



HAL
open science

Quantification et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur dans des couches poreuses épaisses de céramiques élaborées par projection thermique

Ghislain Montavon, Rodolphe Bolot, Guy Antou

► **To cite this version:**

Ghislain Montavon, Rodolphe Bolot, Guy Antou. Quantification et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur dans des couches poreuses épaisses de céramiques élaborées par projection thermique. CFM 2007 - 18ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2007, Grenoble, France. hal-03361113

HAL Id: hal-03361113

<https://hal.science/hal-03361113>

Submitted on 1 Oct 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Transferts de masse et de chaleur dans des couches poreuses épaisses de céramiques élaborées par projection thermique

Guy Antou¹, Rodolphe Bolot², Ghislain Montavon³

¹ SPCTS – UMR CNRS 6638, Ecole Nationale Supérieure des Céramiques Industrielles,
43-73 avenue Albert Thomas, 87065 Limoges cedex, France

² LERMPS – EA 3316, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard,
site de Sévenans, 90010 Belfort cedex, France

³ SPCTS – UMR CNRS 6638, Faculté des Sciences, Université de Limoges,
123 avenue Albert Thomas, 87060 Limoges cedex, France
ghislain.montavon@unilim.fr

Résumé :

Les mécanismes de formation de couches épaisses de céramiques élaborées par projection thermique ainsi que la relaxation des contraintes résiduelles conduisent à une architecture des couches composée d'une matrice céramique et d'un réseau de porosités micrométriques. Ce réseau influence les caractéristiques physicochimiques et thermiques des couches épaisses. Ainsi, il va agir comme des résistances thermiques locales et modifier la conductivité thermique apparente de la couche. D'autre part, des espèces pourront percoler au sein de la couche jusqu'à atteindre le substrat et réagir chimiquement, occasionnant des dommages. Deux méthodes complémentaires ont été développées pour quantifier ces caractéristiques. Le transfert de masse au sein de la couche est adressé par spectroscopie d'impédance pour la quantification de sa connectivité et le transfert de chaleur par modélisation numérique bidimensionnelle.

Abstract :

The formation mechanisms of thick thermal-sprayed layers as well as the residual stress relaxation lead to a coating layer made of a ceramic matrix and a network of micrometric pores. This network very significantly influences the physicochemical and mechanical properties of the coating. It acts as local thermal resistances and hence modifies the apparent thermal conductivity of the layer. Besides, due to its connected character, reactive species can percolate through the layer to the substrate and react from a chemical point of view, inducing damages which may affect the life time of the coating. Two complementary methodologies were developed and implemented to quantify those two characteristics. Mass transfer through the layer was addressed by electrochemical impedance spectroscopy to quantify the coating connectivity. Heat transfer was quantified by 2D numerical simulation.

Mots-clefs :

conductivité thermique apparente, taux de connectivité, couche céramique

1 Introduction

Les couches épaisses élaborées par projection thermique présentent des architectures complexes résultant de l'empilement de lamelles individuelles produites par l'impact, l'écrasement et la solidification de particules fondues (ou partiellement fondues) sur la surface à revêtir, Antou *et al.* (2006), Fauchais (2004). L'architecture générique de ces couches présente : (i) un empilement de lamelles, appelé la matrice ; (ii) des pores globulaires (des cavités) ; (iii) des délaminations (décohésions interlamellaires) ; (iv) des fissures (décohésions intralamellaires) ; (v) des particules sphériques enchâssées dans la matrice ; (vi) des pores de géométrie toroidale localisés à la base des particules sphériques. La combinaison de ces différents faciès forme un réseau tridimensionnel de pores interconnectés qui influence

considérablement les caractéristiques physicochimiques et thermiques des couches. Ainsi, ce réseau agit comme des résistances thermiques locales, Poulain (1999). Par ailleurs, des espèces pourront percoler dans les réseaux connectés jusqu'au substrat où elles pourront réagir, occasionnant alors des dommages pénalisants, Evans *et al.* (2001).

2 Exemple considéré : couches épaisses d'alumine-rutile (Al_2O_3 -13 TiO_2)

Une poudre d'alumine et de rutile (13% en masse) a été utilisée pour élaborer des couches de 250 μm d'épaisseur moyenne sur des substrats en acier à carbone (AFNOR 2C22) préalablement préparés (dégraissage et projetage). Les couches d'alumine-rutile (Figure 1.a) ont été élaborées par projection plasma à pression atmosphérique avec plusieurs familles de paramètres énergétiques (Tableau 1), les autres paramètres opératoires restant constants. Des méthodes d'analyse d'image couplées à des protocoles stéréologiques, Montavon *et al.* (1998), Russ *et al.* (1999) ont été employées sur des coupes transversales afin d'estimer la fraction volumique de rutile et l'architecture du réseau de pores. La Figure 1.b illustre une image traitée typique servant de base à ces analyses. Pour chaque famille de paramètres opératoires, quinze images (résultat issu de la détermination du volume élémentaire représentatif) aléatoirement réparties dans la structure ont été analysées, les résultats étant moyennés dans un second temps. Les effets globaux suivants sont identifiés (Tableau 2) : **(i)** lorsque l'intensité du courant d'arc augmente, les taux de porosité et de rutile diminuent globalement (augmentation de la puissance utile dans le jet de plasma, Janisson *et al.* (1999)) ; **(ii)** lorsque la fraction d'hydrogène augmente, le taux global de porosité augmente globalement et le taux volumique de rutile diminue (augmentation drastique du transfert de chaleur aux particules en vol, favorisant les projections périphériques de matière à l'écrasement, Fauchais *et al.* (2006) et vaporisation préférentielle en vol du rutile en raison de ses propriétés physiques ($\kappa_{\text{TiO}_2}/\kappa_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 0,35$ et $T_{\text{vapTiO}_2}/T_{\text{vapAl}_2\text{O}_3} = 0,84$) ; **(iii)** lorsque le débit total de gaz plasmagène augmente, le taux global de porosité diminue et le taux de rutile augmente (augmentation de la quantité de mouvement transférée aux particules en vol et diminution de leur temps de séjour dans le jet de plasma, Janisson *et al.* (1999)).

3 Transferts de chaleur au sein des couches : conductivité apparente

Le logiciel TS2C, Bolot *et al.* (2005, 2006) utilise directement l'image traitée d'un dépôt comme support de maillage. Chaque pixel de l'image est considéré comme un volume d'intégration de l'équation de conduction de la chaleur en régime permanent et se voit affecté d'une valeur de conductivité thermique spécifique. Une équation linéaire traduisant la conservation du flux thermique dans un pixel est alors dérivée pour chacun d'entre eux et un système d'une taille correspondant au nombre total de pixels de l'image est formé. On applique enfin un gradient de température puis on résout le système formé à l'aide d'une méthode itérative de résolution de type LSOR (Line Successive Over Relaxation) avec un coefficient de relaxation s'approchant de 2 par valeur inférieure. On déduit alors une valeur de la conductivité thermique apparente du dépôt à partir du flux calculé traversant la structure. Ainsi le ratio de la conductivité thermique apparente relativement à celle de la matrice est égal au ratio de flux pour une même différence de température imposée. Le Tableau 3 présente les valeurs de conductivités thermiques considérées (température de référence = 27°C, Touloukian (1970)). La Figure 2 présente une image typique de la distribution des différentes phases dans une coupe d'un dépôt d'alumine-rutile et le champ de flux thermique correspondant. La Figure 3 illustre la décroissance de la conductivité apparente des couches avec l'augmentation de la fraction de la phase rutile en raison d'une conductivité thermique inférieure pour la phase rutile. La Figure 4 présente l'évolution de la conductivité apparente des couches pour différentes architectures

poreuses. D'une manière générale, une augmentation du taux de porosité conduit à une augmentation de la conductivité thermique apparente. Il est toutefois évident que l'architecture du réseau joue un rôle prépondérant et que la présence de fissures interlamellaires modifie singulièrement la conductivité thermique apparente.

TABLEAU 1 - Paramètres énergétiques utilisés pour élaborer les couches d'alumine-rutile.

tests	intensité du courant d'arc [A]	débit d'hydrogène H ₂		débit d'argon Ar		H ₂ +Ar		H ₂ /Ar [%]
		volumique [Nl.min ⁻¹]	massique [kg.s ⁻¹]	volumique [Nl.min ⁻¹]	massique [kg.s ⁻¹]	volumique [Nl.min ⁻¹]	massique [kg.s ⁻¹]	
1	530	10.8	1.61.10 ⁻³	43.2	1.29.10 ⁻³	54	1.30.10 ⁻³	25
2	350	10.8	1.61.10 ⁻³	43.2	1.29.10 ⁻³	54	1.30.10 ⁻³	25
3	700	10.8	1.61.10 ⁻³	43.2	1.29.10 ⁻³	54	1.30.10 ⁻³	25
4	530	4.9	0.73.10 ⁻³	49.1	1.46.10 ⁻³	54	1.47.10 ⁻³	10
5	530	13.4	1.99.10 ⁻³	40.6	1.21.10 ⁻³	54	1.23.10 ⁻³	33
6	530	8.0	1.19.10 ⁻³	32.0	0.10.10 ⁻³	40	0.96.10 ⁻³	25
7	530	14.0	2.08.10 ⁻³	56.0	1.67.10 ⁻³	70	1.69.10 ⁻³	25

La famille de paramètres #1 correspond aux paramètres considérés comme standard.

TABLEAU 2 - Quelques caractéristiques des couches d'alumine et de rutile.

test	toutes porosités [%]			fissures et délaminations [%]		rutile [% vol.]
	porosité totale [%]	porosité globulaire [%]	fissures et délaminations [%]	interlamellaires	intralamellaires	
1	6,3 ±0,3	1,5 ±0,1	4,8 ±0,2	56 ±2	44 ±2	1,72 ±0,31
2	7,3 ±0,3	2,1 ±0,1	5,1 ±0,1	62 ±2	38 ±2	1,59 ±0,23
3	5,8 ±0,2	1,2 ±0,1	4,5 ±0,1	63 ±2	37 ±2	1,49 ±0,36
4	6,3 ±0,5	1,8 ±0,2	4,6 ±0,3	75 ±2	25 ±2	3,09 ±0,33
5	7,3 ±0,3	1,9 ±0,2	5,3 ±0,1	58 ±2	42 ±2	1,46 ±0,32
6	8,6 ±0,4	3,3 ±0,3	5,3 ±0,1	59 ±2	41 ±2	1,18 ±0,25
7	5,3 ±0,3	1,1 ±0,1	4,2 ±0,1	68 ±2	32 ±2	2,14 ±0,32

TABLEAU 3 - Conductivités thermiques des phases constitutives du dépôt.

matériau	conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)
alumine Al ₂ O ₃	37,06
rutile TiO ₂ (valeur moyennée entre les valeurs parallèle et perpendiculaire à l'axe c de la maille cristallographique)	8,95
pores (air)	0,03

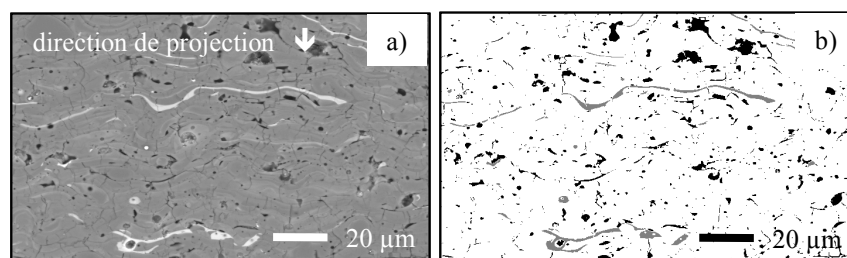


FIGURE 1 - Architecture typique des couches d'alumine-rutile étudiées. a) Image MEB en électrons rétrodiffusés. b) Image traitée pour discriminer l'alumine (blanc), le rutile (gris) et les pores (noir)

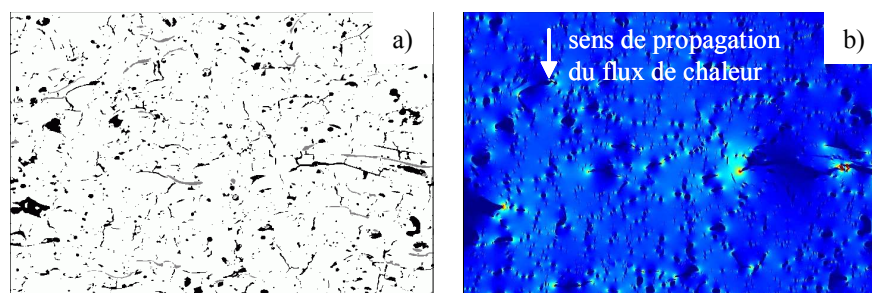


FIGURE 2 - Image typique de la distribution des trois phases dans un dépôt (a) et champ calculé de flux de chaleur à travers la structure (b).

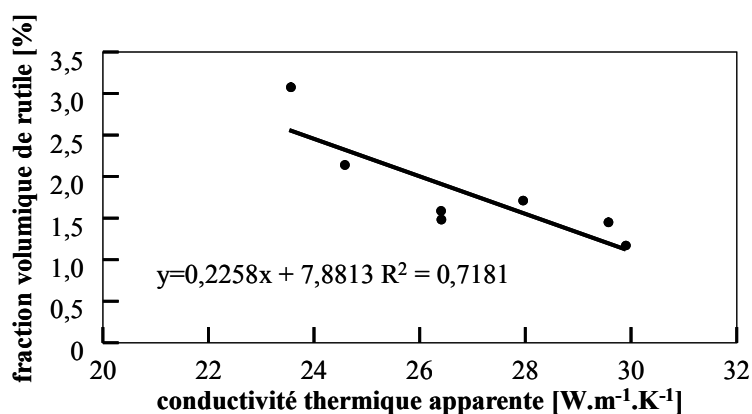


FIGURE 3 - Conductivité thermique apparente pour différentes fractions volumiques de rutile.

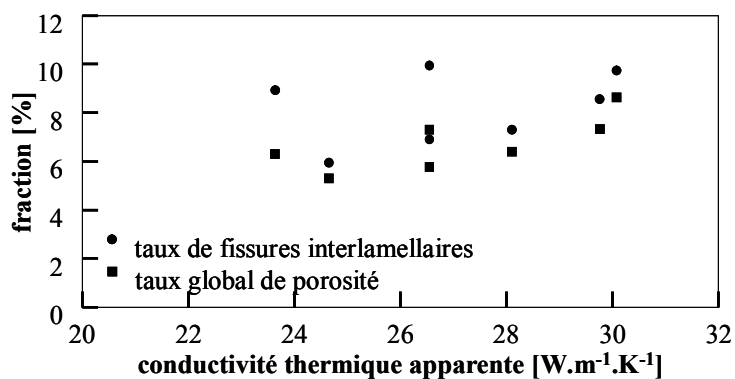


FIGURE 4 - Conductivité thermique apparente pour différentes architectures poreuses.

4 Transferts de masse au sein des couches : perméabilité

L'introduction d'une solution conductrice dans sa porosité ouverte permet de caractériser par spectrométrie d'impédance la perméabilité d'un dépôt en étudiant la réaction de corrosion au contact avec le substrat qui s'amorce au fond des pores. La méthode consiste à mesurer l'impédance de la cellule électrochimique ayant le dépôt immergé comme électrode de travail, Zhang *et al.* (2005), Jayaraj *et al.* (2004). Les mesures ont été réalisées avec une tension sinusoïdale d'amplitude 10 mV et une fréquence variant entre 1 mHz et 100 kHz à température ambiante avec un montage classique à trois électrodes plongées dans un électrolyte de ferroferri cyanure de potassium ($K_3Fe(CN)_6/K_4Fe(CN)_6$) à 0,01 mol.l⁻¹. Cet électrolyte a été choisi en raison de son interférence minimale avec la couche projetée ainsi qu'une réversibilité élevée (en

densité de courant d'échange électrochimique), Zhang *et al.* (2005). Les spectres obtenus sont associés à des circuits électriques équivalents qui intègrent la résistance de l'électrolyte, celle des pores, des films passifs, la capacité de double couche et les phénomènes diffusionnels, Beauvais (2003). La détermination du taux de porosité ouverte consiste à calculer le rapport entre les résistances de polarisation de la surface revêtue et de la surface non revêtue :

$$\frac{R_p \text{ surface non revêtue}}{R_p \text{ surface revêtue}} = \frac{\rho_E \frac{d_{dc}}{S_{totale}}}{\rho_E \frac{d_{dc}}{S_{rev}}} = \frac{S_{rev}}{S_{totale}} \quad (1)$$

où ρ_E est la résistivité de l'électrolyte [$\Omega.m$], d_{dc} l'épaisseur de la double couche à l'interface électrolyte / substrat [m], S_{totale} la surface nue [m^2] et S_{rev} la surface du substrat en contact avec l'électrolyte lorsque la surface est revêtue [m^2]. Après simplification, ce rapport correspond à la surface du substrat non revêtu sur la surface totale de l'interface dépôt/substrat en faisant l'hypothèse que ce rapport de surface est égal au rapport du volume des pores connectés par le volume total du dépôt. Les mesures ont été effectuées sur 5 échantillons et les résultats ont été ensuite moyennés. La porosité interconnectée des dépôts d'alumine-rutile varie (Tableau 4) de 2,5 à 4,8 %, ce qui représente 39 à 73 % de la porosité totale. De plus, il apparaît qu'un dépôt qui présente un taux de porosité totale élevé n'est pas nécessairement le dépôt qui contient le plus de pores interconnectés. Toutefois, le taux de pores connectés révèle une forte corrélation avec les caractéristiques des particules lors de l'impact, et diminue notamment avec l'augmentation du critère de Sommerfeld défini suivant $K = (We(Re)^{1/2})^{1/2}$ où Re est le nombre adimensionné de Reynolds et We le nombre adimensionné de Weber de la particule à l'impact (Figure 5). Ainsi, les caractéristiques contrôlant l'étalement des particules (viscosité de la particule et sa quantité de mouvement) jouent un rôle prépondérant sur la connectivité du dépôt.

TABLEAU 4 - Taux de connectivité des couches d'alumine-rutile.

test	taux global de porosité [%]	taux de porosité connecté [%]	connectivité de la couche [%]
1	6,3 ± 0,3	2,5 ± 0,5	39
2	7,3 ± 0,3	4,8 ± 0,3	65
3	5,8 ± 0,2	2,5 ± 0,1	47
4	6,3 ± 0,5	4,6 ± 0,3	73
5	7,3 ± 0,3	3,2 ± 0,3	44
6	8,6 ± 0,4	4,5 ± 0,5	52
7	5,3 ± 0,3	3,4 ± 0,5	64

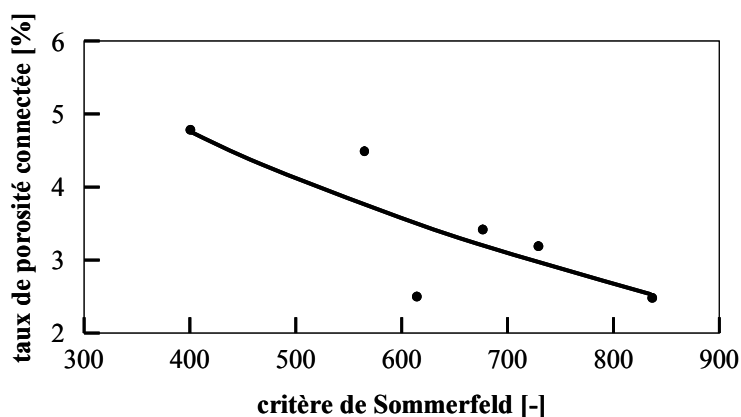


FIGURE 5 - Evolution du taux de porosité ouverte en fonction des caractéristiques des particules en vol, et notamment du critère de Sommerfeld.

5 Conclusion

Les couches épaisses de céramiques élaborées par projection plasma présentent une architecture poreuse caractéristique constituée de pores globulaires, de fissures et de délaminations formant un réseau interconnecté. Ce réseau influence singulièrement les transferts de chaleur en agissant localement comme des résistances thermiques. Ce réseau est le siège d'un transfert de masse consécutivement à la percolation d'espèces pouvant réagir avec le substrat, conduisant alors à des dommages sévères. Une modélisation bidimensionnelle basée sur la discrétisation du réseau de pores a été développée pour estimer ses effets sur la conductivité thermique apparente de la couche. La spectroscopie d'impédance électrochimique permet d'estimer le taux de connectivité de la couche.

Références

- Antou, G., Montavon, G. 2006 Pore network architecture in plasma-sprayed ceramic coatings. *J. High Tem. Mat. Proc.* **10** (2), 161-184
- Beauvais, S. 2003 Etude de l'influence de la porosité sur les propriétés électriques de dépôts réalisés par projection plasma, Thèse de Doctorat de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, France
- Bolot R., Antou G., Montavon G., Coddet C. 2005 A two-dimensional heat transfer model for thermal barrier coating average thermal conductivity computation, *Num. Heat Transfer, Part A* **47** (9), 875-898.
- Bolot R., Antou G., Montavon G., Coddet C. 2006 Calcul numérique de la conductivité thermique de dépôts de zircone yttrée élaborés par projection thermique, actes du colloque MATERIAUX 2006 (Dijon, France, 13-17 novembre).
- Evans, A.G., Mumm, D.R., Hutchinson, J.W., Meier, G.H., Pettit, F.S. 2001 Mechanisms controlling the durability of thermal barrier coatings, *Prog. in Mat. Sci.* **46**, 505-553
- Fauchais, P. 2004 Quo vadis plasma spraying. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37**, R1-R23
- Fauchais, P., Montavon, G., Vardelle, M., Cedelle, J. 2006 Developments in direct current plasma spraying. *Surf. & Coat. Tech.* **201** 1908-1921
- Janisson, S., Vardelle, A., Coudert, J.F., Maillot, E., Pateyron, B., Fauchais, P. 1999 Plasma spraying using Ar-He-H₂ gas mixtures. *J. of Therm. Spray Tech.* **8** 545-552
- Jayaraj, B., Desai, V.H., Lee, C.K., Sohn, Y.H. 2004 Electrochemical impedance spectroscopy of porous ZrO₂-8 wt.% Y₂O₃ and thermally grown oxide on nickel aluminide. *Mat. Sci. & Eng. A* **372** 278-286
- Montavon, G., Coddet, C., Berndt, C.C., Leigh, S.-H. 1998 Microstructural index to quantify thermal spray deposit microstructures using image analysis. *J. of Therm. Spray Tech.* **7** 229-241
- Poulain, M. 1999 Etude de la conductivité thermique de revêtements céramiques à base de zircone : relation avec la composition, la microstructure et la morphologie, Thèse de troisième cycle, Université Paris-Sud (U.F.R. d'Orsay), France
- Russ, J.C., DeHoff, R.T. 1999 Practical stereology 2nd edition. Pub. Plenum Press, New York, NY, USA
- Touloukian Y.S. 1970 Thermal conductivity : metallic elements and alloys. Vol. 1, Touloukian (Y.S.) series (éd.), Ho (C.Y.) Series technical ed. IFI/Plenum New York Washington.
- Zhang, J., Desai, V. 2005 Evaluation of thickness, porosity and pore shape of plasma sprayed TBC by electrochemical impedance spectroscopy. *Surf. & Coat. Tech.* **190** 98-109