Conductivité thermique: Mesure de propriétés thermiques de solides et de liquides silicatés à hautes températures

Benjamin Rémy, Vincent Schick, Johann Meulemanns

Saint Gobain Research / LEMTA / UL / CNRS

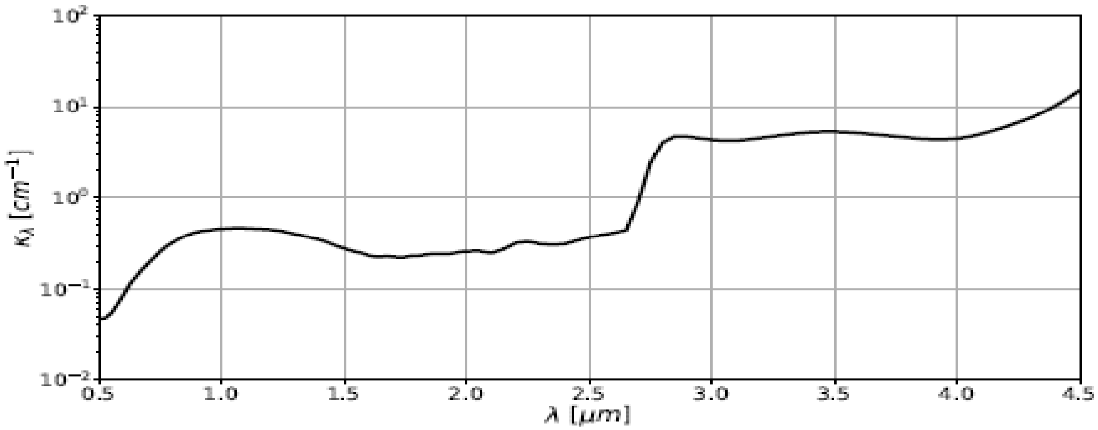
Laboratoire commun CANOPEE

USTV 2023

13/4/2023

Introduction

- Mesure des propriétés thermiques des verres : difficultés expérimentales
  - Matériaux semi transparents → chaleur = rayonnement + conduction
  - Rhéologie (au de la de T_f) → convection
  - Hautes températures
    - Environnement
    - Contraintes expérimentales matérielles



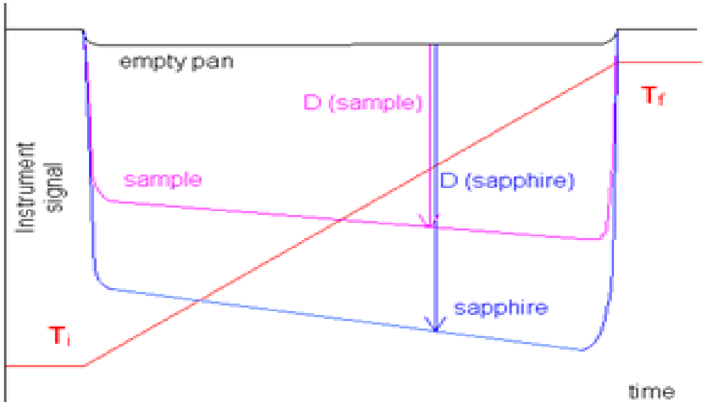
Exemple de spectre d'absorption d'un verre silico-sodo-calcique à température ambiante

Introduction

- Mesure des propriétés thermiques des verres : difficultés expérimentales

- Propriétés **thermiques** recherchées
  - Conductivité thermique **« phonique »**
    - Propriété thermique intrinsèque au matériau → conduction par le réseau atomique
    - Verre et liquide sont des milieux dit « participants » en terme de rayonnement, les méthodes de mesure classique ne permettent que d'estimer une **conductivité thermique apparente** liés à la **conduction et au rayonnement**
  - Capacité calorifique par Calorimétrie (DSC HT)
  - **Diffusivité thermique « phonique »** $\boxed{a = \dfrac{\lambda}{\rho . c_p}}$

Calorimètre MHTC 96 Setaram
DSC Calvet 3D



Sommaire

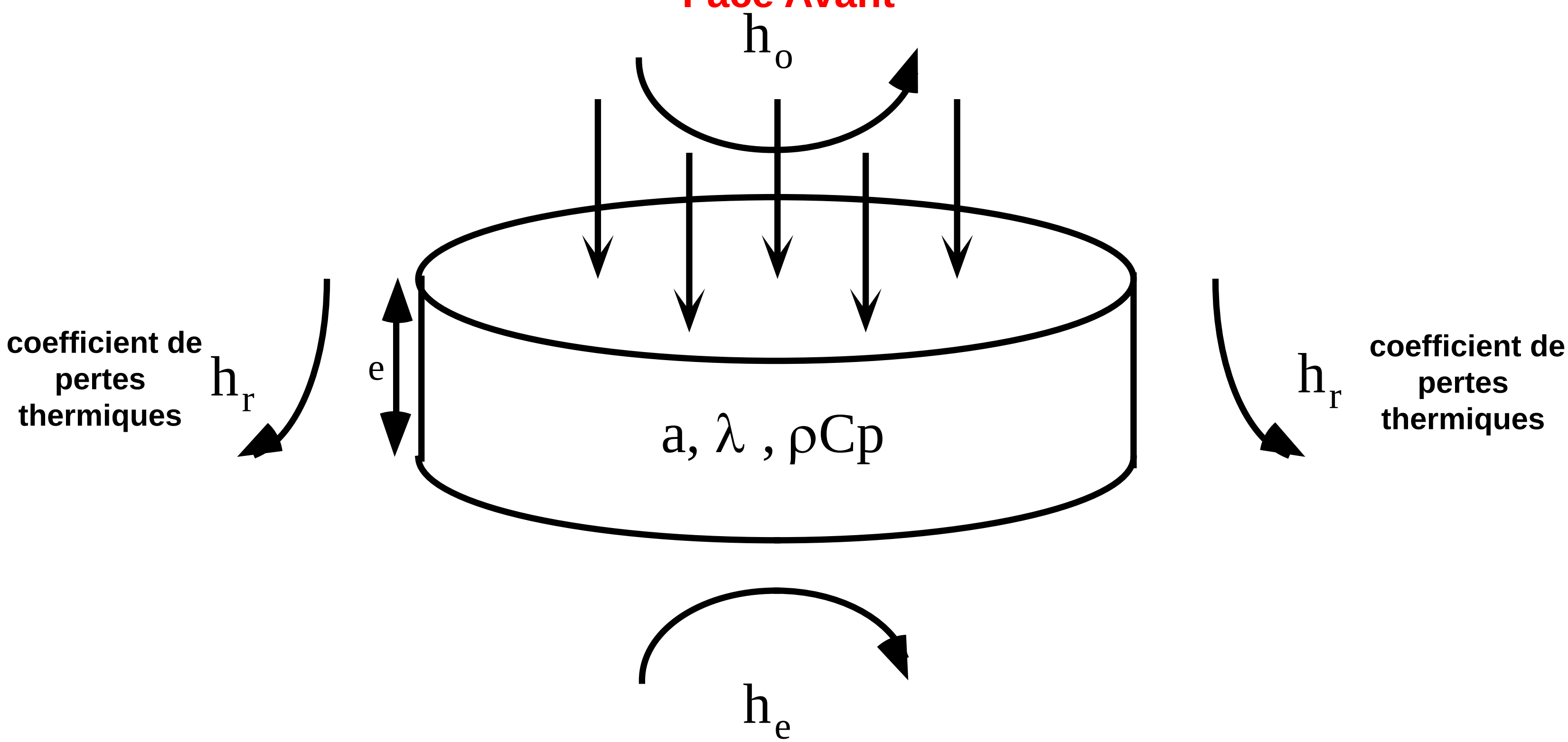
Estimation de la diffusivité thermique par méthode « flash »

13/4/2023

Principe de la méthode

Face éclairée par le « Flash » d'excitation

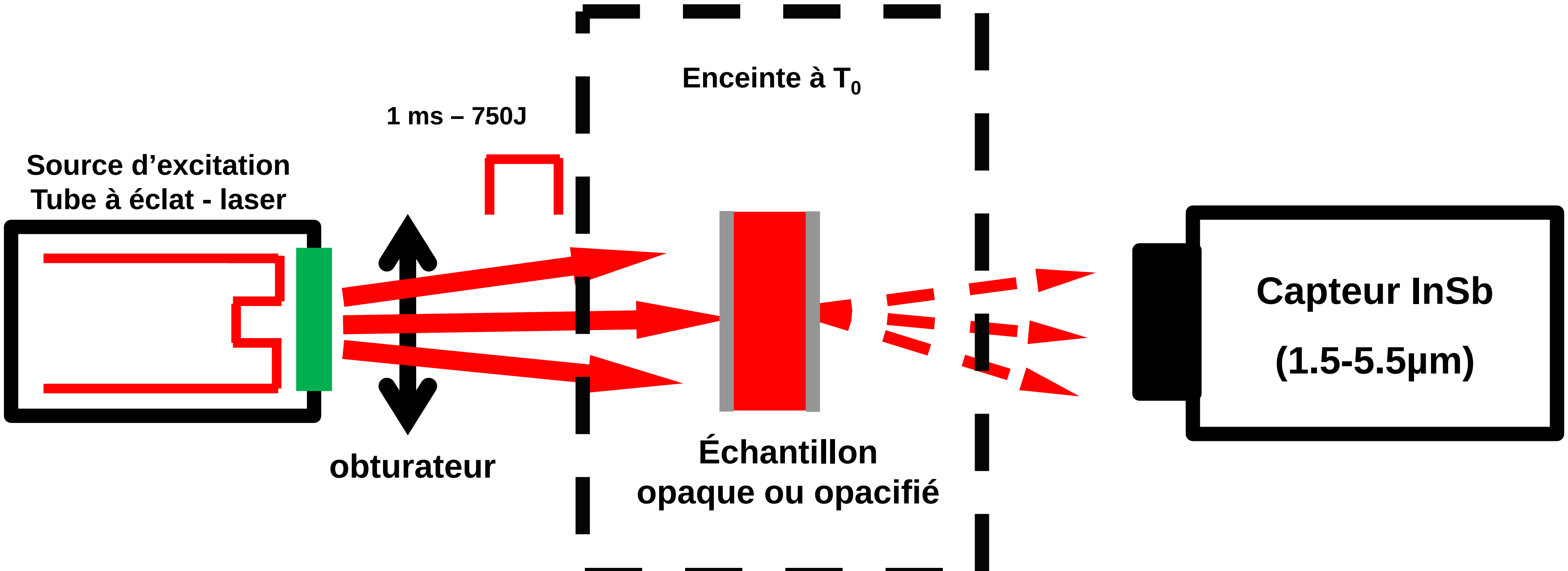
Face Avant



Face de mesure de la température

Face Arrière

Dispositif de mesure



Face éclairée par le « Flash » d'excitation
Face Avant

Face de mesure de la température
Face Arrière

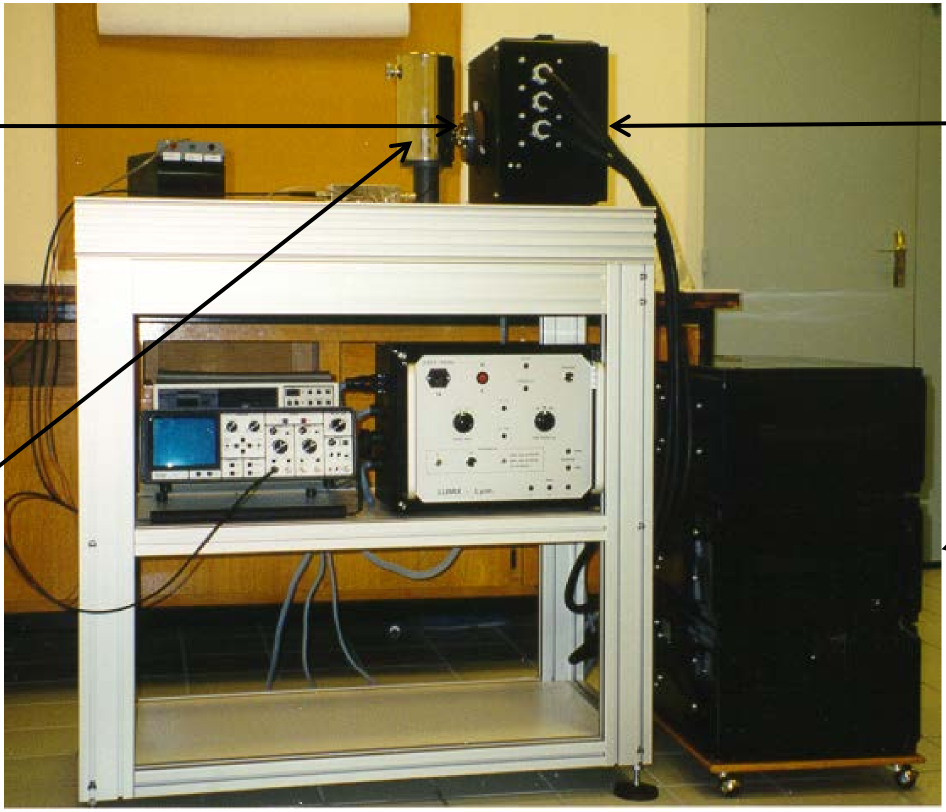
Dispositif de mesure

Face de mesure de la température
Face Arrière

Face éclairée par le « Flash » d'excitation
Face Avant

Echantillon

Source d'excitation Tube à éclat

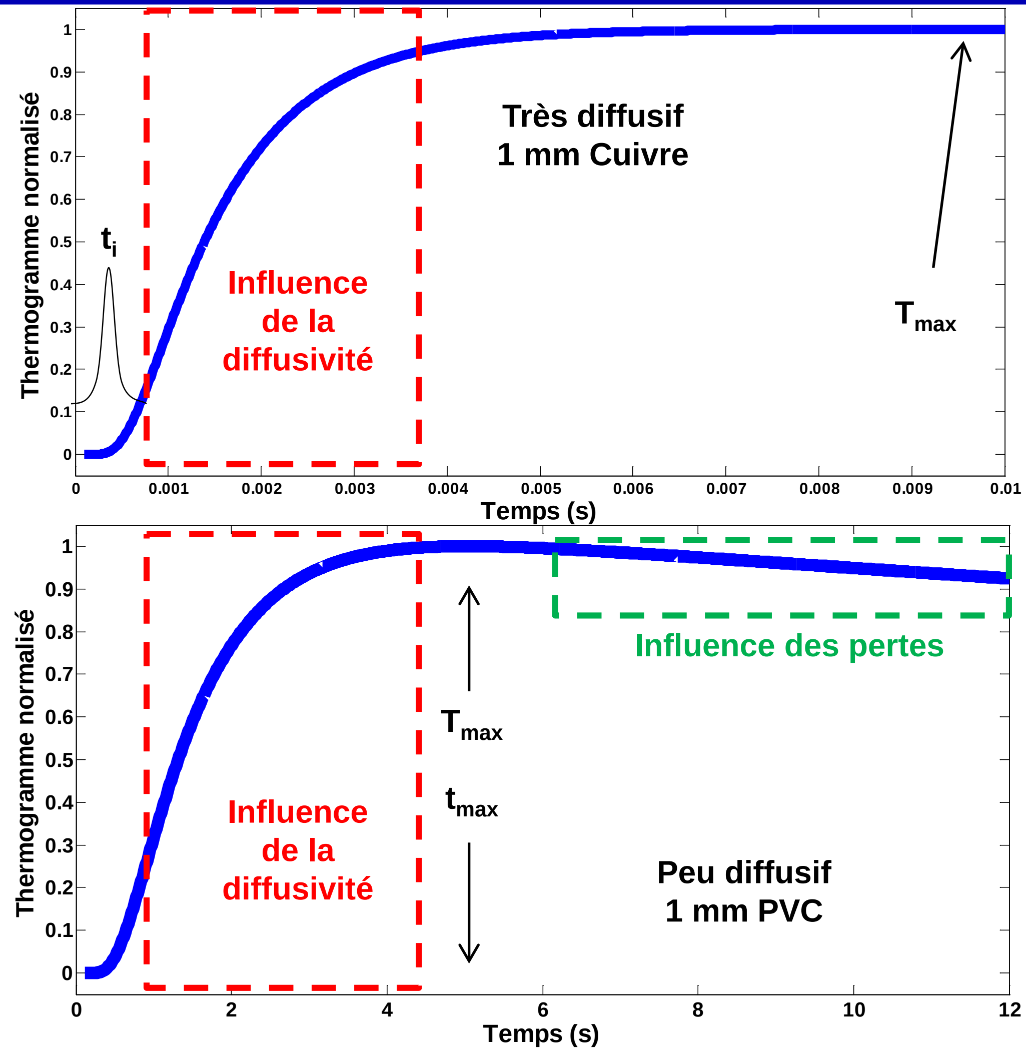


Capteur optique

Batterie de condensateur

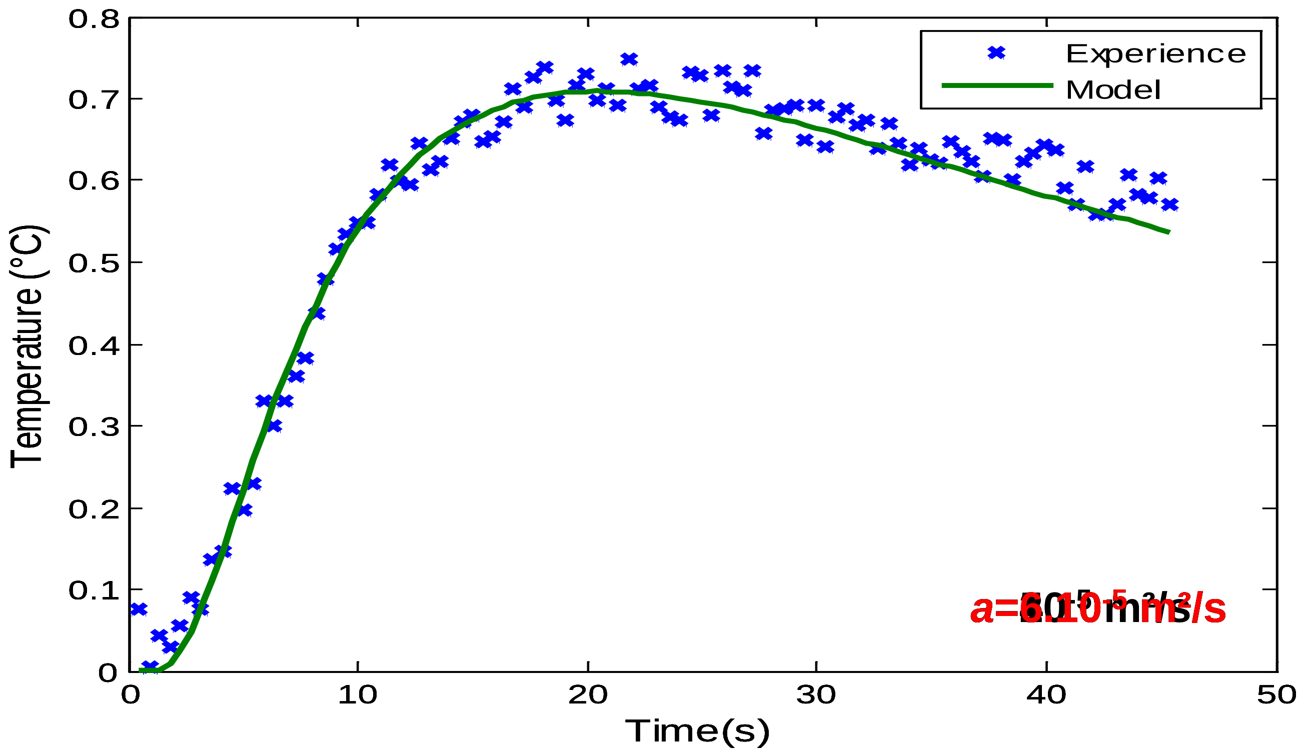
Exploitation des thermogrammes

- Température en face arrière normalisée en fonction du temps
- Modélisation des phénomènes de transfert de la chaleur
  - Hypothèse transfert 1D
  - Flux d'excitation court
    - Dirac (t_i<300*t_{max})
    - Créneau (<t_{max}/2)
  - $h_o=h_e=h_r$



Exploitation des thermogrammes

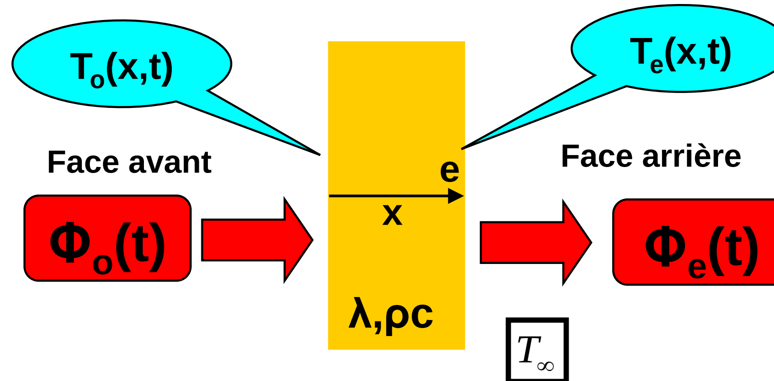
- Estimation de paramètres en minimisant l'écart quadratique moyen Modèle - Expérience



Modélisation des phénomènes de conduction

→ Résolution de l'équation de la chaleur via transformation de Laplace

$$\frac{1}{a}\frac{\partial T(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial^2 T(x,t)}{\partial x^2}$$

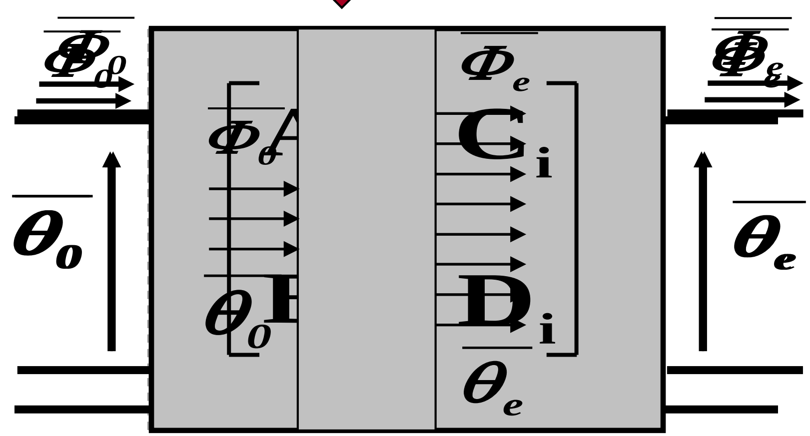


Transformé de Laplace

$$\theta(x,p) = \Im\left[T(x,t) - T_\infty\right]$$

$$\frac{p}{a}\theta(x,p) = \frac{\partial^2 \theta(x,p)}{\partial x^2}$$

→ Analogie électrique



→ Inversion Laplace numérique

Diffusivité thermique des verres à hautes températures

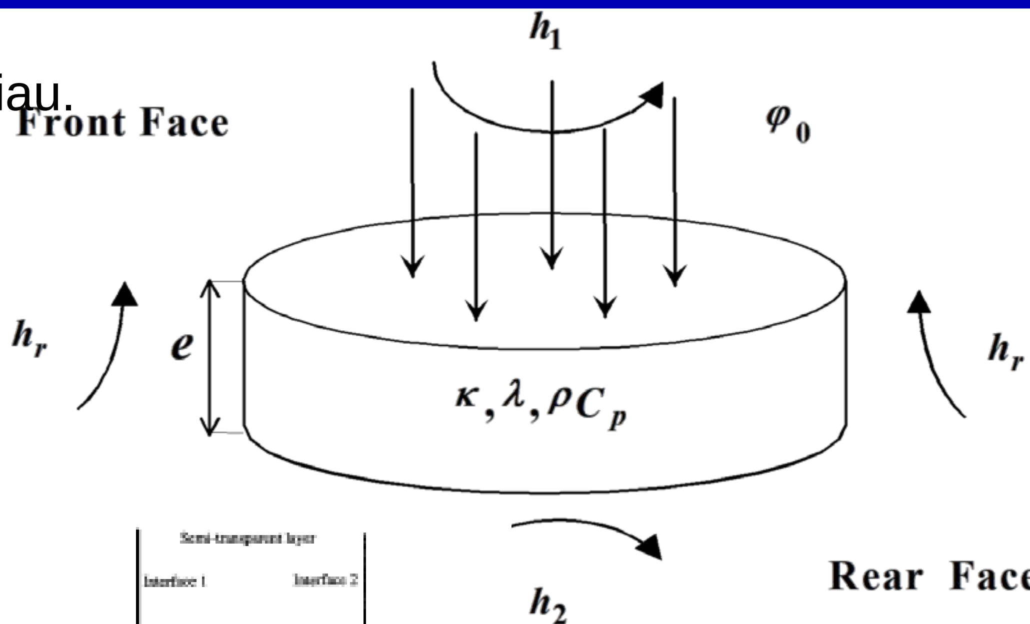
13/4/2023

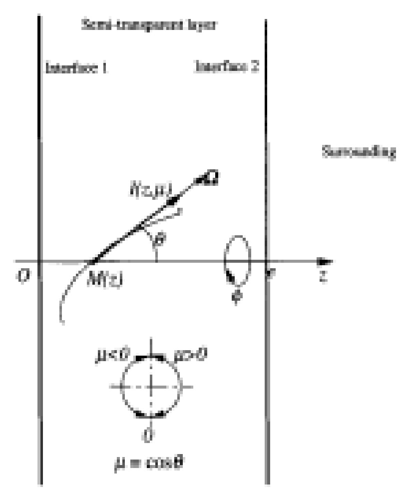
Couplage conducto-radiatif

- Prise en compte des propriétés thermiques et optiques du matériau.

- Equation et variable :
  - Equation de la chaleur → (T)
  - Equation du transfert radiatif →Luminance L (♯σT^4)
  - Géométrie simplifiée
    - 1D conduction
    - Transfert radiatif en 2D (r,θ)

- Echantillon de quelques millimètres d'épaisseur **e** isotrope et homogène
  - Paroi et milieu corps gris
  - Echantillon opacifié (or, carbone)





$$\frac{\partial}{\partial s} = \frac{\partial}{\partial z}\frac{\partial z}{\partial s} = \cos(\theta)\frac{\partial}{\partial z} = \mu\frac{\partial}{\partial z}$$

Couplage conducto-radiatif: épaisseur optique

- La modélisation du transfert de chaleur couplé dépend de l'épaisseur optique

Hyp : milieu gris absorbant émettant non diffusant

$$\tau_0 = \beta . e$$

(avec β le absorption coefficient optique)

- On distingue trois cas de figure :
  - Milieu optiquement épais : $\tau_0 >> 1$
    - verre "foncé" → le verre est un milieu dit "participant"
    - Les transferts conductifs et radiatifs peuvent être modélisés comme des phénomènes diffusifs
    - **Modèle "diffusif"→ exemple : Rosseland**
  - Milieu optiquement mince : $\tau_0 << 1$
    - "Transparent" → le verre est un milieu non participant
    - Rayonnement prépondérant
    - Mais rayonnement et conduction sont découplés
  - Milieu intermédiaire : $\tau_0 \approx 1$
    - Cas le plus difficile à modéliser
    - **Fort couplage: résolution de l'équation du transfert radiatif (E.T.R) et de l'équation de la chaleur)**
    - Résolution du problème souvent numérique

Couplage conducto-radiatif: épaisseur optique

- Milieu optiquement épais : $\tau_0 >> 1$
  - Le rayonnement est modélisé comme un phénomène diffusif
  - Introduction de la conductivité radiatif k_r (paramètre extensif)

$$\left.\begin{aligned} div(\vec{q_r}) &= -\lambda_r . \overrightarrow{grad}(T) \\ \lambda_{app} &= \lambda_{ph} + \lambda_r(\varepsilon, \tau) \end{aligned}\right\} \lambda_{ph} \Delta T + div(q_r) = \rho C_P (\frac{\partial T}{\partial t}) \Rightarrow \boxed{\lambda_{app} \Delta T = \rho C_P (\frac{\partial T}{\partial t})}$$

$$k_r = \frac{4n^2 \sigma T_0{}^3 e}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} - 1 + \frac{3}{4}\beta e}$$

Modèle de Deissler (prise en compte des parois)

$$k_r = \frac{16}{3} n^2 \sigma \frac{T_0{}^3}{\beta}$$

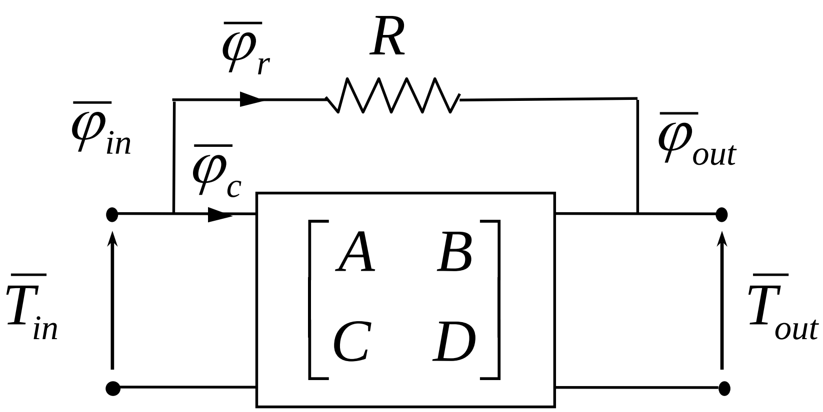
Modèle de Rosseland

Couplage conducto-radiatif: épaisseur optique

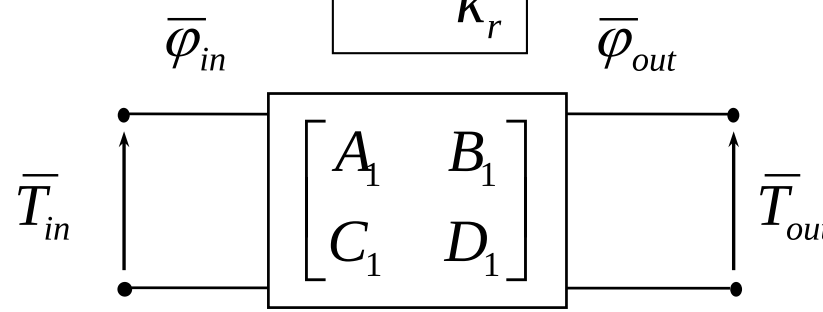
- Milieu optiquement mince : $\tau_0 \ll 1$
  - Transfert radiatif découplé de la température dans le milieu
  - Transfert radiatif = résistance
  - Transfert conductif = quadrupole

$$q_r = \frac{1}{R}\left(T_{in} - T_{out}\right)$$

$$\boxed{R = \frac{e}{k_r}}$$



$\equiv$



$$\boxed{A_1 = D_1 = \frac{B + RA}{B + R}} \quad \boxed{C_1 = \frac{A + D + RC - 2}{B + R}} \quad \boxed{B_1 = \frac{BR}{B + R}}$$

Modèle Absorbant/Émettant

- Milieu intermédiaire : $\tau_0 \approx 1$
  - Milieu absorbant émettant – Résolution 1D
  - Résolution de l'équation de la chaleur et de l'ETR

Chaleur

$$div(\lambda(T)gradT) + div(q_r) = \rho C_P(\frac{\partial T}{\partial t})$$

Température

ETR

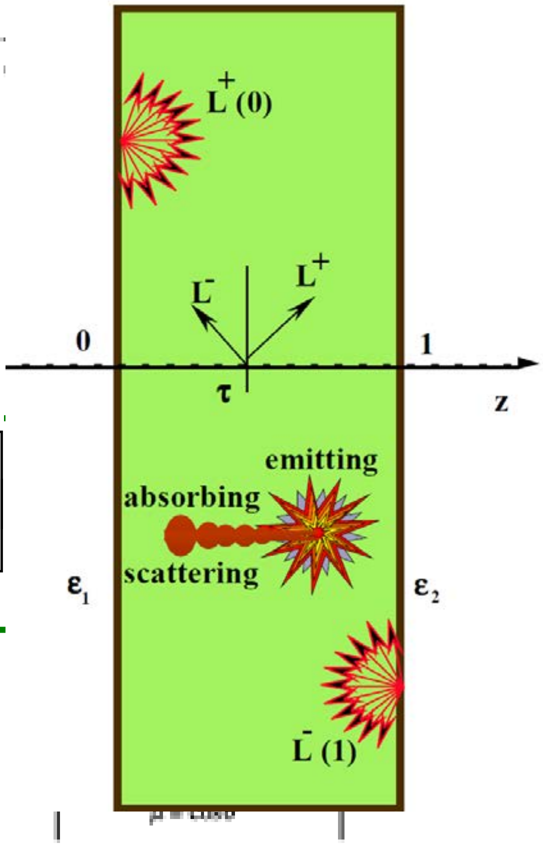
Réémission

Absorption

$$\frac{dL_\nu}{ds} + \boxed{\kappa L_\nu} = \kappa\left[(1-\omega)L_\nu^0(T) + \frac{\omega}{4\pi}\int_{4\pi} L_\nu(\Delta', s)P_\nu(\Delta' \to \Delta)d\Omega'\right]$$

$$q_r(z,t) = \int_0^\infty \int_{4\pi} L'_\nu(r,\Delta)\vec{\Delta}\, d\Omega d\nu$$

Luminance L (#σT⁴)



Transient Radiation-Conductive Heat transfer Problems: "The Quadrupole Method"
Alain Degiovanni Benjamin Remy Stéphane Andre, J. of Thermal Science Vol. 11, No.4

Modèle Absorbant/Émettant

- Résolution de l'ETR réduite en **milieu gris**

Transformé de Laplace sur la température

$$\theta(x,p)=\Im\left[T(x,t)-T_\infty\right]$$

$$q_r(z)=2L^+(0)E_3(\tau_0 z)-2L^-(1)E_3\left[\tau_0(1-z)\right]+\frac{\tau_0}{2}\int_0^z\left(1+\theta(z')\right)^4E_2\left[\tau_0(z-z')\right]dz'$$
$$-\frac{\tau_0}{2}\int_z^1\left(1+\theta(z')\right)^4E_2\left[\tau_0(z'-z)\right]dz'$$

avec $\boxed{E_n(x)=\int_0^1\exp(-x/\mu)\mu^{n-2}\,d\mu}$

Hypothèse de petites variations de la température :

$$\boxed{(1+\theta)^4\simeq 1+4\theta}$$

Technique de substitution de noyau:

$$\boxed{E_2(x)\simeq a\exp(-bz)}\qquad \boxed{a=3/4}$$

$$\boxed{E_3(x)\simeq\frac{a}{b}\exp(-bz)}\qquad \boxed{b=3/2}$$

Transient Radiation-Conductive Heat transfer Problems: "The Quadrupole Method"
Alain Degiovanni Benjamin Remy Stéphane Andre, J. of Thermal Science Vol. 11, No.4

Modèle Absorbant/Émettant

- Résolution de l'ETR en **milieu gris**

Equation différentielle :

$$\boxed{\frac{d^4\overline{\theta}}{dz^4} - \left(p + 2\frac{\tau^2}{N} + \tau^2\right)\frac{d^2\overline{\theta}}{dz^2} + p\tau^2\overline{\theta} = 0}$$

with: $\tau = \frac{2}{3}\tau_0,\ N = \frac{2}{3}N_0$

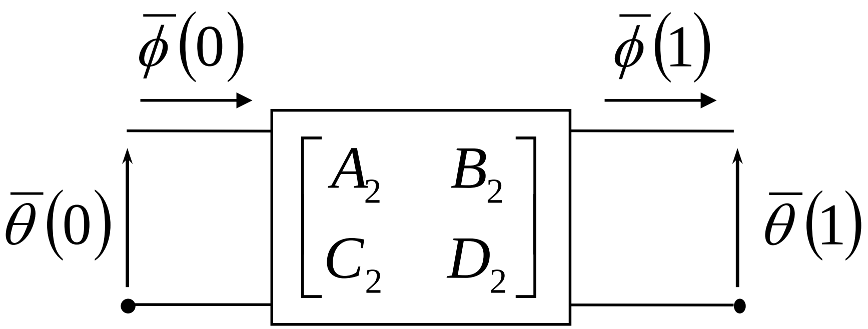
$$N_0 = \frac{k\beta}{4n^2\sigma T^3}$$

Solution :

$$\overline{\theta}(z) = \sum_{i=1}^{4} \alpha_i \exp(\gamma_i z)$$

Modèle semi- analytique adimensioné
Sous la forme d'un quadrupole conducto -radiatif

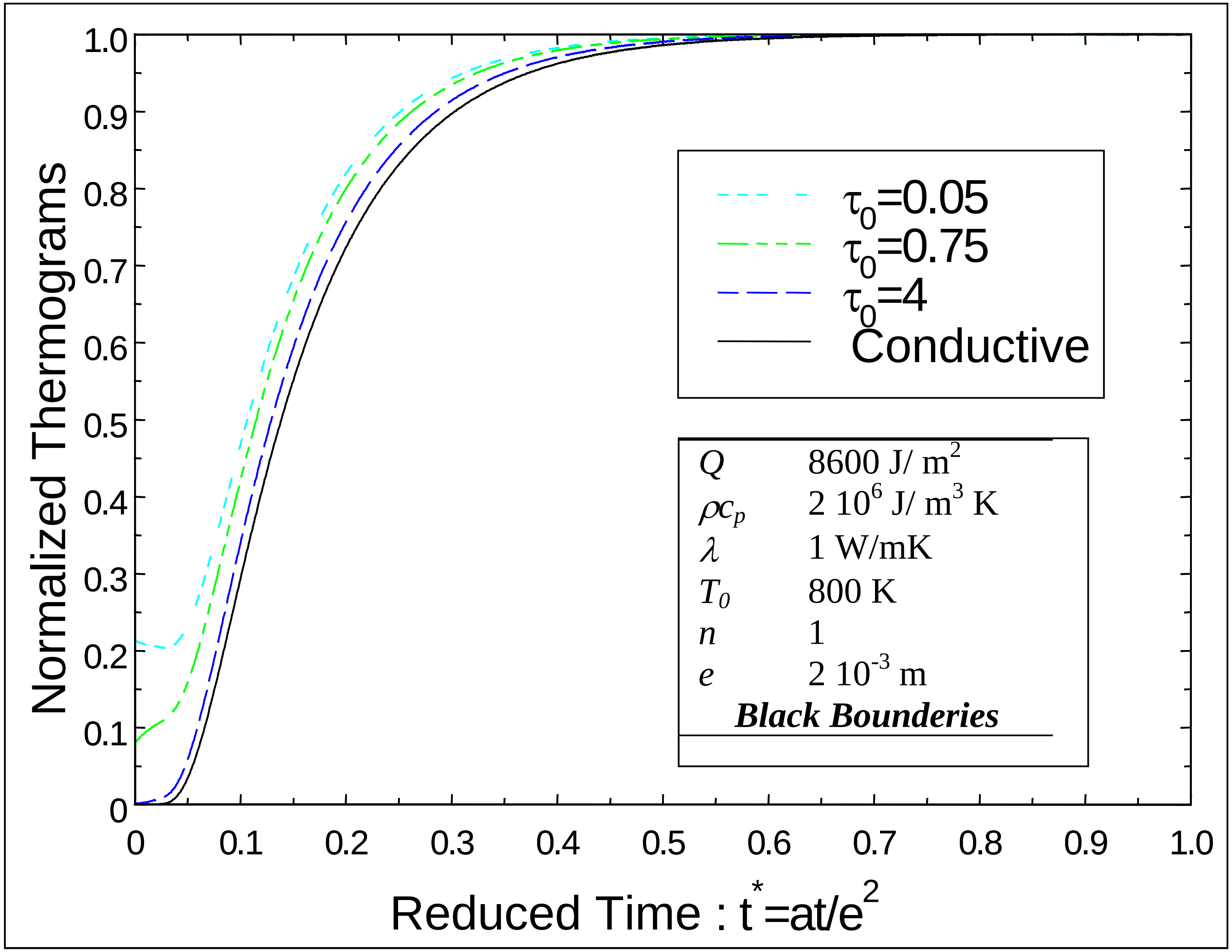
$$\boxed{\begin{bmatrix}\overline{\theta}(0)\\ \overline{\phi}(0)\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}A_2 & B_2\\ C_2 & D_2\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\overline{\theta}(1)\\ \overline{\phi}(1)\end{bmatrix}}$$



Transient Radiation-Conductive Heat transfer Problems: "The Quadrupole Method"
Alain Degiovanni Benjamin Remy Stéphane Andre, J. of Thermal Science Vol. 11, No.4

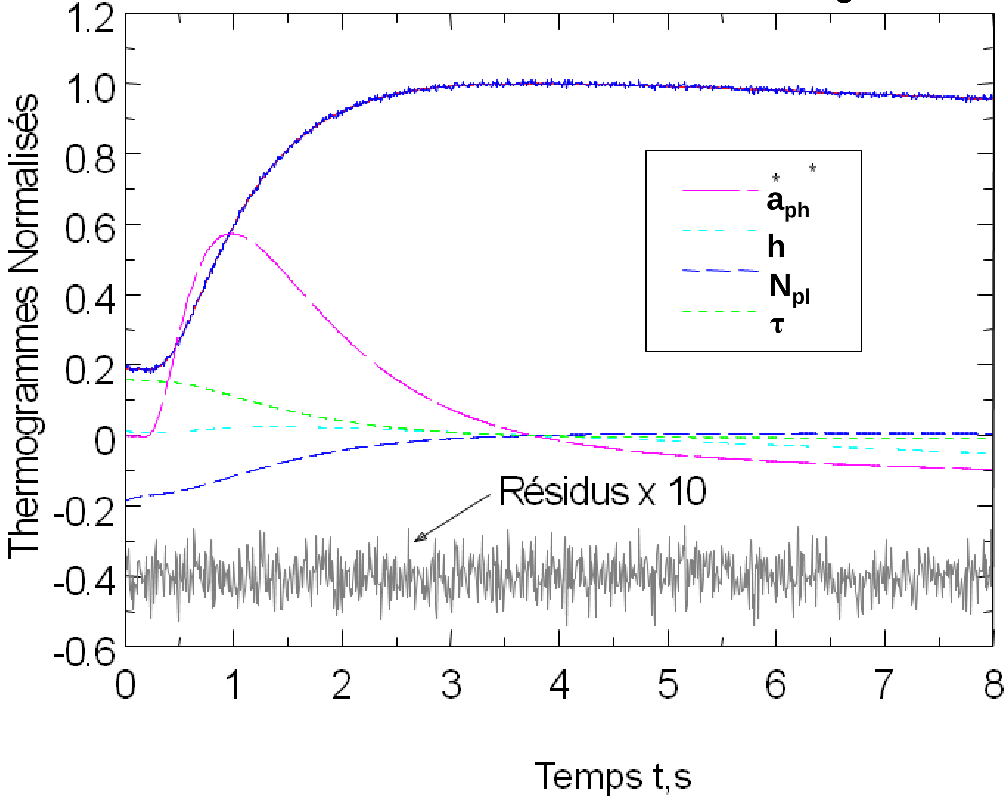
Thermogramme échantillons semi-transparents

Simulation Modèle Absorbant et émettant



Thermogramme échantillons semi-transparents

Paramètres du modèle : =(e, T_0 , Q, λ, ρ c_p , ω, β, ε_0 , ε_ε , h)



Etude de sensibilité

On estime 4 Paramètres

Epaisseur optique

$$\tau_0 = \beta e$$

La diffusivité phonique

$$a_{ph} = \frac{\lambda_{ph}}{\rho c}$$

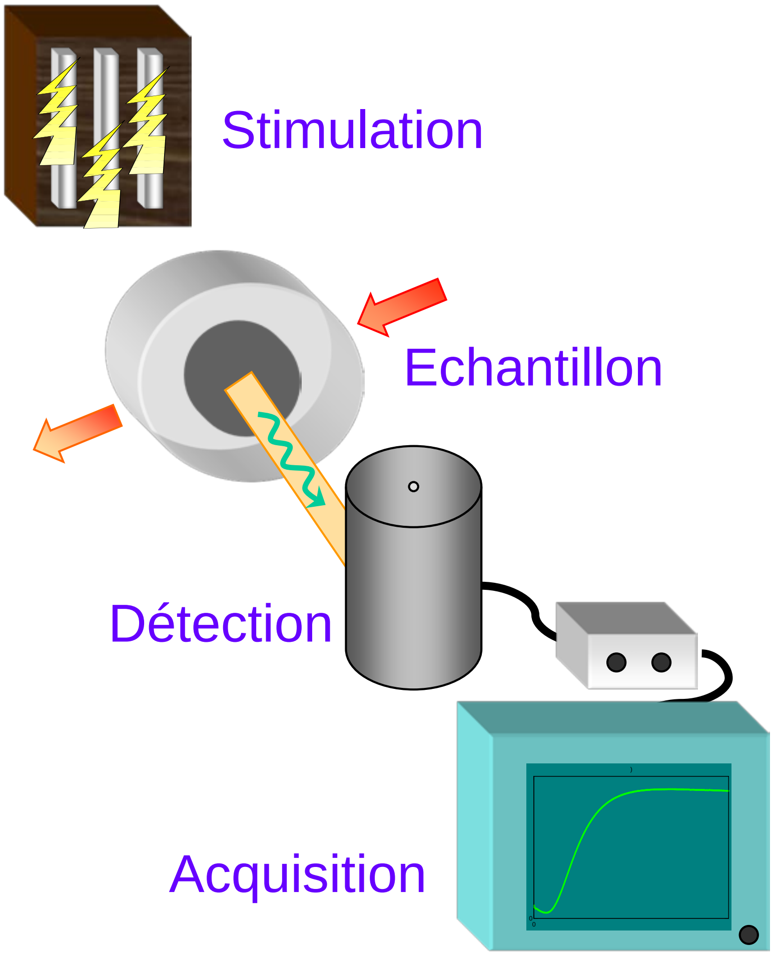
Le nombre de Planck

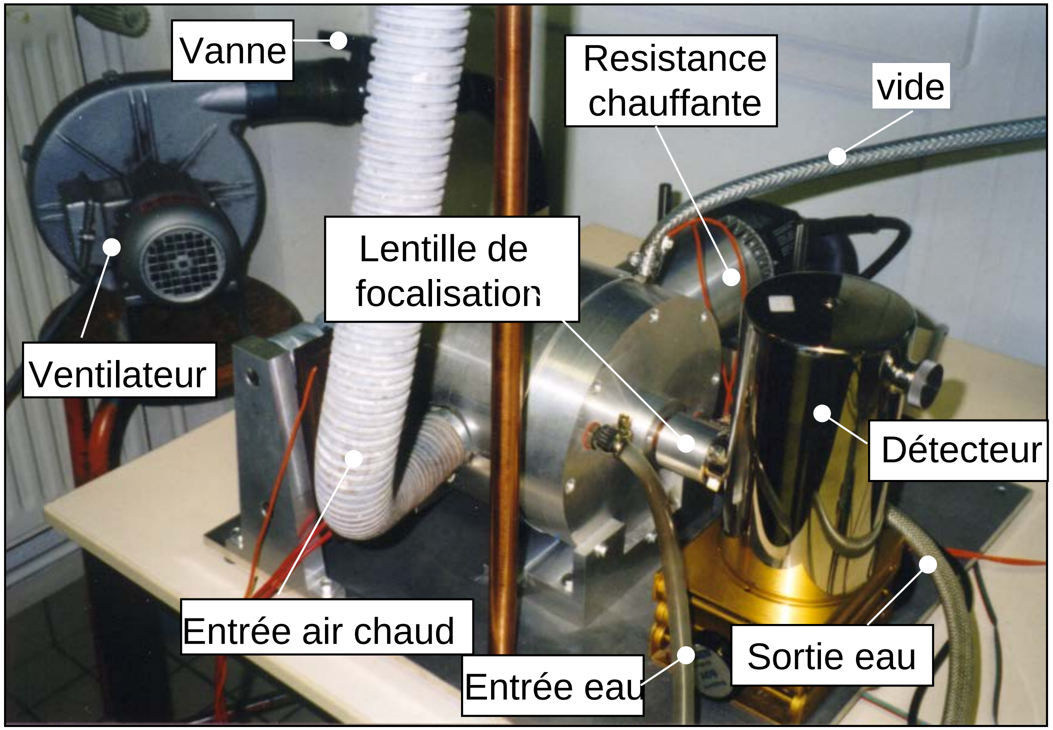
$$N_{pl} = \frac{\lambda_{ph} \beta}{4 n^2 \sigma T_0^3}$$

Coefficient d'échange

h

Dispositif expérimental



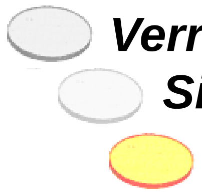


1990-2000
Méthode transitoire-périodique-permanant

Dispositif expérimental

- Dispositif actuel
  - LFA-1000 Linseis (T_{max} 1600°C)
  - Modèle conducto radiatif identique
  - Détecteur identique
  - Source laser 50J

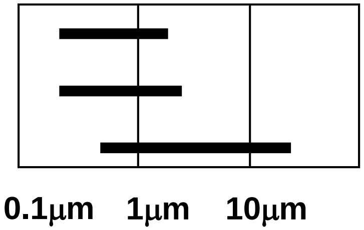
Résultats expérimentaux



Verre Float

SiO_2 (Puropsil)

ZnSe



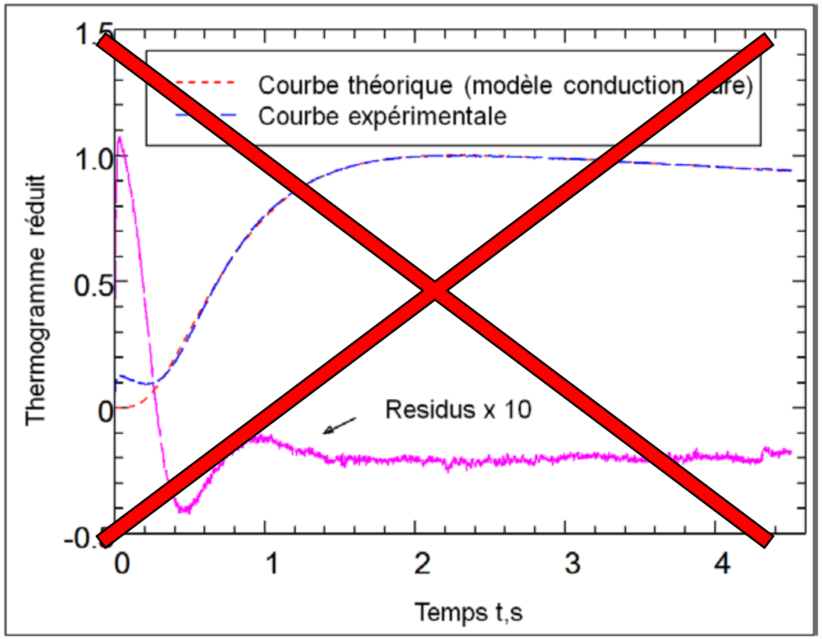
Transmission

Or

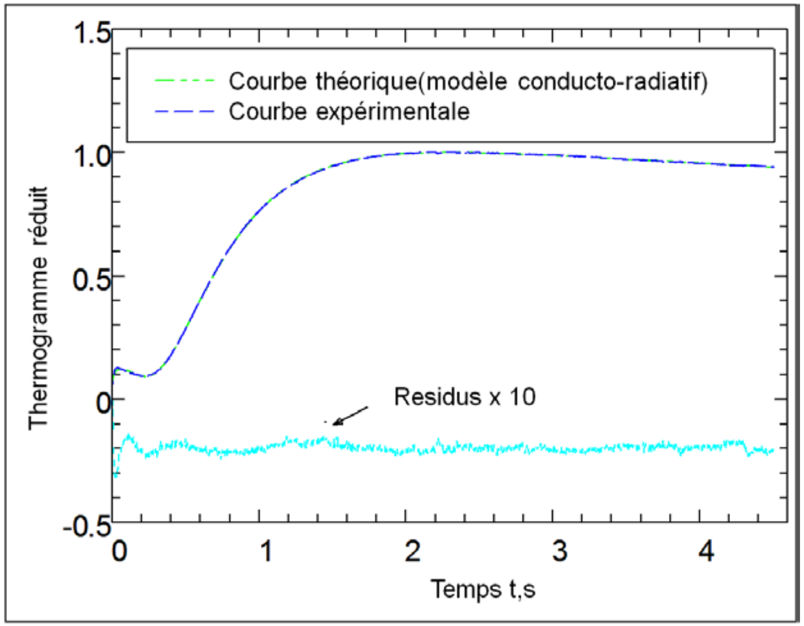
Noir

Peinture noire graphite

Modèle de conduction



Modèle conducto-radiatif



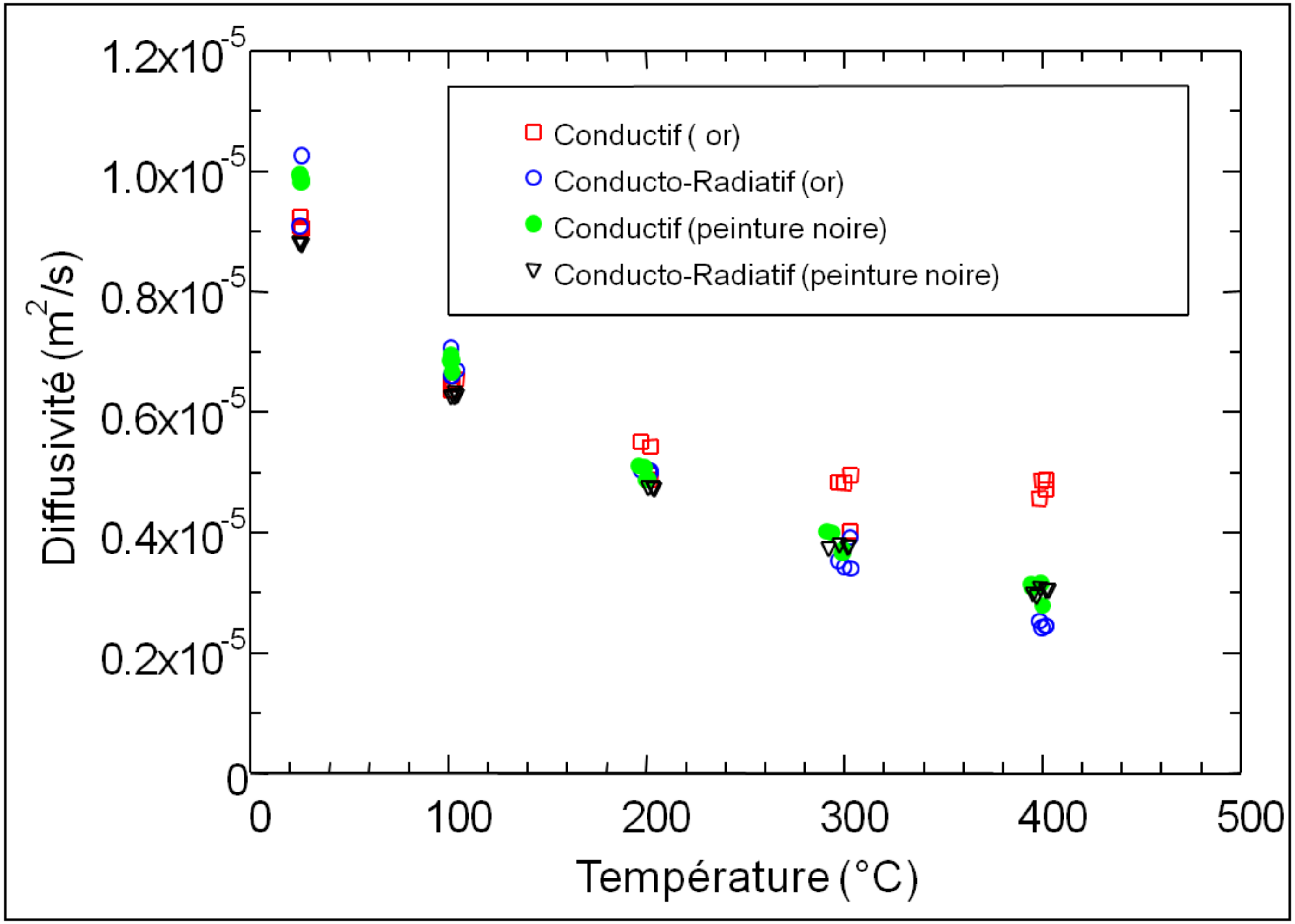
ZnSe à 400°C opacifié au graphite

Résultats expérimentaux

Diffusivité Thermique

Ambiante→ 400°C

ZnSe

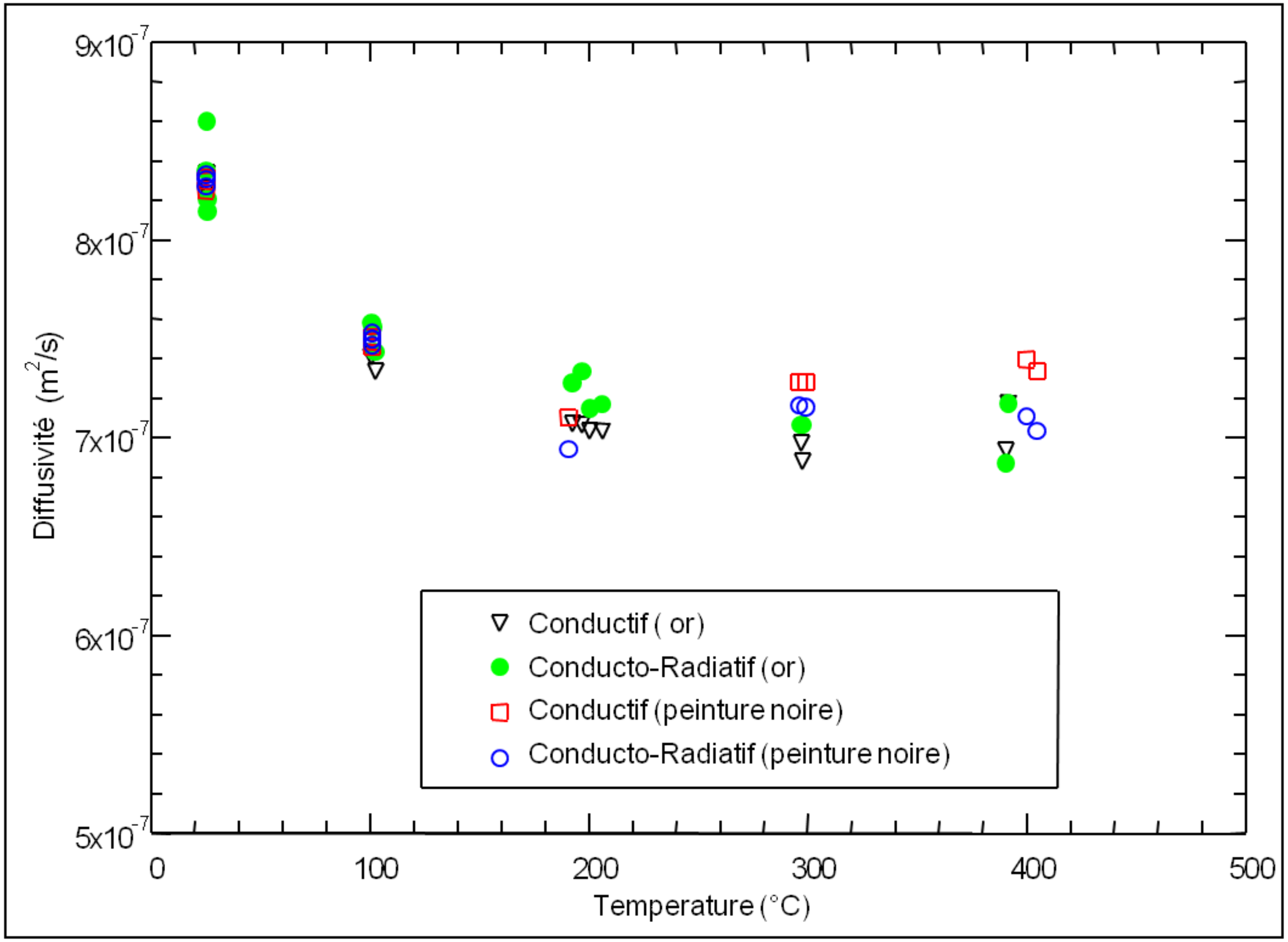


Résultats expérimentaux

Diffusivité Thermique

Ambiante→ 400°C

SiO_2



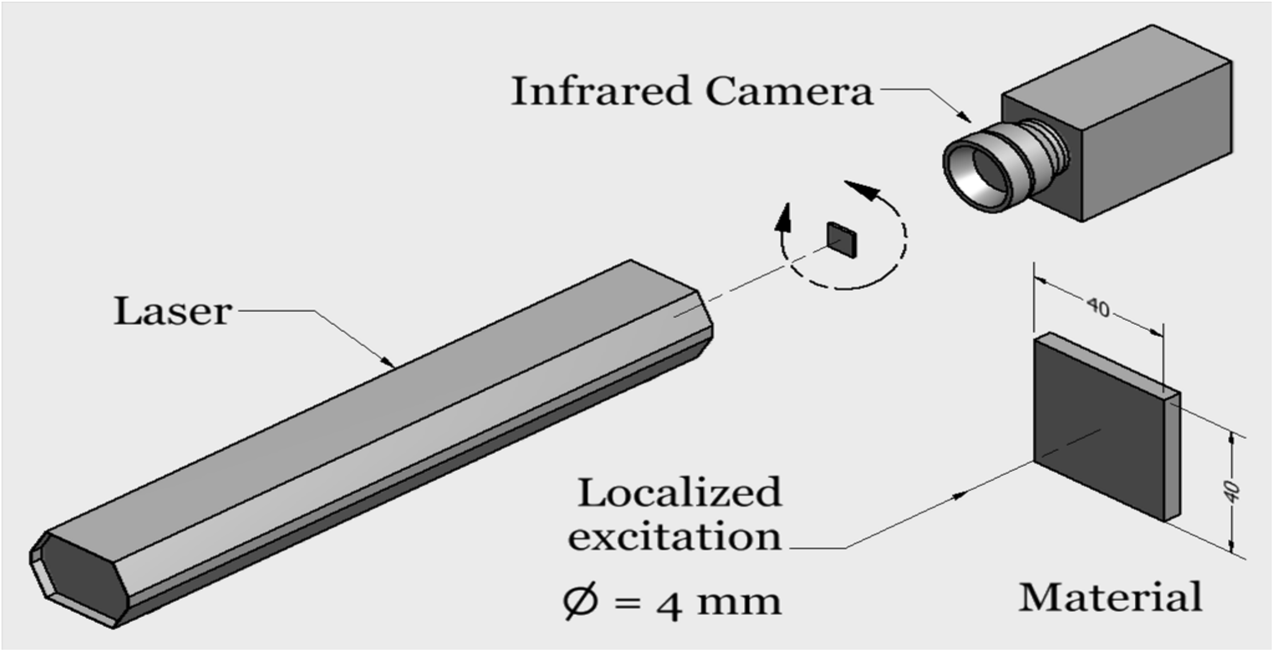
Diffusivité thermique des liquides à hautes températures

13/04/2023

Dispositif expérimental

- **Basé sur la méthode flash**: Excitation créneau avec un laser (**200 W - 10.6 µm pendant quelques secondes**) face avant. Mesure sur la face arrière avec une caméra infrarouge CEDIP (InSb 1.5 -5.1µm).

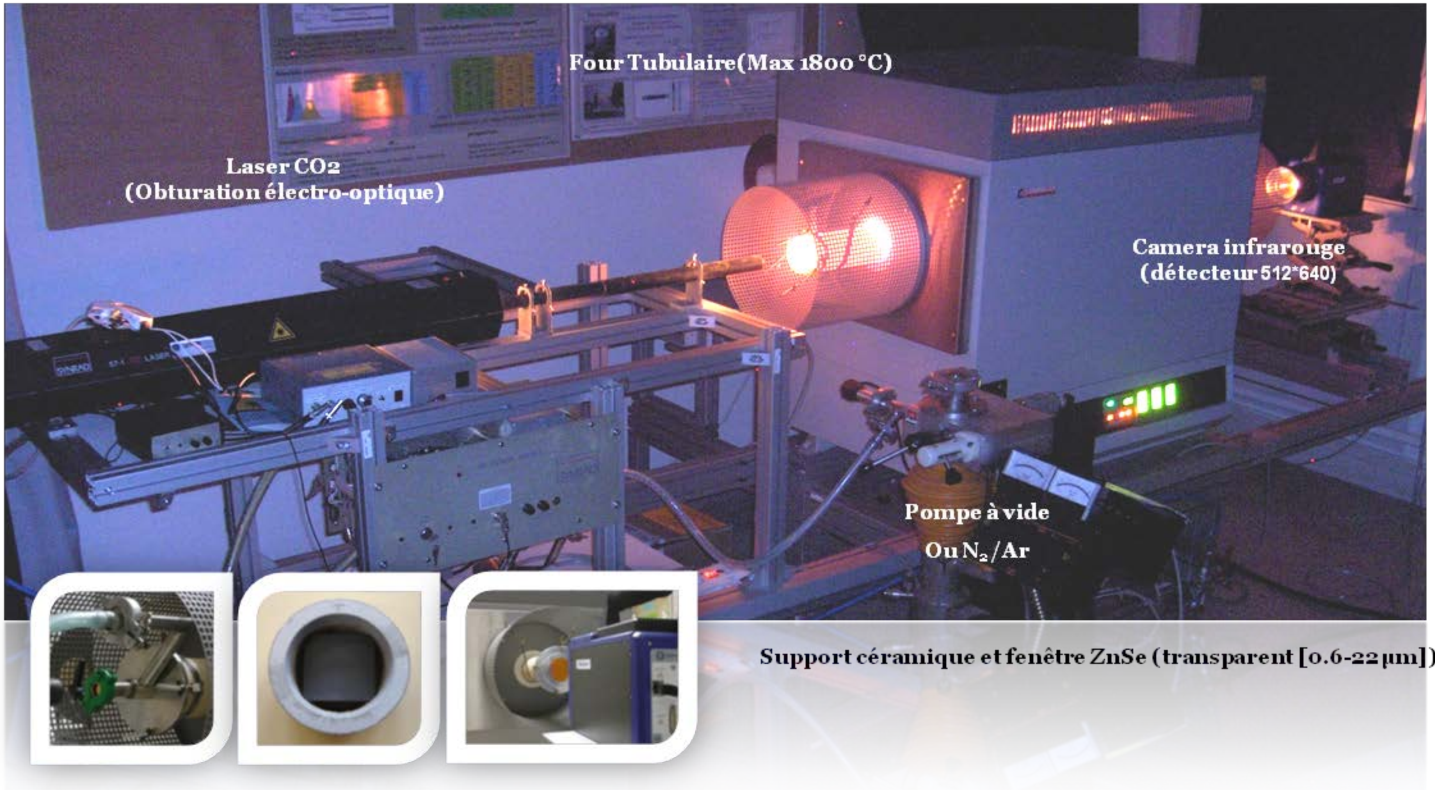
- Mesure de diffusivité thermique de 1000°C à 1500°C



Dispositif expérimental

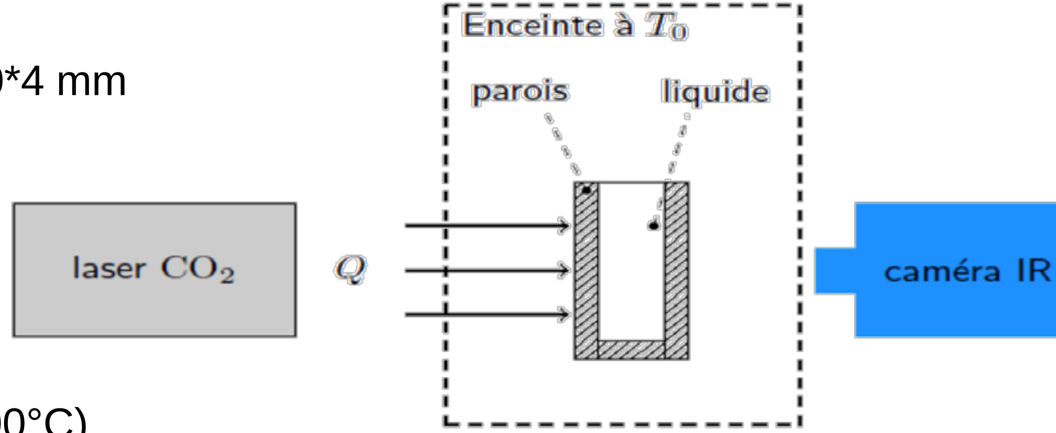
- Les échantillons liquides sont placés dans **une cellule optimisée en Pt/Rh 10% (40*40*4mm)**, prenant en compte les aspects spécifiques du matériau (liquide à haute température)

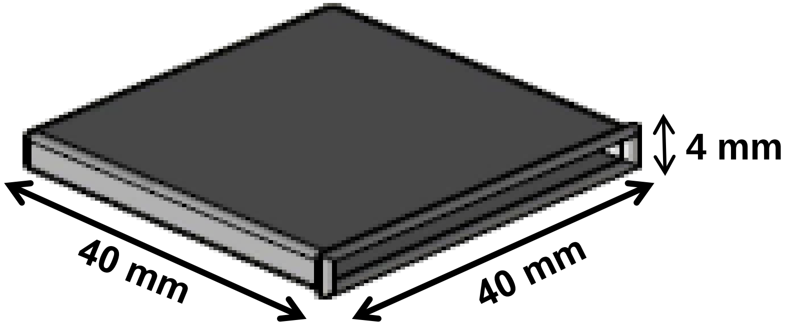
Four tubulaire Carbolite TZF18/600 sous vide ou atmosphère neutre



Cellule de mesure

- Cellule en Platine/Rhodium(10%)
  - Geometrie : Parallélépipédique 40*40*4 mm
    Paroi de 1 mm
  - Avantages
    - Opaque dans le visible et l'IR
    - Soudage par laser = Bon contact thermique
    - Stable à haute température (→ 1700°C)
    - A priori neutre via a vis du liquide
    - Matériau documenté (thermocouple type S)
  - Inconvénients
    - Onéreux
    - Faible émissivité et absorption à 10.6µm



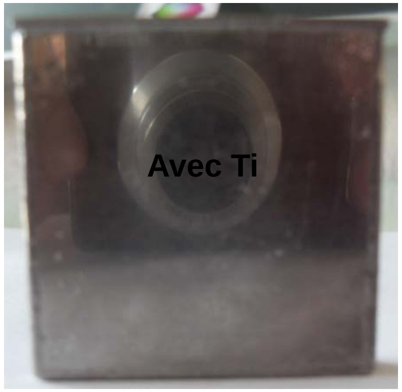


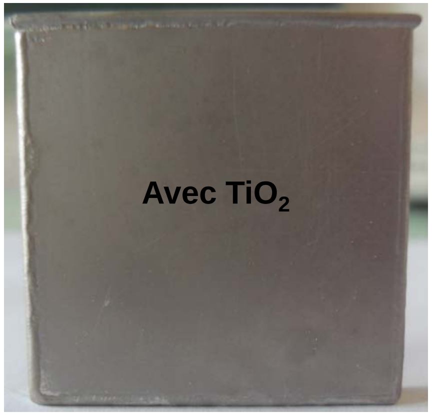
Obligation de déposer du titane + oxydation thermique → 500 Nm TiO_2

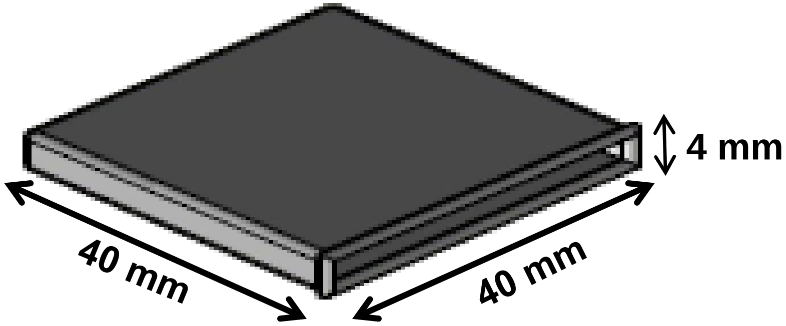
Cellule de mesure

- Cellule en Platine/Rhodium(10%)
  - Geometrie : Parallélépipédique 40*40*4 mm
    Paroi de 1 mm
  - Avantages
    - Opaque dans le visible et l'IR
    - Soudage par laser = Bon contact thermique
    - Stable à haute température (→ 1700°C)
    - A priori neutre via a vis du liquide
    - Matériau documenté (thermocouple type S)
  - Inconvénients
    - Onéreux
    - Faible émissivité et absorption à 10.6µm

Obligation de déposer du titane + oxydation thermique → 500 Nm TiO_2

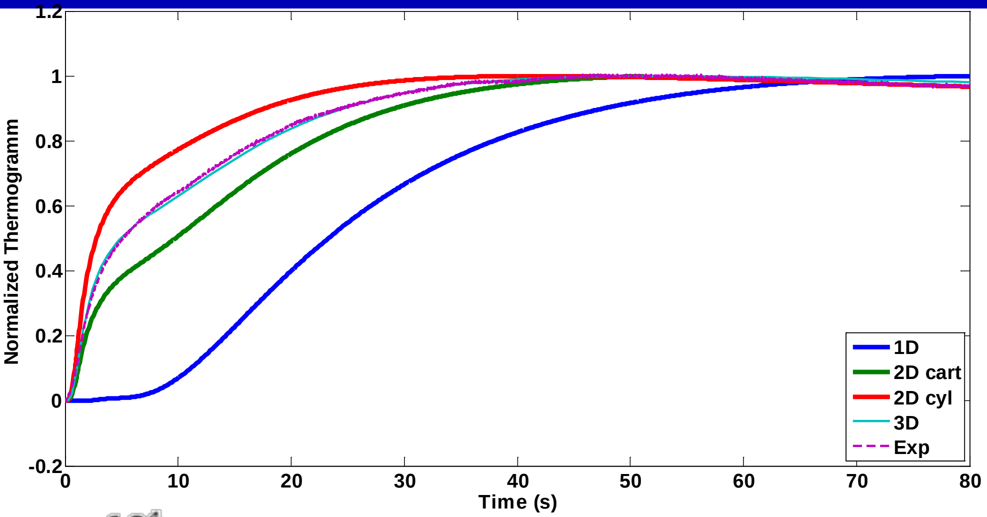


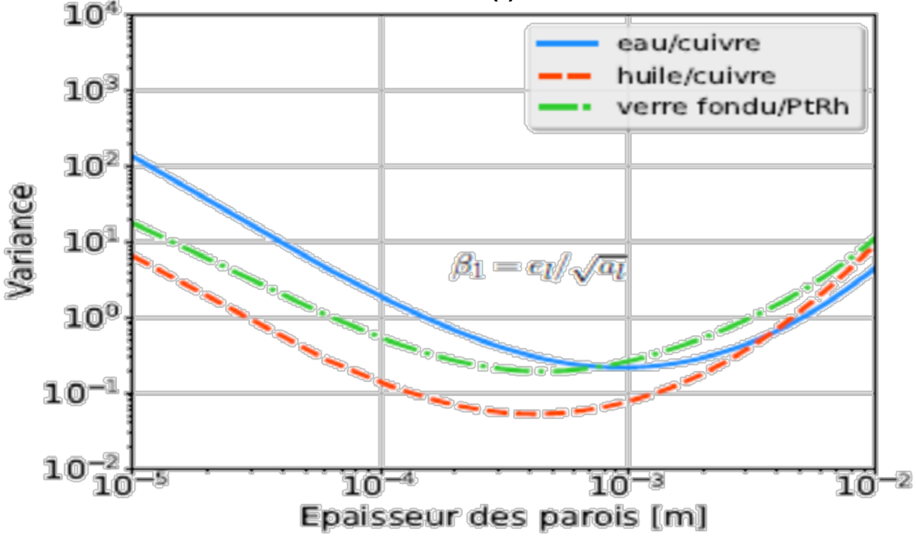




Modélisation

- De précédentes études sur la mesures de propriétés thermophysiques sur les liquides au LEMTA → épaisseur paroi optimale à 1 mm
- Géométrie complexe de la cellule (Court circuit thermique par les parois de platine) → modèle numérique 3D
- Estimation de la diffusivité thermique via un modèle numérique 3D sous Ansys® couplé avec un algorithme d'optimisation de Levenberg Marquardt (Matlab)



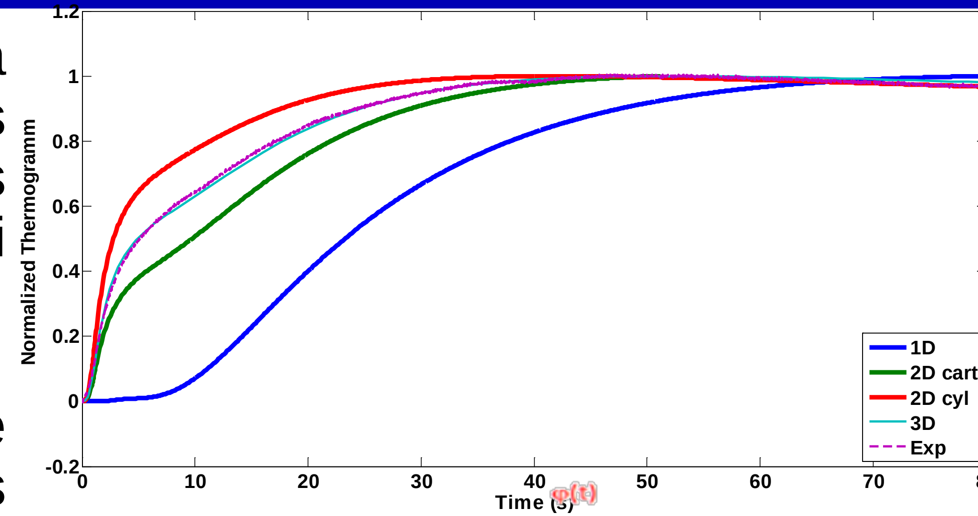


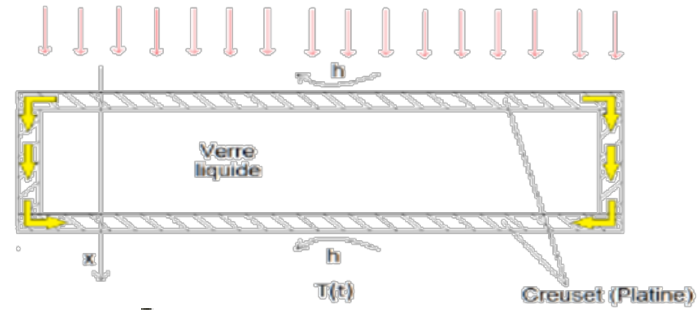
Modélisation

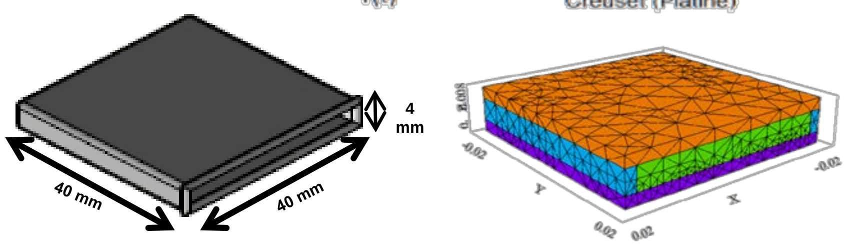
- De précédentes études sur la mesures de propriétés thermophysiques sur les liquides au LEMTA → épaisseur paroi optimale à 1 mm

- Géométrie complexe de la cellule (Court circuit thermique par les parois de platine) → modèle numérique 3D

- Estimation de la diffusivité thermique via un modèle numérique 3D sous Ansys® couplé avec un algorithme d'optimisation de Levenberg Marquardt (Matlab)

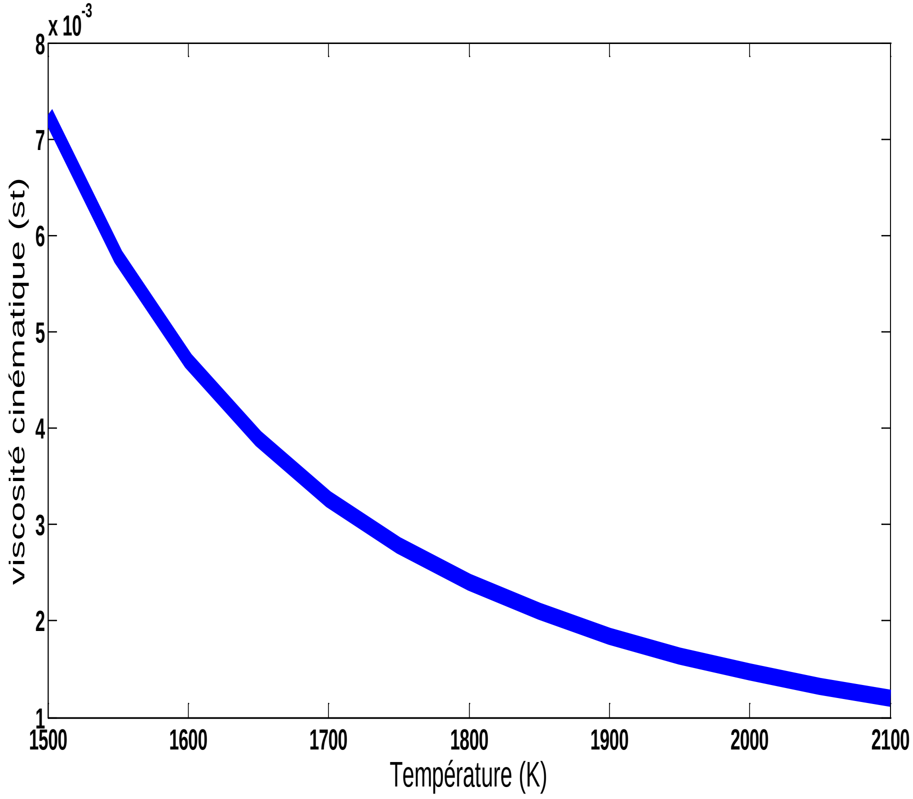


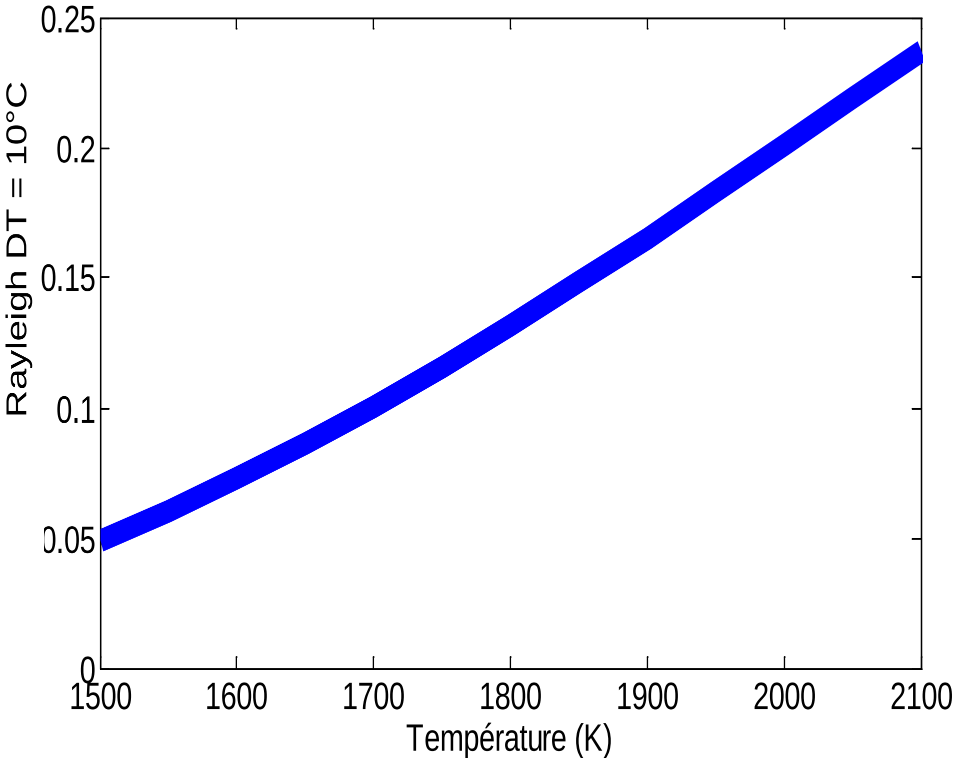




Modélisation

- Rayleigh dans le liquide au delà de 1200°C pour ΔT=10°C
  - Ra<0.25 << 1000 → peu de perturbations liées à la convection dans la cellule
  - **La convection dans le liquide durant la mesure est négligeable**





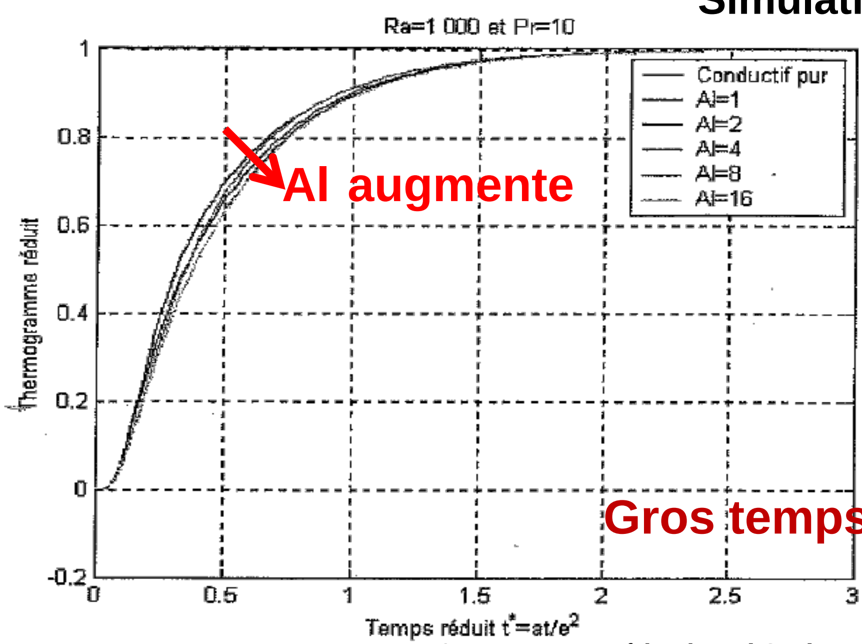
Modélisation

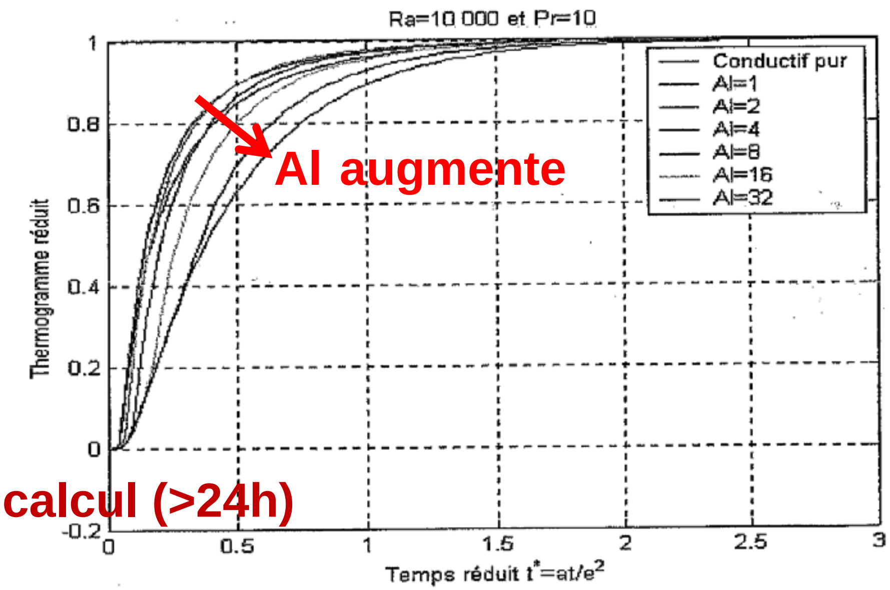
- Convection lors d'une estimation par méthode Flash
  - Influence du fluide (Ra et Pr)
    - Ra = 500 (ΔT=1°C) pour l'huile
    - Ra = 9000 (ΔT=10°C) pour l'eau
  - Influence du rapport d'allongement de la cellule ***Al***

$$Ra = \frac{g.\beta}{\nu.\alpha}.\Delta T.L^3 \quad Al = \frac{longueur\ cellule}{épaisseur\ \ fluide}$$

ΔT : difference de température entre face avant et face arrière

Simulation FLEXPDE





Gros temps de calcul (>24h)

•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

Figure 23 : *Simulations FlexPDE – "Step" de température* $\Delta T = 1°C$

Figure 22 : *Simulations FlexPDE – "Step" de température* $(\Delta T = 10°C)$

Modélisation

- Epaisseur optique τ>>1
  - Modèle purement conductif on identifie a_{app} sur le thermogramme en face arrière
  - Calcul de la diffusivité phonique et radiative λ_{ph} and λ_r via l' **approximation de Rosseland-Deissler** :

$$\lambda_r = \frac{4n^2\sigma T_{ext}^3 e}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} - 1 + \frac{3}{4}\beta e}$$

avec

$$\lambda_{app} = \lambda_r + \lambda_{ph}$$

Cp connu

Howell, J. R.; Siegel, R. & Menguc, M. P. (2010), *Thermal Radiation Heat Transfer*, CRC Press, Inc., Boca Raton, FL.

Modélisation

- Résolution de l'équation de la chaleur

$$div(\lambda_{ph}.\overrightarrow{grad}\,T) - div(\overrightarrow{q}_r) = \rho C_P(\frac{\partial T}{\partial t})$$

Avec $\vec{q}_r(r,t) = \int_{4\pi} L(r,\Delta)\overrightarrow{\Delta}d\Omega$

- Résolution de l'ETR par méthode approché

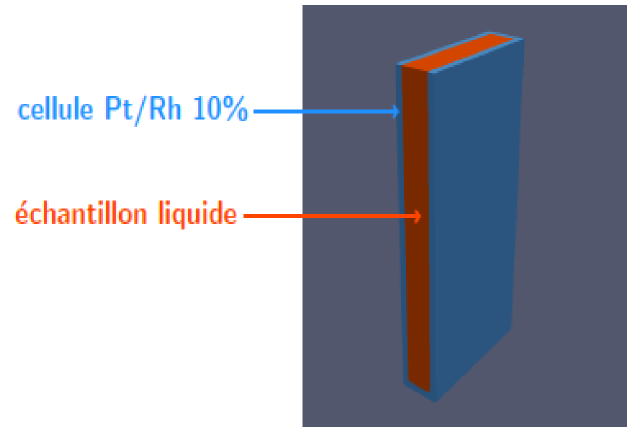
$$\frac{dL'}{ds} = \underbrace{-KL'(s)}_{\text{Perte par absorption}} + \underbrace{KL^0(T)}_{\text{Gain par réémission}}$$

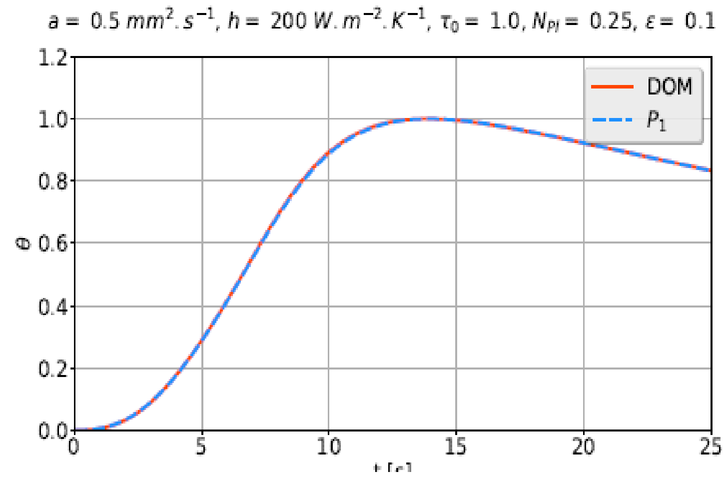
- Méthode approchée P.N
  - Approcher l'E.T.R par un système fini d'équations aux moments qui sont obtenues en projetant l'E.T.R par les puissances des cosinus directeurs de la luminance
  - Décomposer la luminance L'(s,ω) sous la forme d'harmoniques sphériques
  - On remplace L'(s,ω) par son développement série dans les différents moments de la luminance.
  - On tronque au premier terme (P1) et on intègre sur l'ange solide

→ **Implémenté sous ANSYS (numérique)**

Modélisation

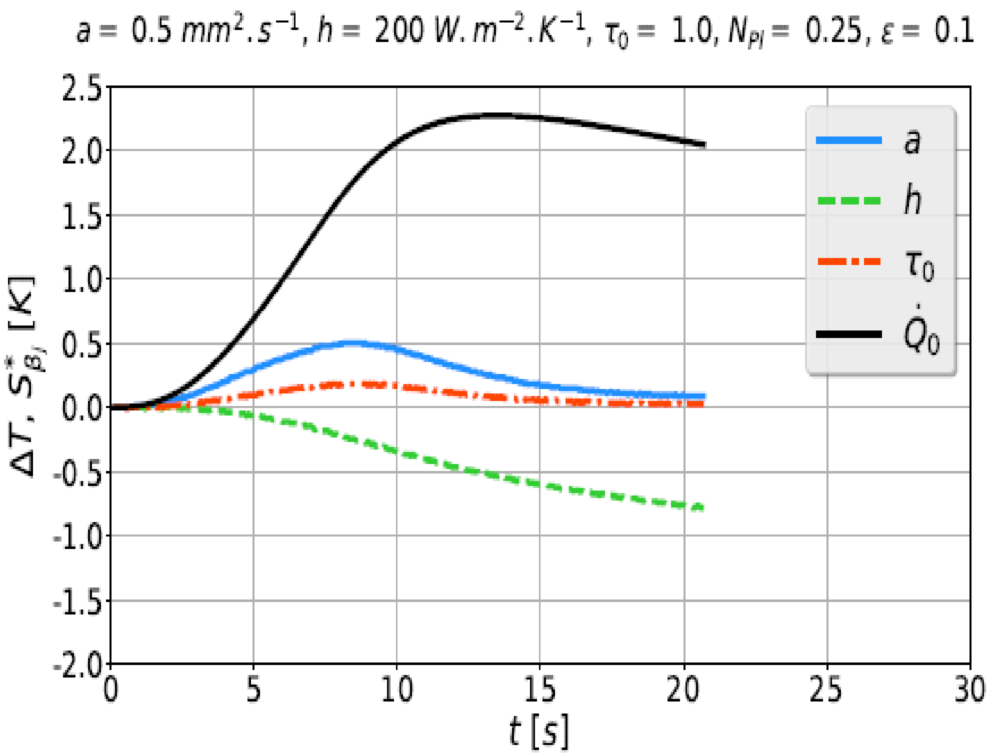
- Modèle direct implémenté dans le code commercial ANSYS Fluent v14.5 (UDFs)
- Domaine de calcul : plan de symétrie car tâche laser centrée
- Maillage 307k hexaèdres réguliers
- Pas de temps fixe inférieur à 50 ms
- Schémas numériques du 2nd ordre en espace et en temps

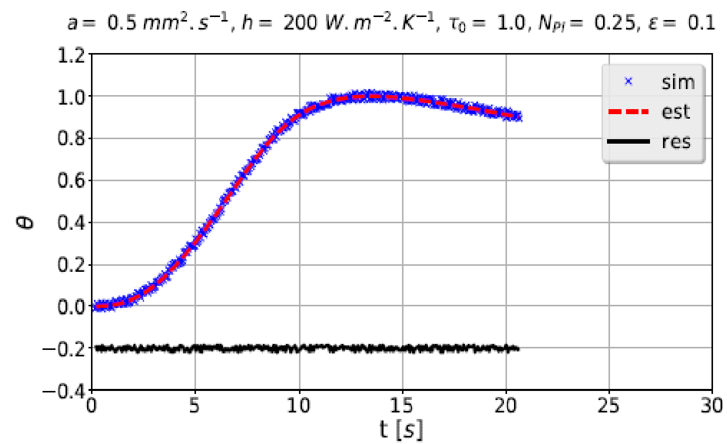


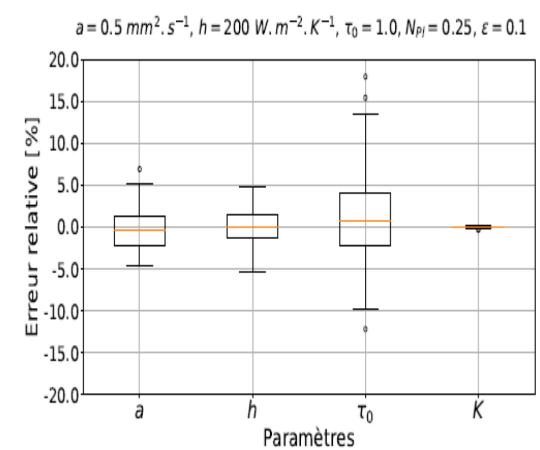


Modélisation

- Estimation de 4 paramètres





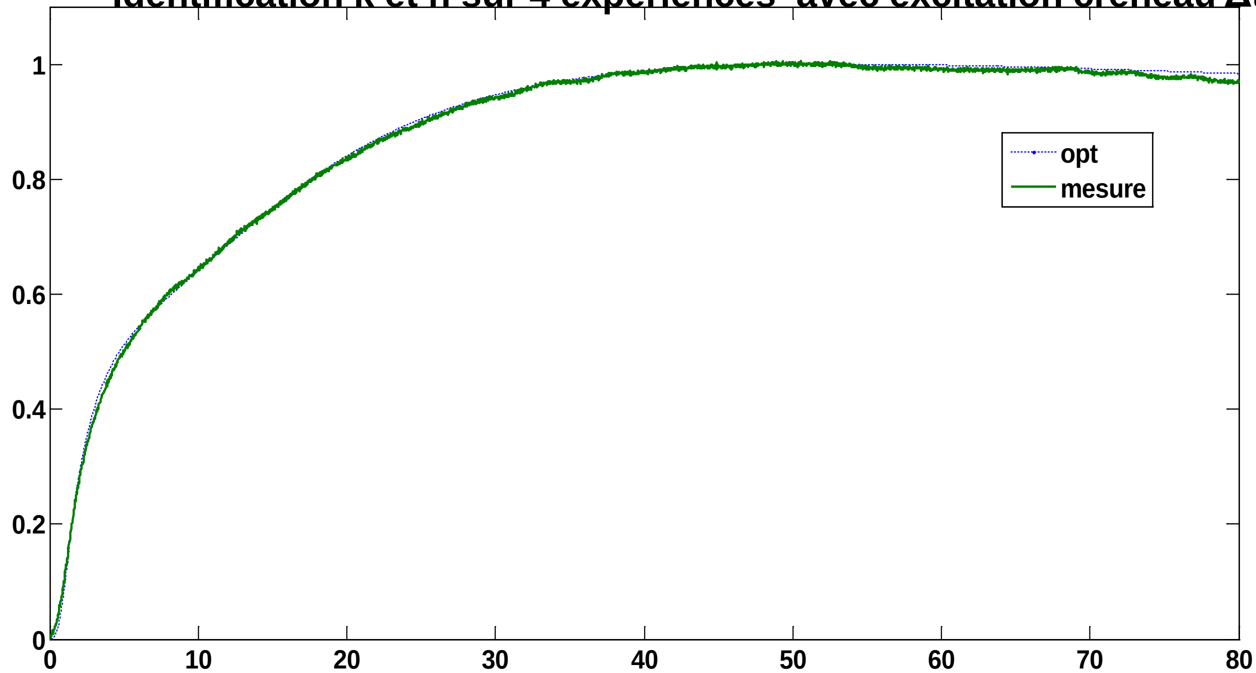


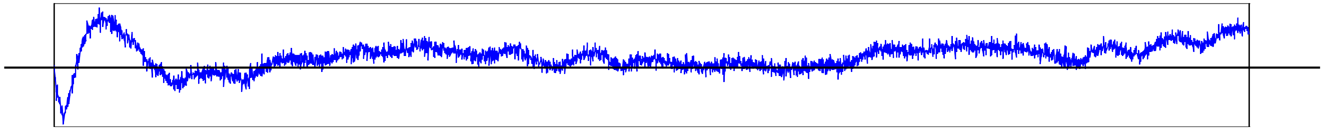
Résultats expérimentaux

- Essai de validation sur l'eau à température ambiante

Fluide modèle pour essai à l'ambiante gel eau + carbopol 0.15% masse

Identification k et h sur 4 expériences avec excitation créneau Δt = 0,9 s (ΔT $\Delta T_{arrière}$ =0,5°C)





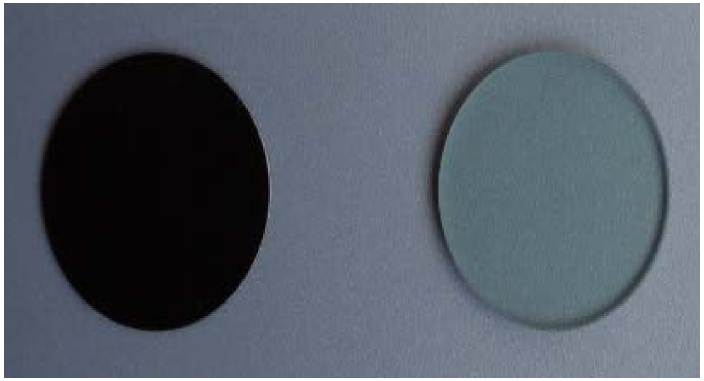
k (W/m/K)	h (W/m²/K)
0,629	9,862
0,613	12,642
0,623	8,215
0,596	8,541
Moyenne	
0,615 (0,015)	**9,815 (2,015)**

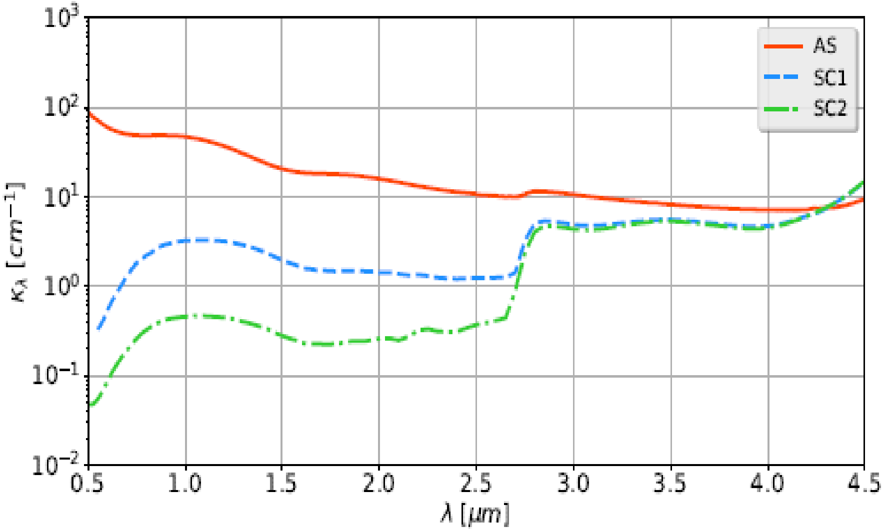
Valeur théorique à 25°C

k = 0.607 W/m/K (1,3% écart)

Résultats expérimentaux

- Echantillons:
  - AS : verre alumino-silicaté à très forte teneur en fer total (environ 5,4 %m) **τ>5**
  - SC1 : verre silico-sodo-calcique à teneur en fer modérée (environ 0,6 %m) **τ≈1**

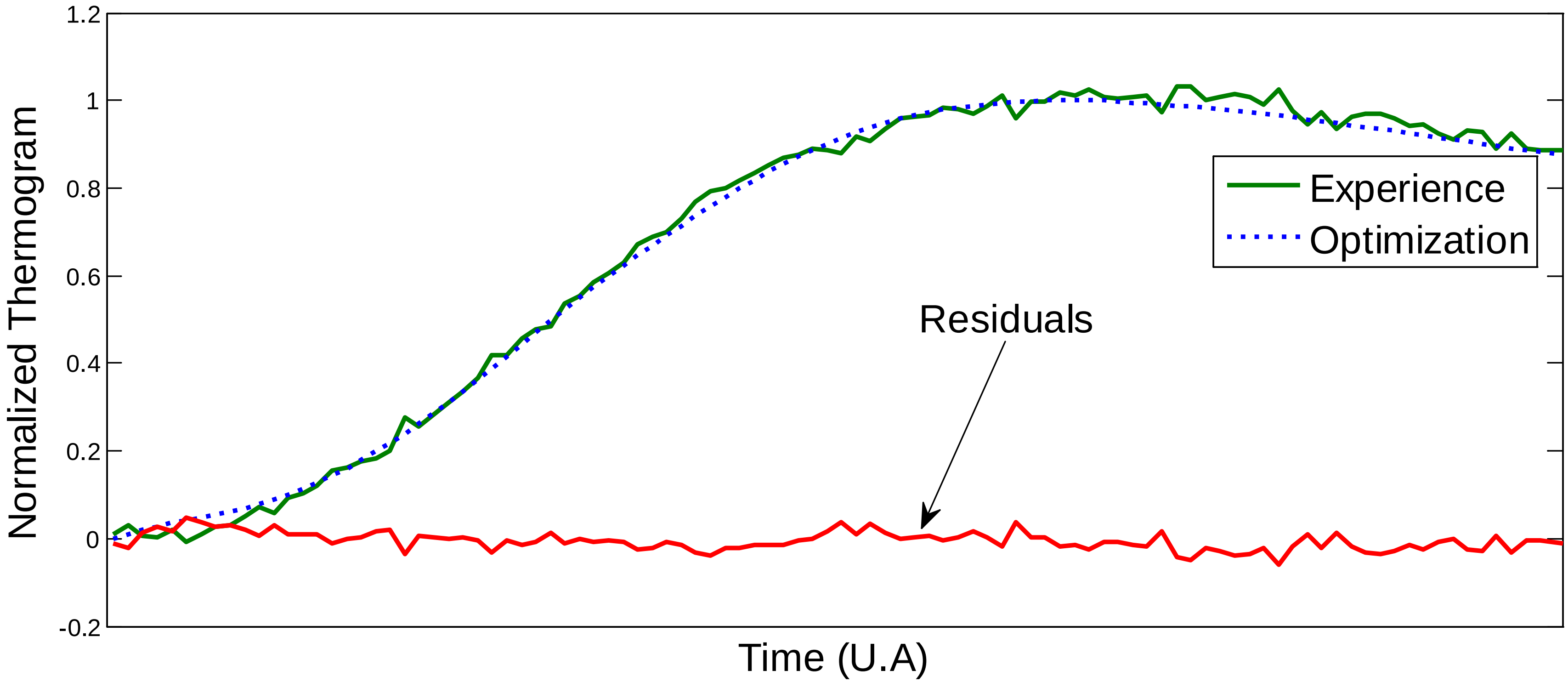




Spectres d'absorption à température ambiante

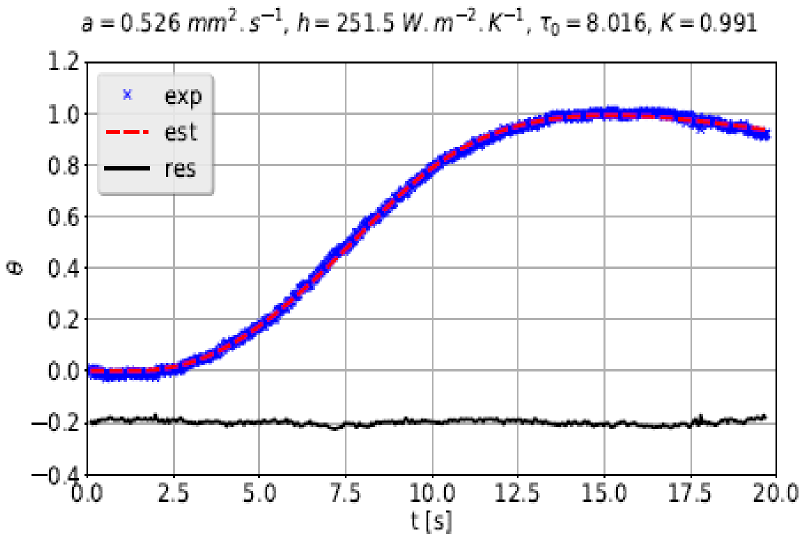
Résultats expérimentaux

- Echantillon forte épaisseur optique (τ>5)
  - Modèle purement conductif (Rosseland)
  - Bruit de mesure du au refroidissment Stirling du capteur de la camera IR

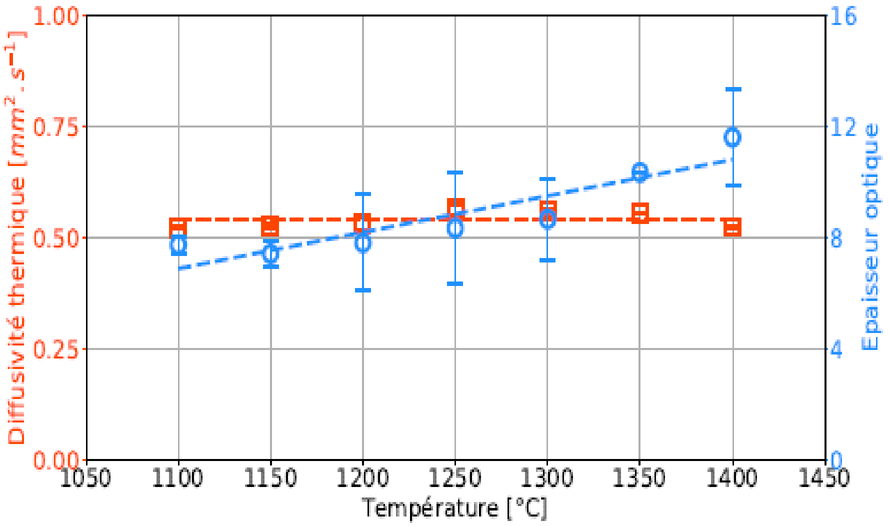


Résultats expérimentaux

- Echantillon AS (forte épaisseur optique)



Exemple d'estimation à 1100 °C



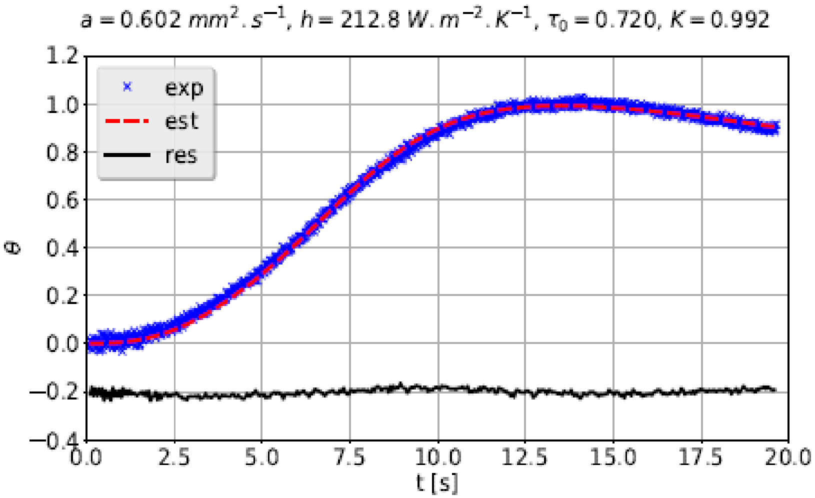
Diffusivité thermique et épaisseur optique estimées

- Résidus plats (i.e., non-signés) et de valeurs quasi nulles

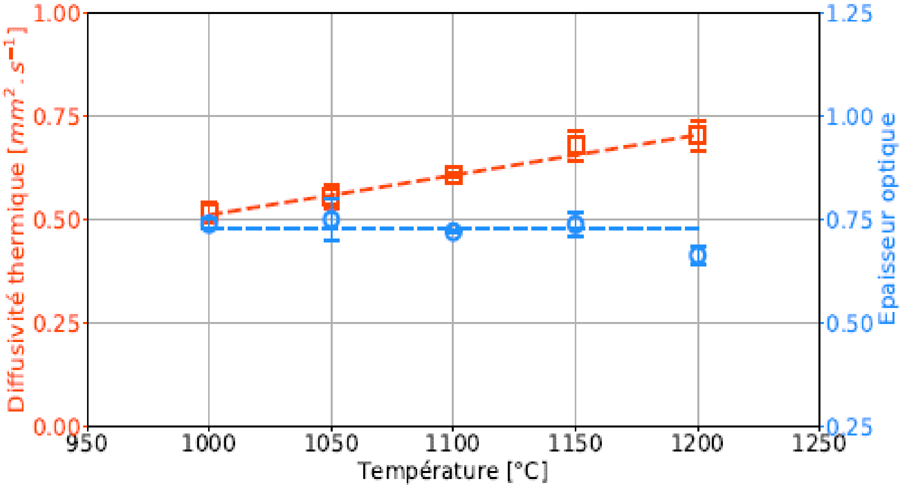
- $a = 0{,}54 \pm 0{,}02\,\mathrm{mm^2\,s^{-1}}$
- $k = 2{,}01 \pm 0{,}06\,\mathrm{W\,m^{-1}\,K^{-1}}$

Résultats expérimentaux

- Echantillon SC (Faible épaisseur optique)



Exemple d'estimation à 1100 °C

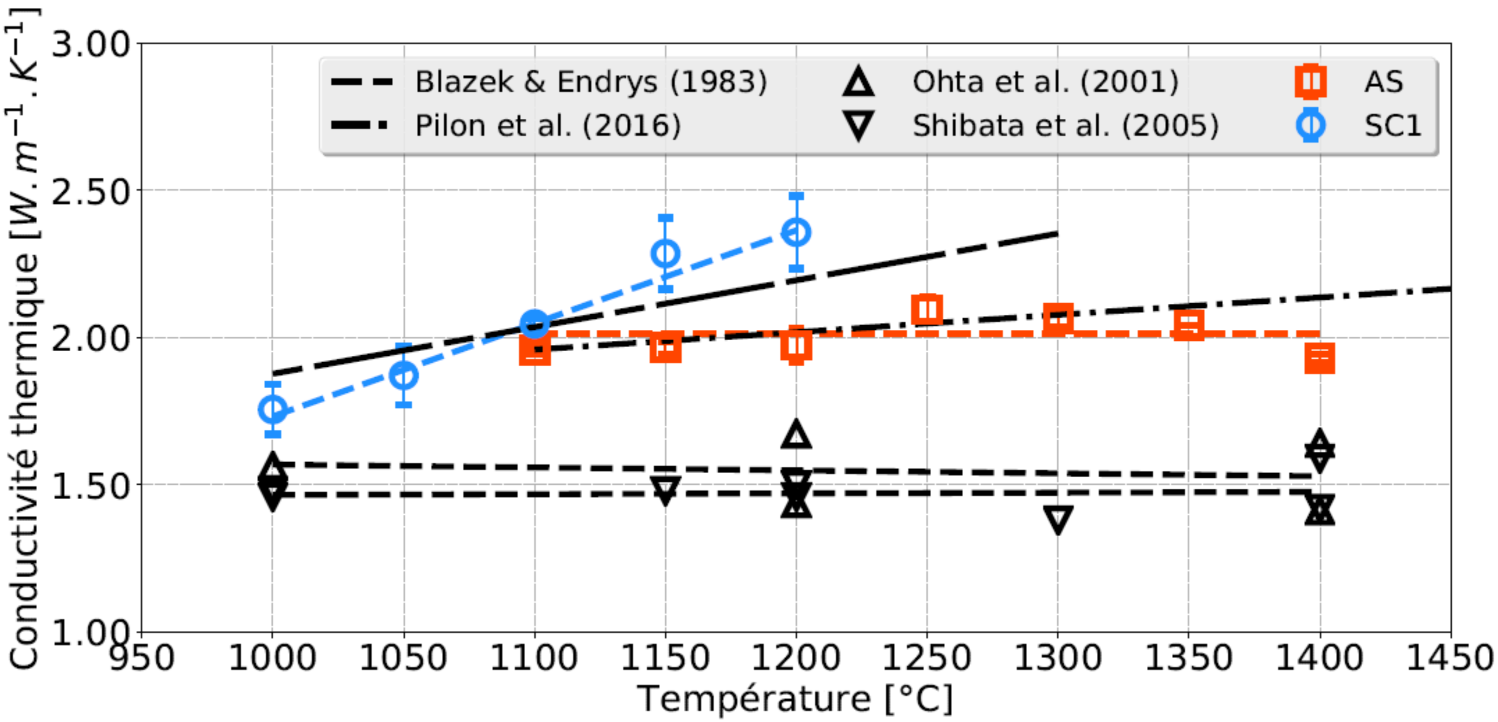


Diffusivité thermique et épaisseur optique estimées

- Résidus plats (i.e., non-signés) et de valeurs quasi nulles

- $a(T) = -0,718 + 9,65 \times 10^{-4}\ T$
- $k(T) = -2,29 + 3,16 \times 10^{-3}\ T$

Résultats expérimentaux



Blazek & Endrys (1983) : méthode du gradient thermique radial
Pilon *et al.* (2016) : méthode du gradient thermique linéaire
Ohta *et al.* (2001), Shibata *et al.* (2005) : méthode flash « face avant »

Conclusions et perspectives

Conclusion

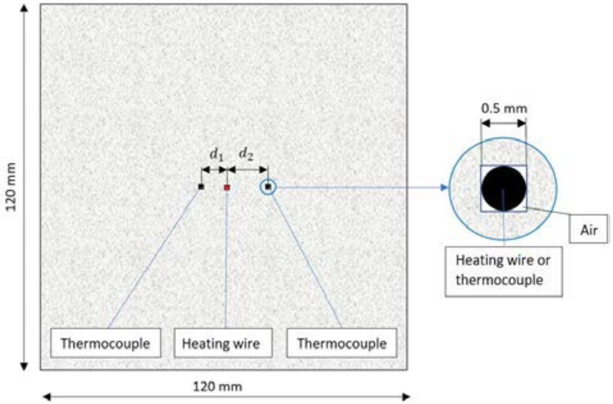
- La méthode de caractérisation développée et mise en oeuvre dans nos travaux permet d'estimer la diffusivité thermique ***phonique*** des verres et liquides silicatés à haute température en s'affranchissant de la connaissance de leurs propriétés radiatives.

- Nécessité de conforter la méthodes avec davantage de caractérisation des verres à iso-composition avec différentes teneurs en fer total

- **Perspectives** : mesure de conductivité thermique de céramique poreuse à haute température

High-temperature funace [Saint-Gobain website]

Insulating ceramic plates made of alumina (thickness : 100mm) [M. Schumann & L. San-Miguel, 2017]

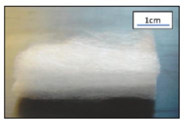


- **Fil chaud**

Perspectives

SilPower®

SilPower® sample
[SGQ data sheet, 2016]

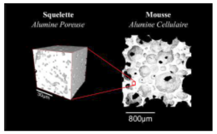


Quartzel® sample
[Y. Maanane et al., 2020]

- Low density ceramic made of 99.95% silica fibres (Quartzel® fibres)
- Developed by Saint-Gobain Quartz (**SGQ**)
- Up to 1200°C

NorFoam XPure®

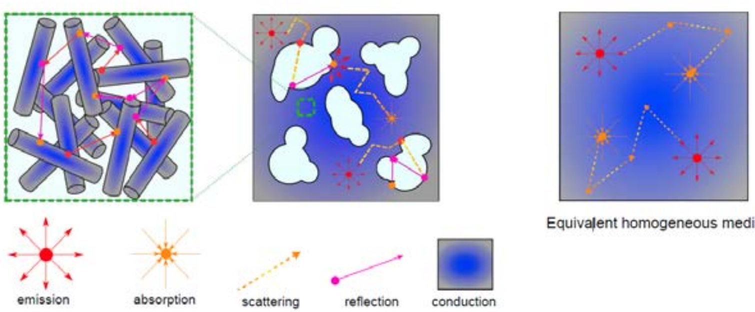
NorFoam sample
[Saint-Gobain Refractories website]



NorFoam Xpure microstructure
[PhD thesis, Z. K. Low, 2016, INSA Lyon]

- Open-porosity alumina foam (99.5% alumina)
- Developed by Saint-Gobain Performance Ceramics & Refractories (**PCR**)
- Up to 1650°C-1800°C

► Temperatures > 1000°C ⟹ Coupled heat transfer : conduction + volumetric radiation



Equivalent homogeneous medium

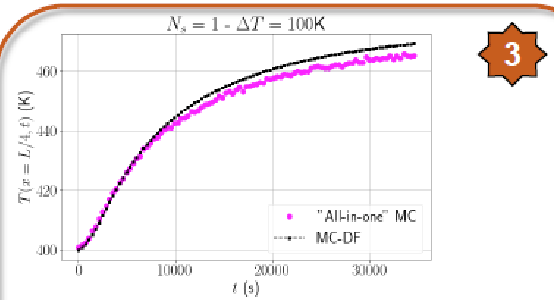
« All-in-one » MC[3] algorithm A1

Conduction (MC)
&
Linearized radiation (MC)

MC–FD[4] algorithm A2

Conduction (FD)
+
Non-linearized radiation (MC)

Fil Chaud



Conduction > Radiation
+
High ΔT = 100°C

Approche stochastique

L. Penazzi / O. Farges / Yves Jannot / B. Remy / V. Schick