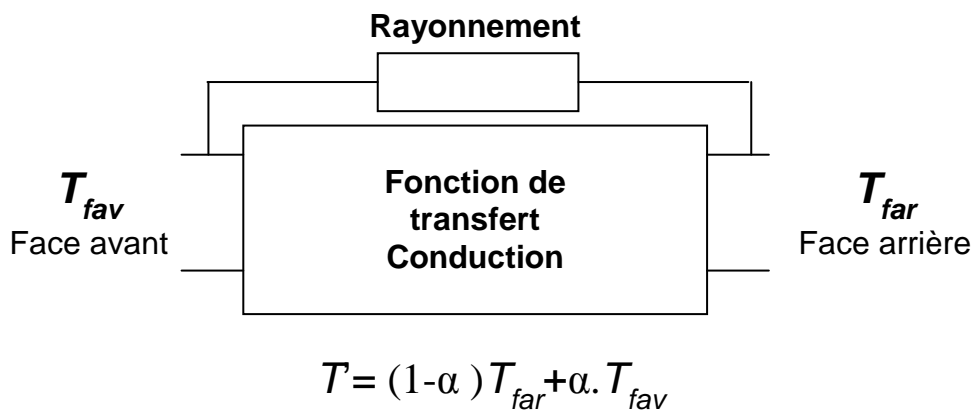


Figure 4 : Schématisation du modèle de couplage conducto-radiatif pour des milieux optiquement minces avec α le coefficient de couplage conducto-radiatif.

4. Résultat

Afin de valider le modèle conductif 3D et la géométrie de la cellule de mesure, des essais sont réalisés à température ambiante sur un fluide de référence et sur un banc de mesure simplifié. Le projecteur halogène couvrant toute la surface de la face éclairée de la cellule en Pt/Rh10 et que la caméra InSb est sensible à la plage spectrale 3,5-5,5 μ m. Le fluide de référence est l'eau gélifiée (ajout de 0,15% de Carbopol® en masse), car ce fluide présente une forte viscosité (fort Ra) tout en conservant les propriétés thermiques de l'eau pure. Enfin, l'eau étant opaque au rayonnement infrarouge, le transfert radiatif au sein de l'échantillon est négligeable durant la mesure. La cellule de mesure est peinte en noir pour maximiser le rapport signal sur bruit. L'excitation est un créneau de 0,9s. Deux paramètres sont estimés : la conductivité thermique k_{ph} et les pertes h . Quatre essais sont réalisés (voir figure 5 et tableau 3). La valeur de $\rho.C_p$ est ici fixée pour améliorer la précision de l'estimation. On note une élévation moyenne de température de 0,5°C en face arrière, les propriétés thermiques peuvent donc être considérées constantes au cours de la mesure. Pour réaliser l'inversion, le modèle implémenté sous FlexPDE est couplé avec un algorithme de Levenberg-Marquard sous Matlab. Les résultats ainsi obtenus sont conformes à ceux donnés par la littérature [11]. La mesure donne 0,615 W/m/K contre 0,607 W/m/K à 25°C, soit un écart de 1,3%.

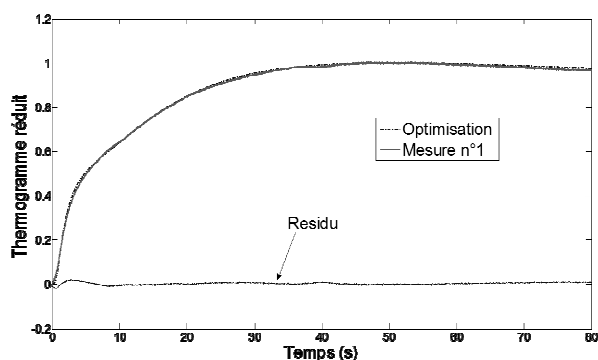


Figure 5 : Identification de k_{ph} et de h pour l'eau gélifiée – Thermogramme expérimental.

k_{ph} (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	h (W.m ⁻² K ⁻¹)
0.629	9.862
0.613	12.642
0.623	8.215
0.596	8.541
Moyenne (± écart-type)	
0.615 (±0,015)	9.815(±2,015)

Tableau 2 : Estimation de k_{ph} et de h pour l'eau gélifiée à température ambiante (4 essais)

Des essais sont par la suite menés à haute température (de 1300°C à 1500°C) avec le dispositif présenté en partie 2 et une excitation créneau de 6,8s. Pour des milieux optiquement épais ($\tau > 5$), en appliquant un modèle numérique 3D purement diffusif, on parvient à un résultat (voir figure 6) en identifiant k_{app} et h . Le bruit de mesure ici est lié au refroidissement du capteur de la caméra par le moteur Stirling. Mais pour des impératifs de confidentialité ces résultats ne peuvent être présentés ici.

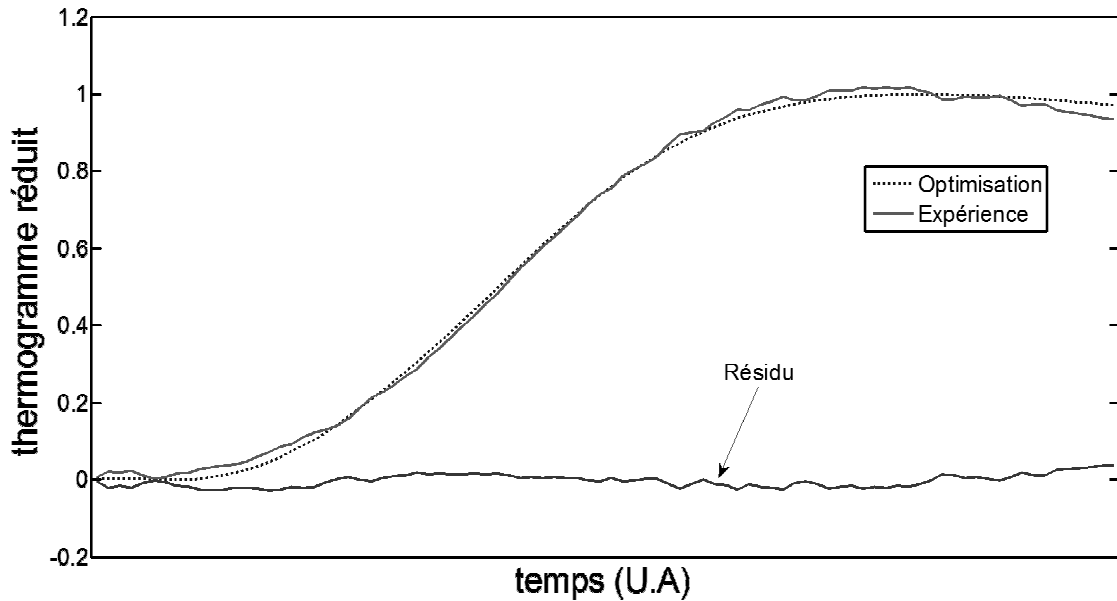


Figure 6 : Identification de k_{app} et de h pour un milieu à forte épaisseur optique à 1300°C

A partir de la conductivité thermique apparente identifiée, du modèle de Deissler, et en connaissant le coefficient d'absorption du verre et son indice de réfraction ainsi que l'émissivité du platine, on peut donner une estimation de la conductivité thermique phonique de ce type de verre fondu. Des estimations de conductivité thermique phonique sont aussi réalisées sur des milieux optiquement minces ($\tau \ll 1$) à partir du modèle présenté en figure 4 et implémenté sous FlexPDE (voir figure 7).

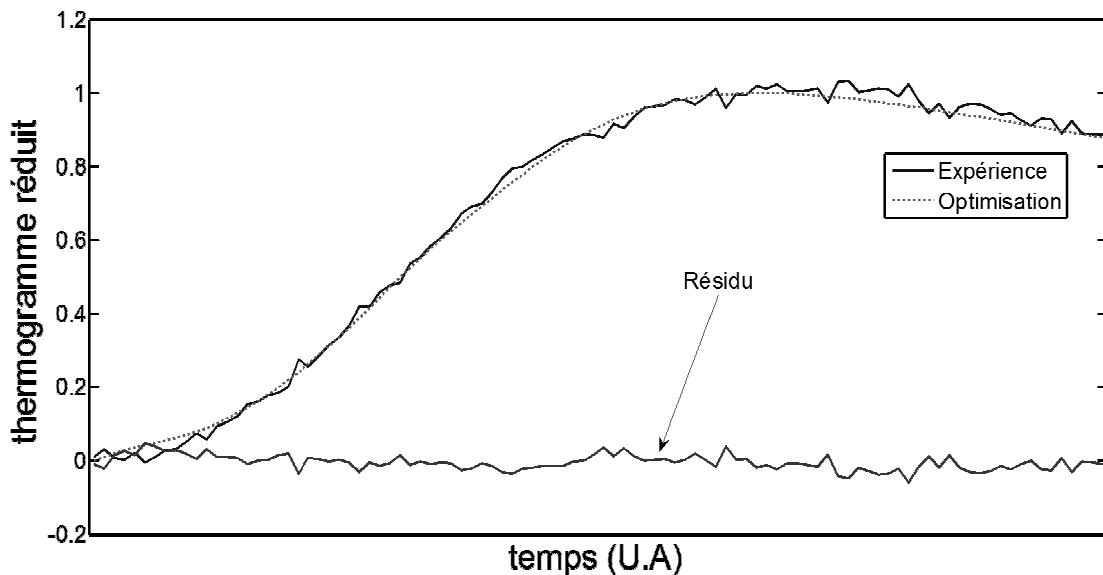


Figure 7 : Identification de k_{app} , de h et de α pour un milieu à forte épaisseur optique à 1300°C

On identifie 3 paramètres : la conductivité thermique phonique k_{ph} , les pertes h et le coefficient de pondération du couplage conducto-radiatif α . Une précédente étude avait estimé pour ce même verre une diffusivité de $4,91 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ à 600°C (phase solide) [12], la méthode présentée ici fournit une diffusivité de $4,95 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ à 600°C . La différence entre expérience et optimisation pour les deux cas présentés ci-dessus montre que le choix des modèles pour des verres à forte et faible épaisseur optique est cohérent.

5. Conclusion

Ces travaux ont permis de mettre au point un dispositif expérimental de mesure de la conductivité thermique phonique du verre liquide à haute température, notamment via la conception d'une cellule de mesure adaptée à la problématique. Des modèles simples adaptés à des cas assez particuliers fournissent des résultats permettant de valider la méthode à haute température sur des liquides semi-transparents.

Cependant, pour que l'étude soit complète, il faut encore réaliser l'implémentation numérique d'un modèle réalisant le couplage conducto radiatif en P1 afin de pouvoir identifier la conductivité thermique phonique d'un verre d'épaisseur optique de l'ordre de $\tau \approx 1$. L'objectif final de ce travail est de parvenir à un modèle numérique pour estimer la conductivité thermique phonique quelles que soient les propriétés optiques de l'échantillon.

Références

- [1] B. Remy et A. Degiovanni, Parameters estimation and measurement of thermophysical Properties of liquids, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48, (2005), 4103-4120
- [2] J. Endrys, A. Blazek et J. Ederova, Experimental determination of the effective thermal conductivity of glass by steady-state method, *Glastechnische Berichte*, 66-6-7, (1993), 151-157
- [3] J. Van den Brink et M. Rongen, Thermal conductivity of glasses at high temperatures, *Thermal Conduction* 22, (1994), 70-79
- [4] G. Neuer et G. Jaroma-Weiland, Spectral and Total Emissivity of High-Temperature Materials, *International Journal of Thermophysics*, 19-3, (1998), 917-929
- [5] Schick, V.; Remy, B.; Degiovanni, A.; Demeurie, F.; Meulemans, J. & Lombard, P., 'Measurement of Thermal Conductivity of Liquids at High Temperature', *Journal of Physics: Conference Series* 395-1,(2012), 012078.
- [6] B. Remy et Degiovanni A, Measurements of the Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity of Liquids. Part II: Convective and Radiative Effects, *International Journal of Thermophysics*, 27-3,(2006), 949-969
- [7] H.Q. N'Guyen, B. Remy, and A. Degiovanni, Fast and accurate simplified radiative model for modeling coupled heat transfers in glass forming process, *Advanced Materials Research*, 39-40, (2008) 575-578
- [8] R.E. Marshak, Note on the spherical harmonics method as applied to the Milne problem for a sphere, *Physical. Review*,71,(1947), 443-446.
- [9] Howell, J. R.; Siegel, R. & Menguc, M. P. (2010), *Thermal Radiation Heat Transfer*, CRC Press, Inc., Boca Raton, FL.
- [10] S. André, B. Remy, D. Maillet et A. Degiovanni; Public Modulated photothermal radiometry applied to semitransparent samples: Models and experiments, *Journal of Applied Physics*, 96-5, (2004), 2566-2575
- [11] Liley P, Thermophysical properties of ice/water/steam from -20°C to 50°C, *International Journal of Mechanical Engineering Education*, 32-4, 45-50
- [12] S. Andre et A. Degiovanni , A theoretical study of the transient coupled conduction and radiation heat transfer in glass: phonic diffusivity measurements by the flash technique, *International Journal of Heat and Mass Transfer*,38-18,(1995), 3401-3412