

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ À

L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN INGÉNIERIE

PAR

DAVID-ALEXANDRE TREMBLAY

B.SC.

CARACTÉRISATION DE LA MOUILLABILITÉ DYNAMIQUE

ET DU TRANSFERT DE CHALEUR LORS DE L'INITIATION

DE LA SOLIDIFICATION DE L'ALUMINIUM

MARS 2009



### **Mise en garde/Advice**

Afin de rendre accessible au plus grand nombre le résultat des travaux de recherche menés par ses étudiants gradués et dans l'esprit des règles qui régissent le dépôt et la diffusion des mémoires et thèses produits dans cette Institution, **l'Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)** est fière de rendre accessible une version complète et gratuite de cette œuvre.

Motivated by a desire to make the results of its graduate students' research accessible to all, and in accordance with the rules governing the acceptance and diffusion of dissertations and theses in this Institution, the **Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)** is proud to make a complete version of this work available at no cost to the reader.

L'auteur conserve néanmoins la propriété du droit d'auteur qui protège ce mémoire ou cette thèse. Ni le mémoire ou la thèse ni des extraits substantiels de ceux-ci ne peuvent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

The author retains ownership of the copyright of this dissertation or thesis. Neither the dissertation or thesis, nor substantial extracts from it, may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

## RÉSUMÉ

La mouillabilité dynamique et les coefficients de transfert de chaleur d'interface ont été déterminés pour des gouttelettes d'aluminium se solidifiant sur des substrats de cuivre et d'acier dont certains possédaient des revêtements métalliques. Pour quantifier la mouillabilité dynamique, les facteurs d'étalement tirés des géométries des gouttelettes ont été utilisés. Quant à eux, les coefficients de transfert de chaleur d'interface ont été obtenus par la résolution de problèmes de conduction de chaleur inverse en utilisant les historiques de températures enregistrés à l'aide de thermocouple sous la surface des substrats.

Dans un premier temps, un modèle mathématique utilisant la méthode des différences finies afin de calculer les coefficients de transfert de chaleur d'interface a été développé et peaufiné grâce à une étude de sensibilité portant sur l'influence du nombre de dimension, des conditions limites du problème ainsi que du transfert de chaleur par convection dans la gouttelette. Il a été démontré que seul le nombre de dimensions du problème avait une influence sur les résultats des calculs des coefficients de transfert de chaleur pour le système à l'étude.

Par la suite, les essais physiques ont consisté à laisser tomber des gouttelettes d'aluminium liquide sur des substrats métalliques munis de thermocouples afin de caractériser le processus de solidification. Au cours de ces essais, les influences de trois paramètres ont été analysées, à savoir la nature du substrat, du revêtement et de l'atmosphère gazeuse dans laquelle les essais se sont déroulés. Pour chaque essai, le facteur d'étalement et le coefficient de transfert de chaleur d'interface ont été calculés et mis en relation afin de faire ressortir l'interdépendance de ces deux phénomènes dans des conditions expérimentales données.

Les résultats des essais ont démontré qu'il existe une relation entre le coefficient de transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique seulement dans certains cas. En effet, lorsque la nature de l'atmosphère est modifiée, la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur semblent corrélés. Cependant, en étudiant les influences des autres facteurs tels que la nature du revêtement et celle du substrat, aucun lien entre les mouillabilités dynamiques et les coefficients de transfert de chaleur n'a pu être démontré.

## REMERCIEMENTS

Ce travail de maîtrise a été réalisé sous la supervision du professeur Laszlo Kiss Ph.D. de l'Université du Québec à Chicoutimi et de Dominique Bouchard Ph.D. du Centre des Technologies de l'Aluminium (CTA). Le montage expérimental a été réalisé en collaboration avec Martin Pruneau et Jean-Paul Nadeau, tous deux agents techniques au CTA. Un soutien particulier de la part de George Payne (CTA) a grandement été apprécié pour la mise en place du montage expérimental. Le travail métallographique a été réalisé au CTA par Dany Drolet et Hélène Grégoire.

# TABLE DES MATIÈRES

|  |                   |
|--|-------------------|
| <b>RÉSUMÉ.....</b>   | <b><i>i</i></b>   |
| <b>REMERCIEMENTS .....</b>   | <b><i>iii</i></b> |
| <b>TABLE DES MATIÈRES .....</b>  | <b><i>iv</i></b>  |
| <b>LISTE DES FIGURES .....</b>   | <b><i>vii</i></b> |
| <b>LISTE DES TABLEAUX.....</b>   | <b><i>x</i></b>   |
| <b>NOMENCLATURE.....</b>   | <b><i>xi</i></b>  |
| <br><b>1. INTRODUCTION .....</b>   | <br><b>1</b>      |
| <br><b>2. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE .....</b>  | <br><b>4</b>      |
| 2.1. Procédés de solidification.....   | 4                 |
| 2.1.1. Les procédés par solidification sur un substrat.....                                    | 7                 |
| 2.1.1.1. Procédé par extraction de métal ( <i>melt extraction</i> ) .....                      | 8                 |
| 2.1.1.2. Procédés par rotation d'un moule cylindrique ( <i>melt spinning processes</i> ) ..... | 9                 |
| 2.1.1.3. Procédés de coulée en bande mince.....  | 10                |
| 2.1.1.4. Procédé de coulée verticale ( <i>DC casting</i> ) .....                               | 12                |
| 2.1.2. Les procédés de revêtement.....   | 13                |
| 2.1.2.1. Procédés par déposition thermique .....   | 13                |
| 2.1.2.2. Procédés par trempe dans un bain de métal liquide .....                               | 15                |
| 2.2. La mouillabilité .....  | 17                |
| 2.2.1. La technique de la goutte posée pour l'étude statique de la mouillabilité .....         | 17                |
| 2.2.2. La technique du « <i>drop-splat</i> » pour l'étude de la mouillabilité dynamique.....   | 20                |

|           |  |           |
|-----------|--|-----------|
| 2.3.      | Le transfert de chaleur .....  | 23        |
| 2.3.1.    | Le problème de conduction inverse appliqué à la solidification .....                               | 25        |
| 2.3.2.    | Montage utilisant l'expérience du « <i>drop-splat</i> » pour évaluer le transfert de chaleur ..... | 26        |
| <b>3.</b> | <b>THÉORIE .....</b>   | <b>28</b> |
| 3.1.      | Mouillabilité .....  | 28        |
| 3.1.1.    | Tension de surface et énergie de surface .....   | 29        |
| 3.1.2.    | Mouillabilité statique .....   | 32        |
| 3.1.3.    | Mouillabilité dynamique .....  | 35        |
| 3.1.3.1.  | <i>Angles de contact</i> .....   | 36        |
| 3.1.3.2.  | <i>Le travail d'adhésion</i> .....   | 38        |
| 3.1.3.3.  | <i>Le facteur d'étalement</i> .....  | 41        |
| 3.1.4.    | Facteurs influençant les mesures de mouillabilité .....  | 43        |
| 3.1.5.    | Rapport d'énergies et rapport de forces .....  | 46        |
| 3.2.      | Transfert de chaleur .....   | 48        |
| 3.2.1.    | Nombre de dimensions du problème .....   | 49        |
| 3.2.2.    | Évaluation du coefficient de transfert de chaleur d'interface .....                                | 51        |
| 3.2.2.1.  | <i>Résolution du problème classique de conduction inverse</i> .....                                | 52        |
| 3.2.2.2.  | <i>Résolution des problèmes directs</i> .....  | 54        |
| 3.2.2.3.  | <i>Conditions aux limites et initiales</i> .....   | 55        |
| 3.2.2.4.  | <i>Équations par la méthode des différences finis</i> .....  | 56        |
| <b>4.</b> | <b>EXPÉRIMENTATIONS .....</b>  | <b>62</b> |
| <b>5.</b> | <b>RÉSULTATS ET DISCUSSION .....</b>   | <b>69</b> |
| 5.1.      | Validations des calculs numériques .....   | 71        |
| 5.1.1.    | Validation de la routine 2D côté substrat pour tous nœuds excluant ceux de surface .....           | 71        |
| 5.1.2.    | Validation de la routine 2D côté substrat pour les nœuds de surface .....                          | 73        |
| 5.1.3.    | Validation de la routine 1D du côté de la gouttelette .....  | 74        |

|        |  |     |
|--------|--|-----|
| 5.2.   | Influence du nombre de dimensions de la modélisation sur le transfert de chaleur.....            | 77  |
| 5.3.   | Étude de sensibilité .....   | 80  |
| 5.3.1. | Conditions limites au dos du substrat.....   | 80  |
| 5.3.2. | Conditions limites au dessus de la gouttelette .....   | 81  |
| 5.3.3. | Influence de la convection dans la gouttelette.....  | 83  |
| 5.4.   | Influence de l'atmosphère sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique .....        | 85  |
| 5.5.   | Influence du revêtement sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique.....           | 89  |
| 5.5.1. | Revêtements sur des substrats de cuivre .....  | 90  |
| 5.5.2. | Revêtements sur des substrats d'acier outil H13 .....  | 97  |
| 5.6.   | Influence de la nature du substrat sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique ... | 101 |
| 5.7.   | Influence de la gouttelette sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique.....       | 104 |
| 6.     | CONCLUSION .....   | 106 |
| 7.     | RECOMMANDATIONS .....  | 110 |
|        | RÉFÉRENCES .....   | 111 |
|        | ANNEXE A – Équations mathématiques.....  | 116 |
|        | ANNEXE B – Paramètres expérimentaux.....   | 118 |
|        | ANNEXE C - Conference of Metallurgists of CIM, Calgary, 2005.....                                | 120 |

## LISTE DES FIGURES

|  |    |
|--|----|
| Figure 1 - Influence du taux de refroidissement sur la microstructure [11].....                      | 5  |
| Figure 2 - Exemple de procédé par extraction [11] .....  | 8  |
| Figure 3 - Exemple de procédé par rotation d'un moule cylindrique [8] .....                          | 9  |
| Figure 4 - Coulée en bande verticale .....   | 10 |
| Figure 5 - Schéma du procédé de coulée verticale .....   | 12 |
| Figure 6 - Schéma du procédé de déposition thermique de poudre par plasma .....                      | 14 |
| Figure 7 - Schéma montrant le rôle de la rugosité dans la solidification.....                        | 15 |
| Figure 8 - Schéma du ménisque dans le procédé par trempe dans un bain de métal liquide [16] .....    | 16 |
| Figure 9 - Exemples de techniques de déposition de gouttelettes [20] .....                           | 18 |
| Figure 10 - Représentation schématique de la méthode d'évaluation de l'adhérence [22].....           | 19 |
| Figure 11 - Évaluation de l'adhérence par la méthode du substrat inclinable .....                    | 21 |
| Figure 12 - Évolution des angles de contact [3].....   | 22 |
| Figure 13 - Représentation schématique des différentes résistances au flux de chaleur.....           | 24 |
| Figure 14 - Montage expérimental du « drop-splat » [35] .....  | 27 |
| Figure 15 - Diagramme des forces agissant sur une molécule d'un liquide [39].....                    | 30 |
| Figure 16 - Schéma de l'équivalence entre énergie de surface libre et tension de surface.....        | 31 |
| Figure 17 - Relation en l'angle de contact et les trois énergies d'interface.....                    | 32 |
| Figure 18 - Conditions de non-mouillabilité et de mouillabilité entre solide et liquide.....         | 33 |
| Figure 19 - Évolution de l'angle de contact d'une goutte d'aluminium sur un substrat de cuivre ..... | 38 |
| Figure 20 - Schéma de la méthode du substrat inclinable .....  | 39 |
| Figure 21 - Méthode de l'essai par cisaillement du couple gouttelette-substrat [22, 43] .....        | 40 |
| Figure 22 - Illustration des diamètres moyens dans le calcul du facteur d'étalement .....            | 42 |
| Figure 23 - Photo d'une gouttelette permettant de mesurer le diamètre après étalement .....          | 43 |
| Figure 24 - Principaux facteurs influençant l'étalement .....  | 45 |
| Figure 25 - Résultats de simulations: A) 1D ; B) 2D .....  | 50 |

|  |     |
|--|-----|
| Figure 26 - Système nodal pour le développement des équations par la méthode des différences finis .....         | 57  |
| Figure 27 - Représentation schématique du montage expérimental.....  | 62  |
| Figure 28 - Photos du creuset et de l'axe de graphite .....  | 63  |
| Figure 29 - Photo d'un substrat de cuivre sans revêtement ( $0.12\mu\text{m } R_a$ ) .....                       | 64  |
| Figure 30 - Photo du montage expérimental.....   | 65  |
| Figure 31 - L'effet du lissage sur l'évolution de la température dans le substrat.....                           | 70  |
| Figure 32 - Comparaison des profils de températures numériques et analytiques.....                               | 72  |
| Figure 33 - Comparaison des historiques de températures calculés avec Fortran et Procast .....                   | 74  |
| Figure 34 - Comparaison des calculs numériques et analytiques de l'épaisseur de métal solidifiée .....           | 76  |
| Figure 35 - Évolution des flux de chaleur pour des modélisations 1D et 2D .....                                  | 79  |
| Figure 36 - Évolution des flux de chaleur pour des modélisations 1D et 2D.....                                   | 81  |
| Figure 37 - Influence des pertes thermiques par convection et rayonnement à la surface de la gouttelette .....   | 82  |
| Figure 38 - Évolution de la forme d'une gouttelette après l'impact avec le substrat.....                         | 84  |
| Figure 39 - Influence du facteur multiplicatif $k_c$ sur le coefficient de transfert de chaleur d'interface..... | 84  |
| Figure 40 - Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement pour trois atmosphères.....             | 87  |
| Figure 41 - Coefficients de transfert maximaux et facteurs d'étalement pour trois atmosphères.....               | 88  |
| Figure 42 - Photos (même grossissement) montrant les différences dans l'uniformité des revêtements .....         | 90  |
| Figure 43 - Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement sur des substrats de cuivre .....       | 92  |
| Figure 44 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement pour substrats de Cu .....     | 93  |
| Figure 45 - Métallographie d'une gouttelette d'Al pur solidifiée sur un substrat de Cu revêtu d'Ag.....          | 95  |
| Figure 46 - Métallographie d'une gouttelette d'Al pur solidifiée sur un substrat de Cu revêtu de CrC.....        | 95  |
| Figure 47 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et aire moyen des grains des gouttelettes.....         | 96  |
| Figure 48 - A) Revêtement de CrC de $0.18\mu\text{m}$ ; B) Revêtement de TiN de $1.3\mu\text{m}$ .....           | 98  |
| Figure 49 - Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement pour des substrats d'acier H13.....     | 98  |
| Figure 50 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement sur substrats H13.....         | 100 |
| Figure 51 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement versus nombre de grains.....   | 101 |
| Figure 52 - Coefficients de transfert de chaleur d'interface pour des substrats d'acier H13 et de cuivre.....    | 102 |
| Figure 53 - Valeurs des facteurs d'étalement pour les revêtements appliqués sur les substrats différents .....   | 104 |

|   |            |
|---|------------|
| <i>Figure 54 - Représentation schématique des nœuds du substrat .....</i> | <i>116</i> |
|---|------------|

## LISTE DES TABLEAUX

|  |            |
|--|------------|
| <i>Tableau 1 - Propriétés mécaniques obtenues par les procédés de solidification rapide et conventionnels [9].....</i> | <i>6</i>   |
| <i>Tableau 2 - Propriétés thermophysiques des matériaux des substrats.....</i>   | <i>66</i>  |
| <i>Tableau 3 - Propriétés thermophysiques des matériaux constituant les revêtements.....</i>                           | <i>67</i>  |
| <i>Tableau 4 - Propriétés thermophysiques de l'aluminium constituant les gouttelettes .....</i>                        | <i>68</i>  |
| <i>Tableau 5 - Conductivités des gaz utilisés dans les essais.....</i>   | <i>68</i>  |
| <i>Tableau 6- Paramètres expérimentaux des essais caractérisant l'influence de l'atmosphère.....</i>                   | <i>86</i>  |
| <i>Tableau 7 - Méthodes de déposition des revêtements.....</i>   | <i>89</i>  |
| <i>Tableau 8 - Paramètres expérimentaux des essais avec substrats de cuivre .....</i>                                  | <i>91</i>  |
| <i>Tableau 9 - Paramètres expérimentaux des essais avec des substrats d'acier outil H13 .....</i>                      | <i>97</i>  |
| <i>Tableau 10 - Équations des nœuds du substrat.....</i>   | <i>116</i> |

## NOMENCLATURE

|               |   |
|---------------|---|
| $C_p$         | Capacité calorifique [ $\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ]                        |
| $d$           | Diamètre de l'aire sous la gouttelette en contact avec le substrat [mm]           |
| $D$           | Diamètre moyen de la gouttelette sphérique [mm]                                   |
| $\varepsilon$ | Émissivité  |
| $f_l$         | Fraction liquide  |
| $f_s$         | Fraction solide   |
| $\gamma$      | Tension de surface [ $\text{N m}^{-1}$ ]  |
| $h$           | Coefficient de transfert de chaleur d'interface [ $\text{W K}^{-1} \text{m}$ ]    |
| $k$           | Conductivité thermique [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ]                        |
| $k_c$         | Facteur multiplicatif à la conductivité thermique prenant compte de la convection |
| $k_{eff}$     | Conductivité thermique effective ( $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ )              |
| $k_l$         | Conductivité thermique de la phase liquide [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ]    |
| $k_s$         | Conductivité thermique de la phase solide [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ]     |
| $q$           | Flux de chaleur par unité de surface ( $\text{W m}^{-2}$ )                        |
| $\rho$        | Densité ( $\text{kg m}^{-3}$ )  |
| $\sigma$      | Énergie de surface [ $\text{N m}^{-1}$ ]  |
| $T$           | Température (K)   |
| $T_s^G$       | Température de la gouttelette à l'interface (K)                                   |
| $T_s^S$       | Température du substrat à l'interface (K)   |
| $T_L$         | Température du liquidus (K)   |
| $T_S$         | Température du solidus (K)  |
| $W_{ad}$      | Travail d'adhésion ( $\text{J/m}^2$ )   |
| $\xi$         | Facteur d'étalement   |

## 1. INTRODUCTION

Des dizaines de procédés de transformation mettent en jeu la solidification de l'aluminium au contact d'un substrat solide. Que ce soit la coulée en bande verticale, la coulée horizontale, le moulage sous pression ou par gravité, ces procédés ont la caractéristique commune de permettre la solidification du métal par un échange de chaleur à travers une interface métal liquide-moule métallique solide. Les procédés de déposition thermique de poudre et le soudage partagent également cette caractéristique.

Dans tous ces procédés, c'est le transfert de chaleur à l'interface durant les premières millisecondes qui régit la solidification du métal et les propriétés mécaniques et physiques résultantes. Or, cette solidification est fortement dépendante de certains phénomènes tels que la mouillabilité dynamique et le transfert de chaleur. Cette dépendance est telle qu'un mauvais contrôle de ces phénomènes risque d'amener des défauts dans les pièces, une microstructure inadéquate et, ultimement, des propriétés mécaniques et des cadences de production limitées. La compréhension et le contrôle de la mouillabilité dynamique et du transfert de chaleur sont donc fondamentaux pour ces procédés à

solidification sur substrat métallique et pourraient, par exemple, aider à maximiser la productivité d'une roue de coulée *Properzi*.

À ce jour, plusieurs études ont montré l'importance du rôle joué par le transfert de chaleur dans les procédés de solidification. Par exemple, Strezov et Herbertson [1] ont démontré l'existence d'une corrélation entre la microstructure et le flux de chaleur dans le procédé de coulée en bande. Parallèlement, des études sur la mouillabilité dynamique telles que celle d'Ebrill et al. [2] ont permis de développer des techniques de caractérisation de ce phénomène et ont mis en lumière son importance en solidification. Toutefois, ces études ont toutes traité le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique en tant qu'entités séparées. Seules quelques études ont abordé les deux phénomènes mais en utilisant des montages expérimentaux différents pour caractériser chacun d'eux tel qu'Evans et Strezov[3]. La dernière en lice, celle de Mughal et al. [4], présente plutôt des résultats de simulations où l'angle de contact d'un métal liquide sur un substrat solide est relié au taux de solidification de ce métal liquide.

L'objectif des présents travaux est donc, dans un premier temps, de développer une routine de calcul utilisant les différences finis afin de déterminer avec précision les coefficients de transfert de chaleur. Diverses validations ont, par la

suite, été menées afin d'assurer la conformité des équations numériques développées. Également, les influences du nombre de dimensions du problème, de la prise en compte du mode de transfert de chaleur par convection dans la gouttelette et des conditions limites du problème ont été analysées. À noter que cette routine est une amélioration importante par rapport aux travaux de Leboeuf [6] dont le présent travail est la continuité.

Par la suite, grâce à un montage expérimental inspiré de celui utilisé par Ebrill [5], les essais physiques ont été réalisés. Ces essais ont consisté en la solidification de gouttelettes d'aluminium pur sur des substrats de natures différentes ayant ou non, un revêtement. L'influence de l'atmosphère a également été considérée. Les caractérisations des phénomènes à l'étude, à savoir la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur d'interface, ont été déterminées par l'évaluation des facteurs d'étalement des gouttelettes après solidification et des coefficients de transfert de chaleur d'interface. Ces derniers ont été calculés en introduisant les historiques de température des substrats lors des essais dans la routine de calcul précédemment développée. Avant de livrer les résultats des expérimentations, une revue bibliographique et un survol théorique sont présentés.

## **2. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE**

### **2.1. Procédés de solidification**

Les dernières décennies ont été témoin de l'éclosion particulièrement importante du nombre de procédés de solidification. Tous ces procédés partagent une caractéristique commune, soit d'obtenir un transfert de chaleur particulièrement efficace et bien contrôlé. La nature du contact à l'interface métal liquide – substrat métallique revêt donc une importance capitale.

Depuis toujours, les scientifiques ont cherché à améliorer les propriétés des alliages par la recherche de nouveaux procédés de solidification et quelques revues sur le sujet ont été écrites par Jacobson et McKittrick [7] et Collins et Wronski [8]. Hormis l'indéniable avantage d'augmenter la productivité, les nouveaux procédés de solidification permettent de modifier significativement la microstructure, ce qui résulte en des propriétés mécaniques accrues [9]. Ces modifications microstructurales sont la réduction de la taille des grains (Figure 1), la minimisation des précipités grossiers, l'augmentation de la solubilité solide, le raffinement de la ségrégation et le développement de phases métastables conduisant à des matériaux ayant des propriétés mécaniques et physiques très intéressantes [10].

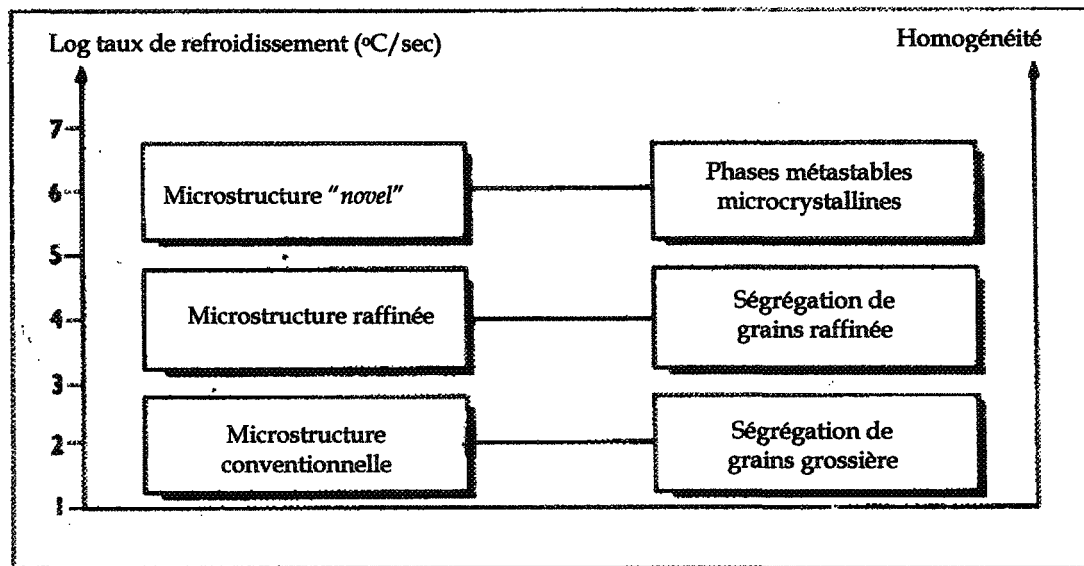


Figure 1 - Influence du taux de refroidissement sur la microstructure [11]

Dans plusieurs cas, l'optimisation de la solidification passe par l'augmentation du taux de solidification. En ce sens, le raffinement de la microstructure croît avec le taux de solidification et cet incontestable avantage est expliqué par le fait que l'augmentation de la vitesse de solidification augmente le niveau de surfusion [11]. Cela a pour effet d'augmenter le nombre de sites de germination mais de restreindre le temps disponible pour la croissance de ces germes. Il en résulte une microstructure à grains fins qui peuvent, dans certains cas, atteindre  $0.1\mu\text{m}$ .

Également, une solidification rapide étend les limites de solubilité solide, permettant ainsi l'obtention de nouvelles structures métastables [11]. Ces

structures peuvent alors se décomposer par un traitement thermique adéquat et ainsi produire un durcissement structural.

Une solidification rapide des alliages d'aluminium produit sensiblement les mêmes effets bénéfiques qu'aux autres métaux. Toutefois, c'est au niveau des gains en propriétés mécaniques que les alliages d'aluminium se démarquent en raison de leur aptitude marquée pour le durcissement structural et par solution solide. Monteiro [9] a étudié certains alliages d'Al-Mg, d'Al-Mn et d'Al-Zn.

Pour ces alliages solidifiés rapidement, les études de Monteiro [9] ont démontré des améliorations substantielles (Tableau 1) au point de vue des caractéristiques structurales et des propriétés mécaniques comparativement aux alliages mis en forme de façon conventionnelle. Par exemple, la limite ultime de l'alliage 7050 est

Tableau 1 - Propriétés mécaniques obtenues par les procédés de solidification rapide et conventionnels [9]

| Alliage | Procédé de solidification | Limite ultime (MPa) | %   | Microdureté Vickers (Kg/mm <sup>2</sup> ) |
|---------|---------------------------|---------------------|-----|---|
| 3003    | Rapide                    | 69.2+3.5            | 11  | 34.7+1.7                                  |
|         | Conventionnel             | 50-56               | 6-8 | 28-31                                     |
| 219     | Rapide                    | 159.6+8.0           | 8   | 66.2+3.3                                  |
|         | Conventionnel             | 80-95               | 3-4 | 55-60                                     |
| 7050    | Rapide                    | 227.8+9.5           | 7   | 90.9+4.5                                  |
|         | Conventionnel             | 100-130             | 4-5 | 65-70                                     |

est plus que doublée lorsque celui-ci est solidifié selon un procédé de solidification rapide. Monteiro [9] explique ces résultats par les changements microstructuraux (affinement de la taille des grains, expansion de la solubilité solide et dispersion uniforme des précipités fins) engendrant des champs de déformation dans la matrice et augmentant le nombre de défauts d'empilements dans le réseau cristallin. Conséquemment, les mouvements des dislocations s'en trouvent bloqués et la résistance mécanique est accrue. Le degré de durcissement des procédés de solidification conventionnels est, quant à lui, limité par la faible solubilité solide et la tendance à la ségrégation de plusieurs éléments d'alliage.

D'une manière générale, dans tous procédés de solidification, la chaleur doit être extraite efficacement du métal en surfusion par l'extraction de celle-ci sur une surface externe. À partir de ce principe, il existe plusieurs classes de procédés tels que les procédés de solidification sur un substrat et les procédés de revêtements. Quelques exemples de procédés appartenant à ces classes sont présentés ici.

### 2.1.1. Les procédés par solidification sur un substrat

Dans ces procédés, le métal liquide est mis en contact intime avec un substrat généralement refroidit en son cœur afin de conserver un important gradient thermique, force motrice de la solidification. Le contrôle des nombreux paramètres,

tels que la nature de la surface du moule ou le taux de refroidissement de celui-ci, demande une bonne compréhension de la dynamique de la solidification. Plusieurs procédés industriels sont basés sur ce principe et quelques-uns sont présentés ci-après.

#### 2.1.1.1. Procédé par extraction de métal (*melt extraction*)

Les fils et les rubans minces peuvent être mis en forme par ces procédés. Une mince couche de métal est solidifiée au contact d'un cylindre rotatif effleurant la surface d'un bain de métal liquide tel qu'illustré à la Figure 2 [11].

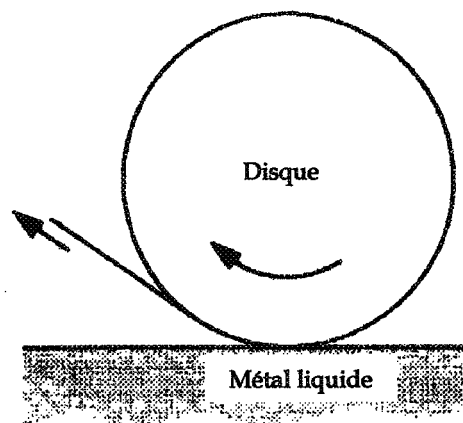


Figure 2 - Exemple de procédé par extraction [11]

À la contraction du métal qui se solidifie, la bande de métal se détache de la périphérie du cylindre. Les produits obtenus par ces procédés continus ont des

sections rectangulaires et leurs continuités requièrent un contrôle très précis de la position du cylindre par rapport à la surface du bain de métal.

### 2.1.1.2. Procédés par rotation d'un moule cylindrique (*melt spinning processes*)

Une grande variété de procédés est basée sur la rotation d'un moule cylindrique sur lequel un mince jet de métal est déposé (Figure 3).

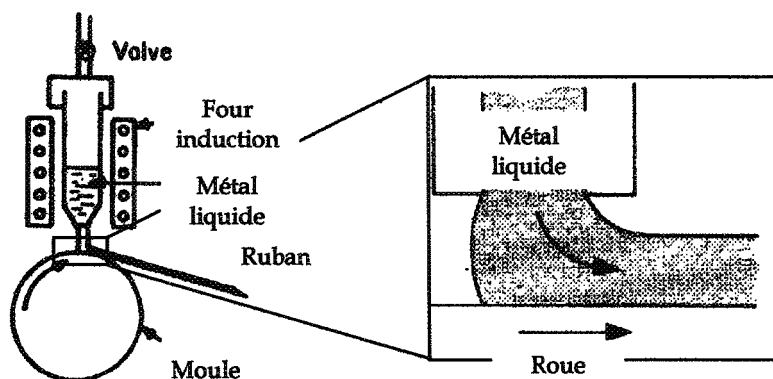


Figure 3 - Exemple de procédé par rotation d'un moule cylindrique [8]

Ce procédé produit normalement de fins rubans de métal. Les taux de refroidissement peuvent atteindre plusieurs centaines de degrés Celsius par seconde si le ruban produit est de faible épaisseur (15-100  $\mu$ m). Cette technique est utilisée pour la production de long ruban continu d'alliage d'acier, d'aluminium, de cuivre, titane, ect. C'est également sur ce principe que repose la technologie *Properzi* de production de fils. En raison de la minceur des sections produites et des

hauts taux de refroidissement en jeu, le contrôle simultané de la mouillabilité dynamique et du transfert de chaleur à l'interface cylindre-métal régit la qualité des produits finis.

### 2.1.1.3. Procédés de coulée en bande mince

Cette catégorie de procédé a fait l'objet de travaux ces dernières années. L'Institut des Matériaux Industriel (IMI-CNRC) à Boucherville a notamment contribué à développer ce procédé qui peut produire des feuilles métalliques de 2 à 5mm d'épaisseur [12]. La Figure 4 illustre schématiquement le procédé de coulée en bande verticale.

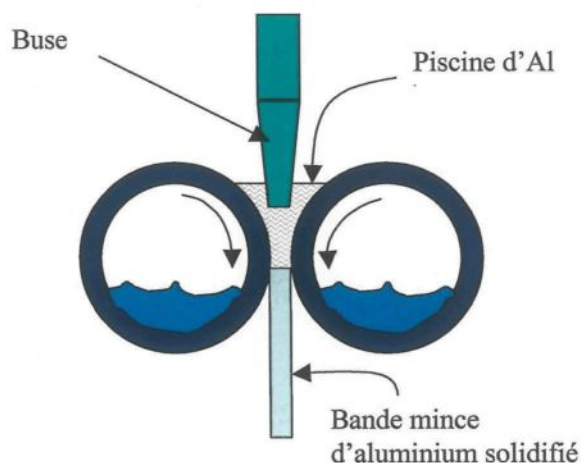


Figure 4 - Coulée en bande verticale

Dans ce procédé, l'aluminium en fusion est amené par une buse et forme une piscine de métal liquide. Deux rouleaux refroidis intérieurement par de l'eau

tournent de manière à entraîner le métal hors de la piscine. Le métal liquide fait contact avec les rouleaux en mouillant leurs surfaces. Un transfert de chaleur s'établit alors entre le métal et les rouleaux. Ce transfert de chaleur est d'autant plus important que le contact rouleau-métal est intime [7] et entraîne la solidification rapide du métal à la surface des rouleaux. La solidification s'achève lorsque les deux épaisseurs de métal solidifiées, une pour chaque rouleau, entrent en contact et se joignent l'une à l'autre. Ceci se produit lorsque l'espace entre les deux rouleaux est à son minimum (et où la pression exercée par ceux-ci est à son maximum).

Li et Thomas [13] ont démontré mathématiquement et expérimentalement que le transfert de chaleur dans le procédé de coulée en bande est principalement contrôlé par le coefficient de transfert de chaleur d'interface entre le métal se solidifiant et le moule et que ce coefficient diminue en fonction du temps de contact. Également, ils ont établi que la présence de revêtements (Cr et Ni) sur la roue de coulée affectaient significativement la température de la roue, donc la solidification.

#### 2.1.1.4. Procédé de coulée verticale (*DC casting*)

Ce procédé de solidification est largement utilisé pour les alliages d'aluminium. La coulée verticale a l'avantage de permettre d'importantes cadences de production. Dans ce procédé, le métal est amené dans le siège du moule (Figure 5). Aussitôt que les premiers kilogrammes de métal sont solidifiés, le pied du lingot est formé. Le lingot peut alors commencer sa descente dans le puits de coulée. L'alimentation en métal se poursuit par le haut tandis que le lingot croît par le bas tel qu'illustré à la figure suivante.

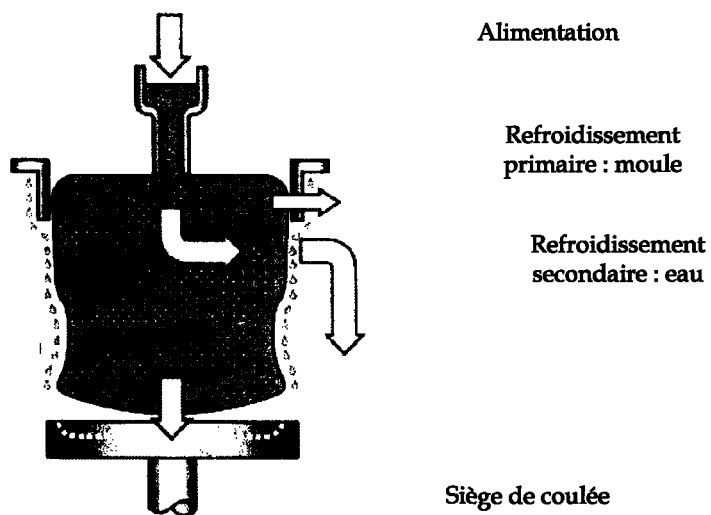


Figure 5 - Schéma du procédé de coulée verticale\*

---

\* Schéma tiré du manuel *DC Casting Course* de Rio Tinto Alcan

Le refroidissement primaire est assuré par le contact du métal avec le moule, généralement fabriqué en cuivre. Le refroidissement secondaire est, quant à lui, assuré par l'eau projeté sur le pourtour du lingot. Les paramètres de refroidissement tels que la température du moule, la lubrification, les débits d'eau, la rugosité, etc. sont critiques car ils déterminent l'épaisseur de l'écorce et conséquemment, la résistance du lingot qui doit supporter son propre poids.

## 2.1.2. Les procédés de revêtement

### 2.1.2.1. Procédés par déposition thermique

Pour certaines applications de résistance à la corrosion ou à l'usure ou pour simplement modifier les propriétés esthétiques, il est parfois judicieux de ne traiter que la surface des matériaux. Les procédés par déposition thermique sont souvent utilisés pour de telles applications. Dans ces procédés, la poudre est chauffée entre des électrodes et fusionnée. La poudre est ensuite projetée à de grandes vitesses sur une surface à revêtir à l'aide d'un gaz porteur, par exemple un plasma (Figure 6).

Les particules possédant de fortes vitesses entrent en contact avec le substrat et s'écrasent sur celui-ci adoptant ainsi une forme de crêpe [14]. Les gradients de chaleur entre les particules et le substrat sont énormes, les particules sont minces et

les transferts de chaleur très élevés. La solidification est donc quasi instantanée. Des milliers de particules solidifiées de cette façon s'empilent et forment le revêtement protecteur.

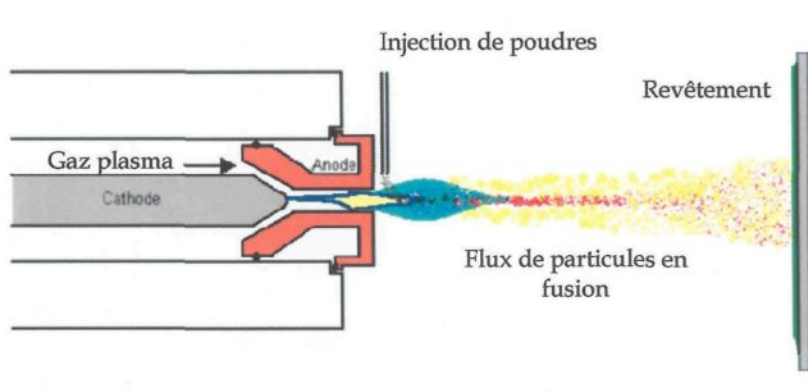


Figure 6 - Schéma du procédé de dépôt thermique de poudre par plasma <sup>†</sup>

Kamnis et Gu [15] ont développé un modèle permettant d'étudier l'étalement de gouttelettes d'étain sur un substrat d'acier inoxydable pour ce type de procédé. Par comparaison avec des résultats expérimentaux, ils ont conclu que la solidification des gouttelettes est significativement affectée par la résistance thermique de contact entre le substrat et la gouttelette. Qui plus est, cette résistance dépend fortement de l'air trappé dans les aspérités du substrat. Conséquemment, plus la rugosité du substrat est importante, plus la quantité d'air trappé croît, entraînant ainsi une résistance thermique plus élevée (Figure 7).

<sup>†</sup>[www.gordonengland.co.uk/ps.htm](http://www.gordonengland.co.uk/ps.htm)

Cette fois encore, la mouillabilité dynamique et le transfert de chaleur sont des facteurs importants car l'étalement des particules de métal, la qualité du contact à l'interface et la vitesse de solidification en dépendent.

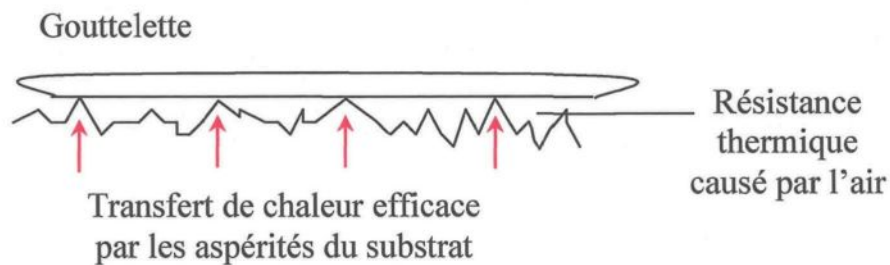


Figure 7 – Schéma montrant le rôle de la rugosité dans la solidification

#### 2.1.2.2. Procédés par trempe dans un bain de métal liquide

Tel qu'illustré à la Figure 8, le principe des procédés par trempe dans un bain de métal liquide repose sur la formation d'une mince couche métallique sur le substrat dont l'uniformité est critique. Un revêtement d'épaisseur non-uniforme peut affecter la formabilité du produit tandis qu'une discontinuité dans le revêtement nuira grandement à la résistance à la corrosion [16-17]. L'importance de la mouillabilité dynamique est clairement reconnue dans ce type de procédé et joue un rôle clé dans l'établissement d'un ménisque stable et uniforme à l'entrée du bain de métal liquide.

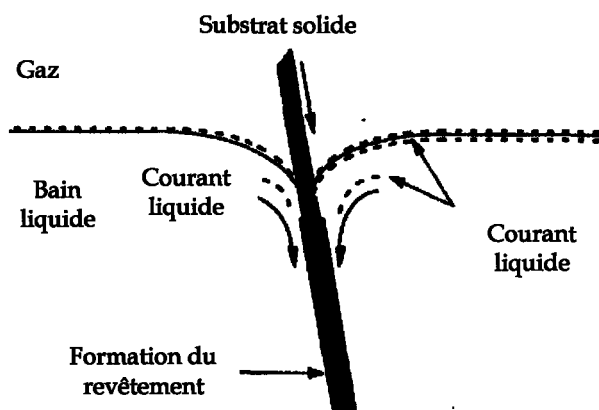


Figure 8 - Schéma du ménisque dans le procédé par trempe dans un bain de métal liquide [16]

Ebrill et al. [16] ont également montré l'influence de la température du substrat sur le coefficient de transfert de chaleur d'interface et sur la mouillabilité dynamique. Pour ce faire, ils ont utilisé deux montages expérimentaux différents. Celui permettant de caractériser le transfert de chaleur est similaire à celui utilisé par Bouchard et al. [12] et consiste en un substrat instrumenté plongé dans un bain de métal liquide, en l'occurrence un alliage Al-Zn-Si. Les températures enregistrées par les thermocouples permettent les calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface. En ce qui a trait au montage utilisé par Ebrill et al. [16] pour étudier la mouillabilité dynamique, il fait l'objet d'une discussion à la section 4.

## **2.2. La mouillabilité**

La mouillabilité est la capacité d'un liquide à s'étendre sur une surface solide [18]. Il existe deux types de mouillabilité, la mouillabilité statique et la mouillabilité dynamique. En mouillabilité statique, il y a équilibre thermique, chimique et mécanique entre le liquide et le solide. C'est tout le contraire avec le concept de mouillabilité dynamique où subsistent des gradients thermique, chimique et/ou mécanique entre le liquide et le solide. Pour les deux types de mouillabilité, les méthodes de caractérisation peuvent différer et ce sont ces différences qui sont ici présentées. Les explications théoriques sur les concepts de mouillabilité se retrouvent aux sections 3.1.2 et 3.1.3.

### **2.2.1. La technique de la goutte posée pour l'étude statique de la mouillabilité**

La technique de la goutte posée est largement répandue pour l'évaluation de la mouillabilité statique de liquides sur différents solides et ce, sous diverses conditions de température, d'atmosphère, etc. Elle consiste à déposer une goutte sur la surface plane d'un substrat, le tout étant effectué sous une atmosphère contrôlée et à une température donnée. Les méthodes de déposition sont très variées telles qu'illustrées à la Figure 9. Les méthodes I et II ne requièrent aucun équipement particulier. Ils consistent à fusionner une gouttelette d'un matériau à bas point de fusion par l'entremise d'un support métallique chauffé. La technique

III est également assez simple car elle nécessite seulement une bobine à induction dans lequel un fil du matériau à l'étude est introduit. Toutefois, la taille des gouttelettes est difficile à contrôler. Les techniques IV, V et VI sont basées sur le mécanisme d'une seringue pour libérer une gouttelette et sont bien adaptées pour l'étude de matériaux à hauts points de fusion grâce à l'utilisation de matériaux réfractaires pour le montage. Peu importe la technique utilisée, de tels essais permettent généralement d'obtenir la tension de surface, l'étalement ou l'angle de contact, autant de notions reliées à la mouillabilité statique [19].

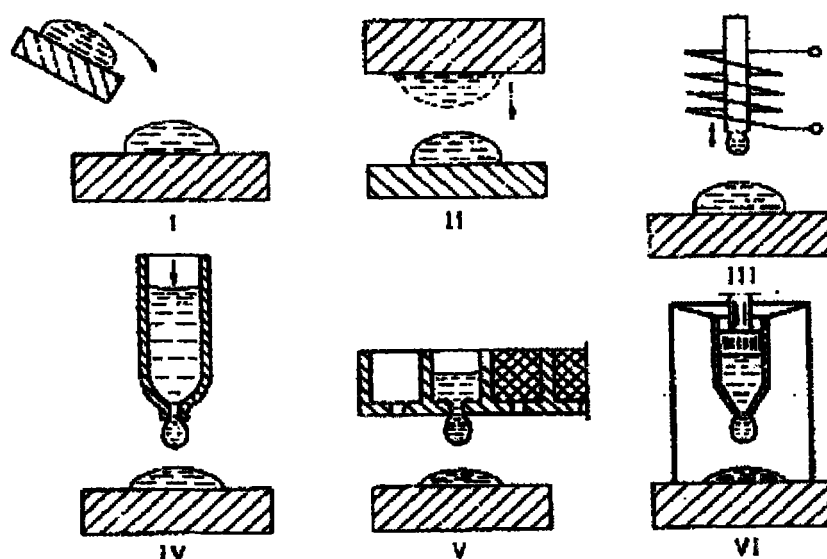


Figure 9 - Exemples de techniques de déposition de gouttelettes [20]

Anson et al. [21] ont utilisé cette technique pour évaluer les tensions de surface d'alliages d'aluminium de fonderie. Sobczak et al. [22] ont, quant à eux, étudié la

mouillabilité de gouttelettes d'alliages d'étain sur des substrats de cuivre afin d'évaluer les conditions optimales de brasage de ces métaux. Dans leurs travaux, ils ont placé un morceau d'étain sur un substrat et ont porté le couple à une température supérieure à celle de fusion de l'étain. Grâce à une caméra, ils ont pu, une fois l'équilibre thermique atteint, mesurer l'angle de contact entre la goutte d'étain et le substrat solide. Par la suite, ils ont laissé refroidir le couple et ont mesuré la force nécessaire pour « décoller » la goutte solidifiée du substrat de manière à évaluer l'adhérence entre les métaux (Figure 10), ce qui réfère davantage à la mouillabilité dynamique qu'à la mouillabilité statique en raison du phénomène de solidification qui est ainsi pris en compte.

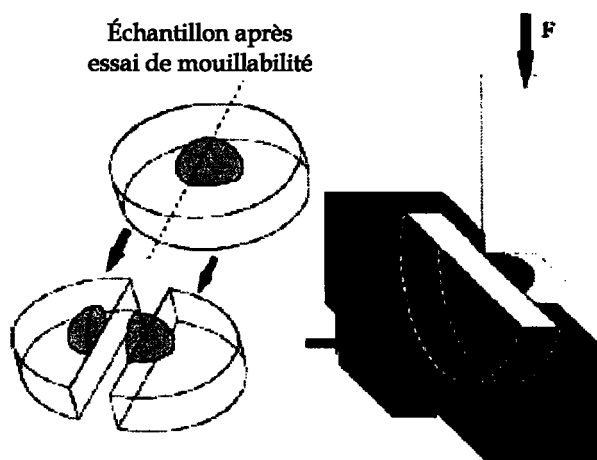


Figure 10 - Représentation schématique de la méthode d'évaluation de l'adhérence [22]

Egry, Schneider et al. [23] ont plutôt utilisé la méthode de la goutte posée pour évaluer les tensions de surface du fer, du nickel et de l'aluminium en fonction de la température. Un fait intéressant, ils ont opté pour la technique de la lévitation pour fusionner et déposer les gouttes sur les substrats.

### 2.2.2. La technique du « *drop-splat* » pour l'étude de la mouillabilité dynamique

La méthode du « *drop-splat* » est simplement une variante de la méthode de la goutte posée et sa principale différence réside dans le fait qu'il y a solidification de la goutte de métal sphérique en une forme aplatie. Il existe une multitude de variantes de la technique du « *drop-splat* » permettant de caractériser la mouillabilité dynamique. Elles diffèrent principalement par leur mécanisme de déposition des gouttes de métal sur les substrats et par la manière d'évaluer la mouillabilité dynamique. La revue de la littérature des travaux utilisant la technique expérimentale du « *drop-splat* » fait mention de trois méthodes d'évaluation de la mouillabilité dynamique : l'évolution de l'angle de contact [4, 6, 16, 17, 24], l'évaluation de l'adhérence à l'aide d'un montage similaire à celui de la Figure 11 [25, 26] et le calcul du facteur d'étalement «  $\xi$  » [27, 28]. Les paramètres étudiés par ces auteurs sont la hauteur de chute des gouttes et leurs poids, la température du substrat, sa rugosité et la composition chimique des gouttes.

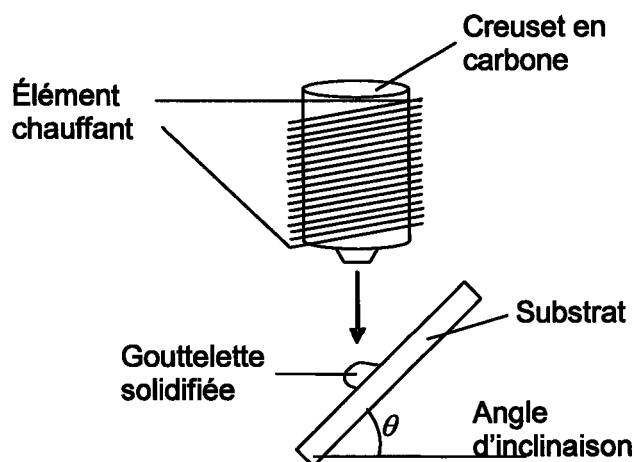


Figure 11 - Évaluation de l'adhérence par la méthode du substrat inclinable

La méthode du « *drop-splat* » avec substrat inclinable fut utilisée par Adler et Hsu [26] qui ont caractérisé la mouillabilité dynamique après solidification pour le procédé par rotation d'un moule. L'expérimentation consistait à faire tomber des gouttelettes de métaux différents sur des substrats inclinés dans une atmosphère sous vide afin d'isoler les phénomènes primaires de ceux causés par la formation de couches d'oxydes sur les gouttelettes. En mesurant l'aire de contact des gouttelettes par rapport aux angles d'inclinaison des substrats, ils en sont venus à déterminer des classes de mouillabilité.

Le montage du « *drop-splat* » a également été utilisé par certains auteurs du domaine des procédés par projection thermique. Ulrich et al. [28] ont étudié l'effet

de la vitesse d'impact d'une goutte sur un substrat sur la morphologie de cette goutte en utilisant une caméra haute vitesse. Ils furent également en mesure de caractériser la mouillabilité dynamique de différents métaux (Sn, Pb, Fe, Cu et Al) grâce à la notion de facteur d'étalement. Ce facteur est simplement le ratio des diamètres de la gouttelette après et avant son impact avec le substrat et constitue une alternative intéressante à la caractérisation de la mouillabilité dynamique par les angles de contact qui ne sont pas toujours évidents à mesurer. En effet, les angles de contacts de chaque côté de la goutte peuvent différer passablement et l'interprétation de ceux-ci est laissée à la subjectivité de l'expérimentateur. La Figure 12, tirée de la publication d'Evans et Strezov 2000 [3] montre clairement que les angles de contact sont difficilement mesurables et qu'il est nécessaire d'utiliser des instruments de grande précision pour les évaluer.

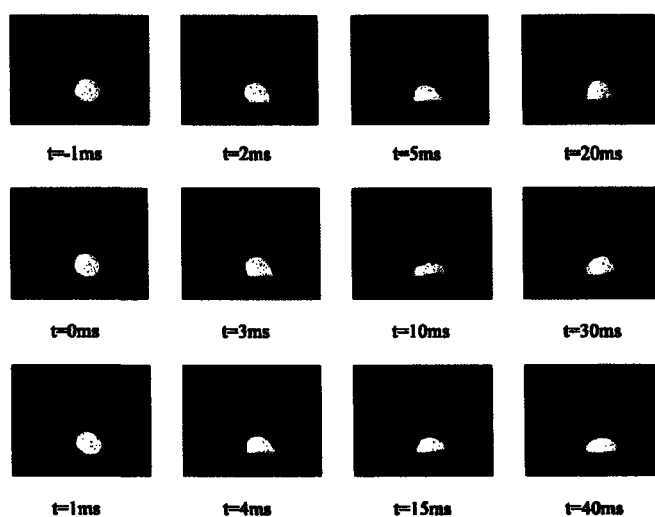


Figure 12 - Évolution des angles de contact [3]

### 2.3. Le transfert de chaleur

Le second aspect du travail est l'évaluation du coefficient de transfert de chaleur d'interface,  $h(t)$ , parallèlement à la mouillabilité dynamique. Pour ce faire, une méthode bien connue, développée par Beck [29], a été utilisée. Il s'agit du problème inverse de conduction de chaleur (IHCP). Un survol de la méthode est présenté au paragraphe 3.2.2.1.

La résistance totale de l'interface au flux de chaleur, soit l'inverse du coefficient de transfert de chaleur, est la résultante des résistances individuelles présentes entre la gouttelette et le substrat [30] (voir Figure 13). Ces résistances sont :

1. La peau d'oxyde de la gouttelette;
2. Les zones de contact entre la gouttelette et le revêtement du substrat;
3. Le gaz trappé dans les aspérités entre la gouttelette et le revêtement du substrat;
4. Le revêtement du substrat;
5. L'interface entre le revêtement et le substrat

Selon Hallam et Griffiths [30], les résistances principales au transfert de chaleur sont le revêtement du substrat suivi de l'air trappé entre la gouttelette et le substrat. Les autres résistances sont considérées négligeables. Les différents

revêtements testés devraient donc avoir un effet marqué sur la valeur du

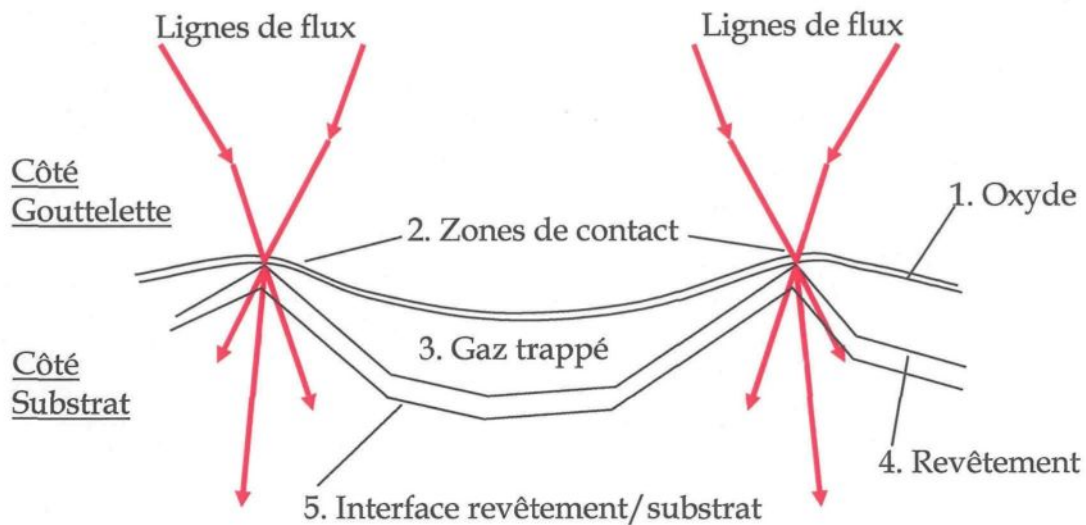


Figure 13 - Représentation schématique des différentes résistances au flux de chaleur

coefficient de transfert de chaleur d'interface. Pour ce qui est de l'importance de la résistance de l'air trappé à l'interface gouttelette/substrat et des autres résistances considérées négligeables, elles seront aussi prises en compte dans le calcul du coefficient global en mode transitoire selon la loi de refroidissement suivante :

$$q(t) = h(t) [T_s^G(t) - T_s^S(t)] \quad (1)$$

où  $h(t)$  = coefficient de transfert de chaleur d'interface global [ $\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$ ]

$q(t)$  = flux de chaleur à l'interface [ $\text{W m}^{-2}$ ]

$T^G_s(t)$  = température de la goutte à l'interface [K]

$T^S_s(t)$  = température du substrat à l'interface [K]

### 2.3.1. Le problème de conduction inverse appliqué à la solidification

Plusieurs chercheurs, dont Kim et al. [31] et Tavares et al. [32], ont utilisé cette méthode pour évaluer les flux de chaleur et les coefficients de transfert de chaleur sur un montage simulant le procédé de coulée en bande. Par l'acquisition à haute fréquence des températures, la méthode IHCP leur a permis de calculer une des conditions limites, à savoir le flux de chaleur entrant dans le substrat.

La méthode IHCP fut également employée par Bouchard et al. [12] et par Strezov et Herbertson [1, 33] pour évaluer l'influence de différents paramètres sur le transfert de chaleur à l'interface. Des substrats métalliques instrumentés de thermocouples furent plongés dans des bains de cuivre [12] et d'acier [33] afin de simuler le transfert de chaleur à l'interface rouleau-métal liquide dans les procédés de coulée en bande.

### 2.3.2. Montage utilisant l'expérience du « *drop-splat* » pour évaluer le transfert de chaleur

Tout comme pour la mouillabilité dynamique, le montage du « *drop-splat* » a été utilisé par certains auteurs pour évaluer le transfert de chaleur entre une goutte de métal et un substrat. Toutefois, très peu d'entre eux ont fait des parallèles entre le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique et ce, même si le montage du « *drop-splat* » peut le permettre [6]. Loulou et Bardon [34] furent parmi les premiers à faire certains parallèles mais les valeurs de tensions de surface et d'angles de contact furent tirées de publications d'autres chercheurs et n'ont donc pas été mesurées. Ils ont testé différentes gouttelettes d'étain, de plomb et de zinc sur des substrats de nickel. L'effet de la rugosité du substrat sur le transfert de chaleur fut aussi étudié. Ils ont démontré que les métaux ayant de faibles tensions de surfaces et angles de contact (bonne mouillabilité) engendraient de meilleurs flux de chaleur. Ces derniers étant calculés avec un model 1-D.

Liu et al. [35] ont utilisé le montage du « *drop-splat* » pour étudier les effets de la surfusion, de l'état de surface du substrat et de sa composition sur le taux de solidification et le transfert de chaleur à l'interface. L'originalité de la démarche réside dans le maintien de la goutte par lévitation électromagnétique avant de la laisser choir sur le substrat. Également, l'évolution de la température à la surface de la goutte fut mesurée à l'aide d'un pyromètre tel qu'illustré à la Figure 14.

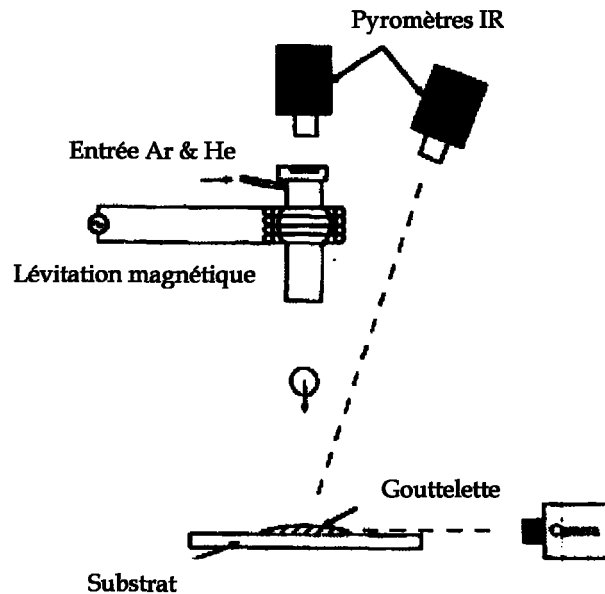


Figure 14 - Montage expérimental du « drop-splat » [35]

Dans le domaine de l'acier, Misra et al. [36] ont montré, à l'aide du montage du « *drop-splat* », que la présence de films liquides à la surface du substrat pouvait doubler le taux de transfert de chaleur. Le montage expérimental utilisé est semblable à celui utilisé par Todoroki et al. [37] et consiste à placer une petite quantité de métal, environ 3.5g, dans un tube de quartz situé à l'intérieur d'une bobine à induction. Une fois le métal fusionné, un pulse d'argon pressurisé éjecte la gouttelette de métal qui se solidifie sur le substrat. Des thermocouples insérés dans le substrat enregistrent les températures, permettant ainsi de calculer les flux de chaleur avec une routine de calculs inverses [29].

### 3. THÉORIE

#### 3.1. Mouillabilité

Le concept de mouillabilité se définit comme étant la capacité d'un liquide à s'étendre sur une surface solide [38]. C'est un concept très présent dans la vie de tous les jours. Par exemple, la carrosserie des voitures est traitée avec de la cire pour diminuer sa mouillabilité par l'eau. De façon générale, la notion d'imperméabilité fait référence à une faible mouillabilité par l'eau. D'un autre côté, le chocolat en poudre doit posséder une bonne mouillabilité par le lait afin d'assurer une bonne dispersion et se dissoudre rapidement. Évidemment, dans le domaine des sciences des matériaux, le concept de mouillabilité est tout aussi important. Par exemple, une faible mouillabilité par le métal liquide est souhaitée pour les outils du fondeur qui ne souhaite pas voir le métal y coller. Également, le système de dalots alimentant le bassin de la machine de coulée verticale est traité avec du nitrure de bore pour diminuer sa mouillabilité par l'aluminium liquide et ainsi faciliter son entretien. Au contraire, tout comme pour les fibres de verre dans la résine d'époxy, la mouillabilité des particules céramiques par le métal liquide doit être maximisée lors de la fabrication d'un matériau composite. Finalement, dans le procédé de coulée *Properzi*, la mouillabilité du métal sur le moule de cuivre influence la température de l'ébauche et, par le fait même, la cadence de

production. Voilà quelques exemples qui illustrent l'importance de la mouillabilité, autant dans la vie quotidienne que dans les sciences des matériaux.

Or, il est impensable de discuter de mouillabilité sans aborder la tension de surface et l'énergie de surface. Un bref survol de ces concepts est donc présenté préalablement aux concepts de mouillabilité statique et de mouillabilité dynamique.

### 3.1.1. Tension de surface et énergie de surface

Par définition, la tension de surface se décrit comme la force de tension agissant perpendiculairement à une ligne de la surface, divisée par la longueur de cette ligne. Les unités de la tension de surface sont [Force/Longueur], i.e.,  $[MLT^{-2}]/[L]=[MT^{-2}]$ . Le symbole utilisé pour la tension de surface est la lettre grec  $\gamma$  « gamma ».

La tension de surface est le résultat de l'attraction, par diverses forces intermoléculaires, entre les molécules d'un liquide. Dans la masse du liquide, chaque molécule est tirée également dans toutes les directions par les molécules liquides voisines (Figure 15). Le résultat est une force nette égale à zéro. Toutefois, à la surface du liquide, les molécules sont attirées vers l'intérieur par d'autres

molécules du liquide mais elles ne sont pas attirées aussi intensément par les molécules du milieu adjacent (que ce soit le vide, l'air ou un autre liquide). Par conséquent, toutes les molécules sur la surface sont sujettes à une force centripète d'attraction qui peut être équilibrée seulement par la résistance du liquide à la compression. Ainsi, le liquide se compacte jusqu'à ce qu'il adopte la forme ayant la plus petite surface possible [39].

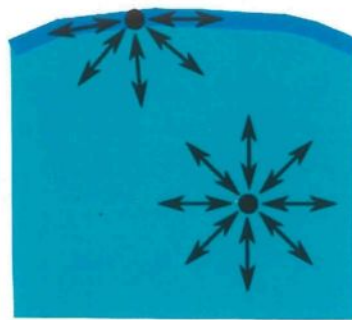


Figure 15 – Diagramme des forces agissant sur une molécule d'un liquide [39]

Pour pouvoir augmenter l'étendue de la surface du liquide, un apport d'énergie mécanique est nécessaire, lequel créera inévitablement une nouvelle surface. Le travail effectué lors de la création de cette dernière se définit comme l'énergie de surface libre [40] représenté par la lettre grec  $\sigma$  « sigma ».

L'énergie de surface libre ainsi définie est équivalente à la tension de surface précédemment exposée. En effet, tel qu'exposé par Massey [40], supposons que

l'aire d'un élément rectangulaire d'une surface liquide quelconque  $ABCD$  (Figure 16) est augmentée par l'application d'une force sur la surface  $BC$ . La nouvelle surface obtenue occupe alors l'aire  $AB'C'D$ .

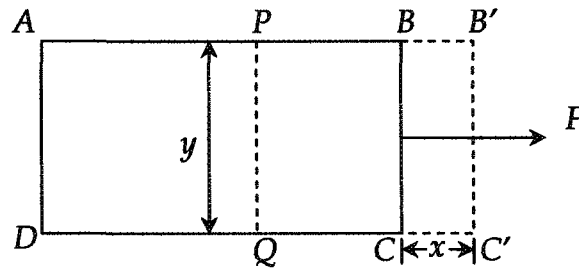


Figure 16 – Schéma de l'équivalence entre énergie de surface libre et tension de surface

De la définition de la tension de surface  $\gamma$ , la force de tension perpendiculaire à n'importe lequel ligne  $PQ$ , d'une longueur  $y$  et parallèle à  $AD$ , égale  $\gamma y$ . En d'autres mots, cette force de tension peut être décrite comme étant la force avec laquelle la section  $APQD$  retient la section  $PBCQ$ . En admettant que le mouvement de  $BC$  vers  $B'C'$  d'une distance  $x$  est effectué très lentement et sans accélération, la force  $F$  doit alors égaler la force de résistance  $\gamma y$ . Le travail fait pendant le processus équivaut à  $\gamma y * x$ . Ainsi, le travail mécanique réalisé par unité d'augmentation d'aire, lequel représente l'énergie de surface libre, est  $\gamma y x / y x = \gamma$ . On démontre ainsi que la tension de surface et l'énergie de surface libre sont des concepts équivalents.

### 3.1.2. Mouillabilité statique

En mode statique, le concept de mouillabilité fait référence à la notion d'équilibre. Les phases solide et liquide sont en contact sous des conditions d'équilibre thermodynamique tel que décrit par la théorie de Gibbs qui est largement utilisée pour décrire les interfaces [41]. La théorie de Gibbs stipule qu'un système est à l'équilibre statique s'il est dans une configuration d'énergie minimum, ce qui implique un équilibre mécanique entre les forces agissant aux lignes de contact entre les trois phases (Figure 17). Pour que cet équilibre mécanique puisse s'établir,

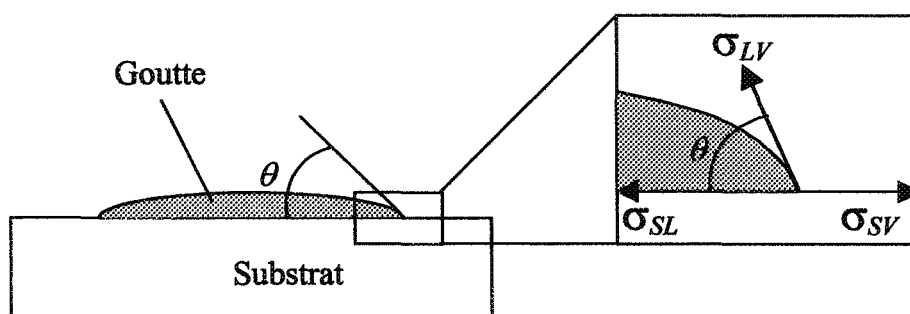


Figure 17 – Relation en l'angle de contact et les trois énergies d'interface†

les potentiels chimiques de chaque composant ainsi que la température et la pression doivent être identiques dans chaque phase. La Figure 17 illustre ce

---

† S : solide ; L : liquide ; V : vapeur ;  $\sigma_{xy}$  : énergie d'interface entre  $x$  et  $y$

concept où l'équilibre des énergies d'interface  $\sigma_{xy}$  entre les phases  $x$  et  $y$  est en relation avec l'angle de contact  $\theta$  entre le liquide et le solide.

Cette relation entre les énergies d'interface et l'angle de contact  $\theta$  est décrite par l'équation de Young :

$$\cos \theta = \frac{\sigma_{SV} - \sigma_{SL}}{\sigma_{LV}} \quad (2)$$

Dans l'équation précédente, un angle de  $90^\circ$  permet de distinguer des conditions de mouillabilité et de non-mouillabilité telles qu'illustrées schématiquement à la Figure 18.

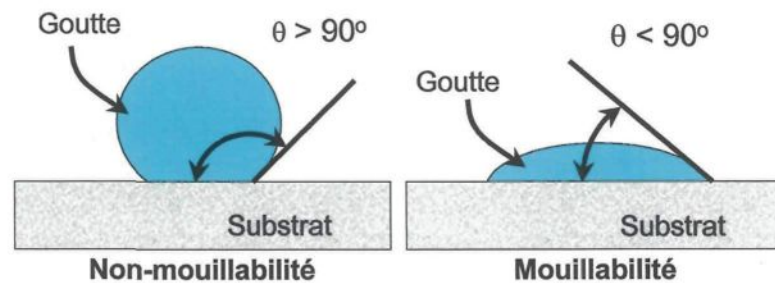


Figure 18 - Conditions de non-mouillabilité et de mouillabilité entre solide et liquide

En se référant à l'équation 2, il apparaît qu'une augmentation de l'énergie de surface du solide,  $\sigma_{SV}$ , résulterait en une diminution de l'angle de contact tout comme une diminution de l'énergie d'interface solide-liquide,  $\sigma_{SL}$ , et/ou de l'énergie de surface du liquide,  $\sigma_{LV}$ . Étant donné que les énergies de surface des oxydes solides sont distinctivement plus faibles que les métaux liquides correspondant, il est peu probable qu'une surface solide oxydée soit mouillée [42], à moins que l'oxyde de surface ne soit réduit ou dissout par le métal liquide [5]. Les essais de mouillabilité statique par la technique de la goutte posée (voir section 2.2.1) se font généralement sous atmosphère contrôlée afin de prévenir ce phénomène.

Pour déduire l'angle de contact par l'équation de Young, il est essentiel de connaître les énergies de surface du solide,  $\sigma_{SV}$ , et d'interface entre le solide et le liquide,  $\sigma_{SL}$ . Or, ces deux quantités sont difficiles à obtenir. Ainsi, en réarrangeant la relation suivante [41] :

$$W_{ad} = \sigma_{SV} + \sigma_{LV} - \sigma_{SL} \quad (3)$$

où  $W_{ad}$  est le travail d'adhésion, et en substituant les termes appropriés de l'équation 1, on obtient la relation de Young-Dupré suivante :

$$W_{ad} = \sigma_{LV} (1 + \cos \theta) \quad (4)$$

À noter qu'en raison de l'équivalence entre les concepts de tension de surface et d'énergie de surface démontrée au paragraphe 3.1.1, le terme  $\sigma$  de l'équation de Young-Dupré peut être remplacé par  $\gamma$ .

Le travail d'adhésion est défini comme étant le travail nécessaire ( $\text{J/m}^2$ ), à température et pression constantes, pour séparer parfaitement l'interface entre le liquide et le solide. Cette quantité peut donc être déduite par la mesure de l'angle de contact et la connaissance de l'énergie de surface du liquide qui, elle, s'obtient relativement facilement. Cette particularité fait de l'équation de Young-Dupré une relation de grande importance dans l'étude des interfaces. De cette équation et sachant que l'angle de contact peut varier de  $0^\circ$ , pour une mouillabilité parfaite, à  $180^\circ$ , en absence totale de mouillabilité, on peut voir qu'une excellente mouillabilité va de pair avec un important travail d'adhésion. Le travail d'adhésion peut donc être utilisé expérimentalement pour caractériser la mouillabilité, au même titre que les angles de contact tel qu'expliqué à la section 3.1.3.2.

### 3.1.3. Mouillabilité dynamique

Les revues sur la mouillabilité statique sont innombrables et les techniques utilisées pour l'évaluer sont bien connues. Généralement, les essais de mouillabilité

statique s'effectuent sous une atmosphère contrôlée et les paramètres expérimentaux de température et de pression sont gardés constants. Par conséquent, aucun échange thermique ou chimique n'est établi entre le substrat solide et le liquide. Ces particularités ne s'appliquent guère aux procédés de solidification où des réactions chimiques d'oxydation et/ou de diffusion sont présentes, où il existe d'importants gradients thermiques entre le liquide et le solide et dans leurs volumes respectifs et enfin, où apparaît un changement de phase. Conséquemment, la mouillabilité dans de tels systèmes est dite dynamique. Il est à noter que, bien que dans les procédés de solidification aucun équilibre n'est favorisé, il ne suffit que d'une seule déviation de l'équilibre, qu'elle soit thermique, chimique et mécanique, pour que la mouillabilité soit dite dynamique.

Il existe plusieurs méthodes pour évaluer la mouillabilité dynamique. Ces méthodes dépendent fortement de la nature des matériaux en jeu et des applications auxquelles ces derniers sont destinés.

#### *3.1.3.1. Angles de contact*

Tout comme pour les essais de la goutte posée permettant d'étudier la mouillabilité statique, les angles de contact permettent de caractériser la mouillabilité dynamique. Cependant, contrairement à la mouillabilité statique où

un seul angle de contact est souvent mesuré, soit à l'équilibre, la caractérisation de la mouillabilité statique par les angles de contact requiert l'utilisation d'une caméra haute vitesse afin d'enregistrer l'évolution des angles de contact en fonction du temps. Cette méthode, employée par Ebrill et al. [16-17] ainsi que par Leboeuf [6], fut utilisée lors des expériences préliminaires aux présents travaux.

Une fois la chute de la gouttelette amorcée, la caméra haute vitesse enregistre l'évolution morphologique de cette dernière et des mesures d'angles peuvent être prises manuellement ou numériquement. Pour une bonne précision, il est impératif d'avoir une excellente résolution d'images et un éclairage optimal. Malgré tout, tel que discuté au paragraphe 2.2.2., les mesures des angles de contact sont imprécises et, en raison des fortes oscillations dans la gouttelette, le graphique temporel obtenu permet difficilement de faire des comparaisons entre 2 courbes. Ces oscillations, engendrées par l'énergie emmagasinée dans la gouttelette lors de sa chute, voilent le phénomène de mouillabilité dynamique. Ainsi, les angles mesurés entre le moment où la gouttelette touche le substrat et le moment où elle est complètement solidifiée sont davantage influencés par la façon dont la gouttelette oscille que par la façon dont elle mouille le substrat. Cet aspect est discuté à la section 3.1.5.

De plus, l'angle de contact est une notion en 2-D, ce qui signifie que les angles sont probablement différents dépendamment du point de mesure sur la périphérie de la gouttelette. La Figure 19 illustre les différences qui peuvent exister entre les angles de contact de chaque côté de la goutte.

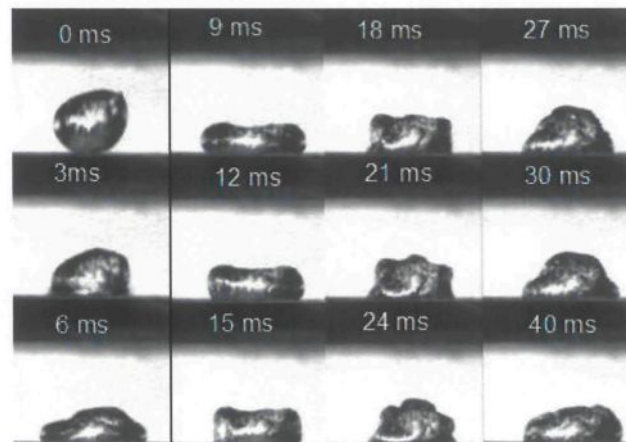


Figure 19 - Évolution de l'angle de contact d'une goutte d'aluminium sur un substrat de cuivre

### 3.1.3.2. Le travail d'adhésion

L'attraction entre les phases liquide et solide peut être décrite en terme de travail d'adhésion,  $W_{ad}$ . Tel que mentionné précédemment, ce travail d'adhésion est relié à l'angle de contact par l'équation de Young-Dupré (section 3.1.2) et peut donc être utilisé pour caractériser la mouillabilité entre deux phases. Un travail d'adhésion élevé indique une bonne mouillabilité tandis qu'un travail d'adhésion faible indique le contraire. Deux méthodes expérimentales utilisant ce principe sont

particulièrement intéressantes, à savoir la méthode du substrat inclinable et l'essai par cisaillement du couple gouttelette-substrat.

La méthode du substrat inclinable développée par Adler et al. [26] consiste à laisser tomber une gouttelette d'un volume et d'une hauteur donnés sur un substrat inclinable (Figure 20).

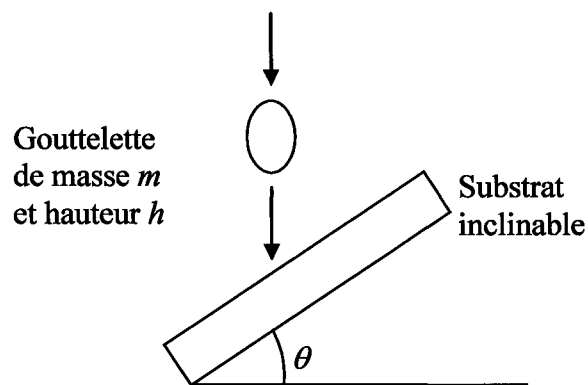


Figure 20 – Schéma de la méthode du substrat inclinable

Lors de l'impact, il y a concurrence entre l'énergie potentielle associée à la chute de la gouttelette et l'énergie d'adhésion entre cette dernière et le substrat. Plus le substrat est incliné, plus la force d'inertie de la goutte est élevée tel que :

$$F = mgh \sin \theta \quad (5)$$

Ainsi, plus la gouttelette adhère au substrat à un angle  $\theta$  élevé, plus l'adhérence entre les deux phases est importante et, conséquemment, meilleure est la mouillabilité dynamique. Comparativement aux angles de contact, cette méthode a l'avantage de n'être pas soumise à la subjectivité des mesures.

Sobczak et al. [22, 43] ont adopté une nouvelle approche basée sur l'adhérence pour évaluer la mouillabilité de l'aluminium liquide sur un substrat d'alumine solide. Cette méthode consiste à mesurer la force de cisaillement nécessaire pour briser le lien d'adhérence unissant la gouttelette d'aluminium et le substrat. Pour ce faire, la méthode de la goutte posée est utilisée mais ici, la gouttelette est solidifiée. Par la suite, la gouttelette et le substrat sont bissectés perpendiculairement au plan d'adhérence avant d'être placés dans un support permettant d'appliquer une force  $F$  sur la demi-gouttelette (Figure 21).

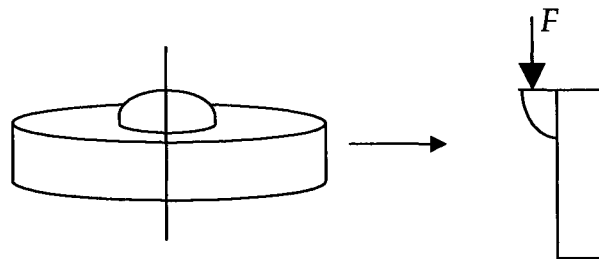


Figure 21 - Méthode de l'essai par cisaillement du couple gouttelette-substrat [22, 43]

Cette technique est très intéressante car elle permet de déduire des informations précises sur la mouillabilité et les liens mécaniques entre le substrat et la gouttelette. Cependant, la coupe de l'ensemble substrat-gouttelette doit être très minutieuse et l'essai requiert une machine d'essais de traction. De plus, chaque substrat ne peut être utilisé que pour une seule expérience.

### 3.1.3.3. *Le facteur d'étalement*

Fukumoto et al. [44] ont démontré que la mouillabilité d'une gouttelette de métal liquide sur un substrat solide était étroitement liée à l'étalement de la gouttelette. Dans cette optique, la caractérisation de la mouillabilité dynamique par le facteur d'étalement [28-44-45] devient une alternative intéressante à certaines méthodes plus complexes et moins objectives. En raison de sa simplicité, la méthode du facteur d'étalement est largement utilisée dans le domaine des revêtements par projection thermique et permet d'obtenir une mesure rapide et à moindre coût. Cette méthode a été utilisée dans le cadre des présents travaux. Par définition, le facteur d'étalement est le ratio entre les diamètres moyens de la gouttelette après et avant l'impact avec le substrat (Figure 22).

$$\text{Facteur d'étalement} = \xi = \frac{\text{Diamètre moyen de la gouttelette après étalement}}{\text{Diamètre moyen de la gouttelette avant impact}} = \frac{\bar{d}}{D} \quad (6)$$

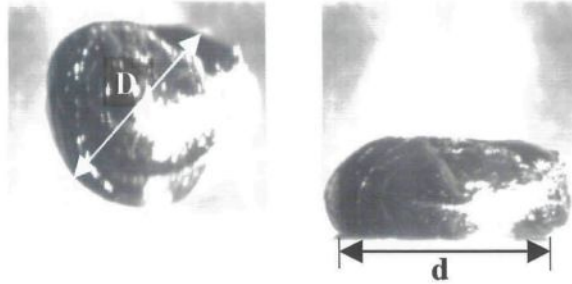


Figure 22 - Illustration des diamètres moyens dans le calcul du facteur d'étalement

Le diamètre  $D$  de la gouttelette peut être déterminé de deux façons. La première consiste à mesurer le diamètre de la gouttelette lors de sa chute en utilisant une caméra haute vitesse tandis que la seconde consiste à peser la gouttelette et en déduire son diamètre en supposant une gouttelette parfaitement sphérique. La méthode utilisant la caméra haute vitesse pose cependant des problèmes d'échelles lorsque le temps est venu de faire le ratio avec le diamètre de la gouttelette après l'étalement. Aussi, la netteté de l'image doit être excellente pour pouvoir mesurer le diamètre avec précision, ce qui n'est pas toujours le cas (Figure 22). Pour ces raisons, c'est plutôt la méthode du calcul du diamètre théorique qui fut retenue dans les présents travaux.

Par la suite, le diamètre moyen de la gouttelette après impact,  $d$ , doit être mesuré. Ce diamètre est une moyenne du diamètre de l'aire de contact entre la gouttelette

et le substrat. Afin d'obtenir un maximum de précision, les gouttelettes ont été placées sous un binoculaire muni un logiciel d'analyse d'image (Figure 23). Une mesure du diamètre inclut le halo autour de la gouttelette qui représente la partie du diamètre de la gouttelette qui n'est pas parfaitement en contact avec le substrat. Pour chaque gouttelette, c'est la moyenne de huit mesures du diamètre qui a été utilisée dans le calcul du facteur d'étalement.

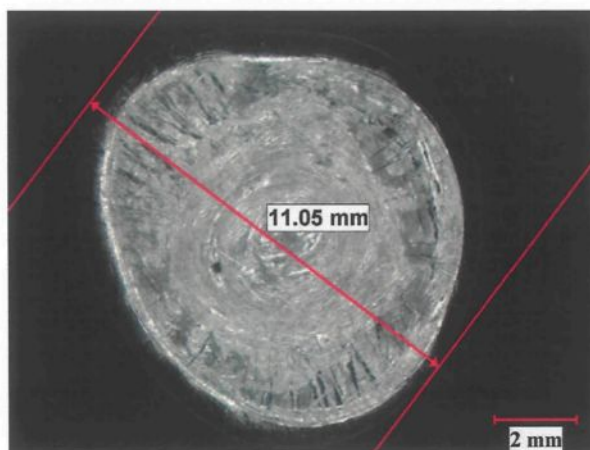


Figure 23 - Photo d'une gouttelette permettant de mesurer le diamètre après étalement

#### 3.1.4. Facteurs influençant les mesures de mouillabilité

Comme pour les autres méthodes de caractérisation de la mouillabilité dynamique présentées précédemment, l'utilisation de la méthode du facteur d'étalement requiert certaines précautions. En effet, plusieurs facteurs influencent la

mouillabilité dynamique et, conséquemment, l'étalement d'une gouttelette de métal se solidifiant sur un substrat métallique. Ces facteurs agissent sur l'un ou l'autre des régimes d'étalement. Ces régimes sont [5]:

- i. Cinétique : contrôlé par la formation de liaisons à courtes distances à la ligne de contact entre les phases solide, liquide et gazeuse;
- ii. Inertiel : contrôlé par la masse et la vitesse de la gouttelette;
- iii. Visqueux : contrôlé par la viscosité du métal liquide;

Les facteurs susceptibles d'affecter l'étalement sont très nombreux et la Figure 24 résume les principaux. En ce qui a trait à la méthode, la hauteur de chute de la gouttelette est le facteur le plus important car il influence directement le nombre de Weber qui représente la prédominance des forces cinétiques sur les forces visqueuses. Au niveau du substrat, le facteur le plus critique est la rugosité de celui-ci. En effet, Leboeuf [6] a démontré l'importance de ce paramètre en comparant la mouillabilité dynamique sur des substrats de rugosités différentes.

Enfin, au niveau de la gouttelette, sa taille est le principal facteur à contrôler car, tout comme la hauteur de la chute de la gouttelette, le nombre de Weber est influencé par ce paramètre.

Peu importe l'importance d'un facteur, ils doivent tous être gardés constants lors d'expérimentations afin de minimiser leurs effets qui risqueraient de brouiller les effets des paramètres à l'étude.

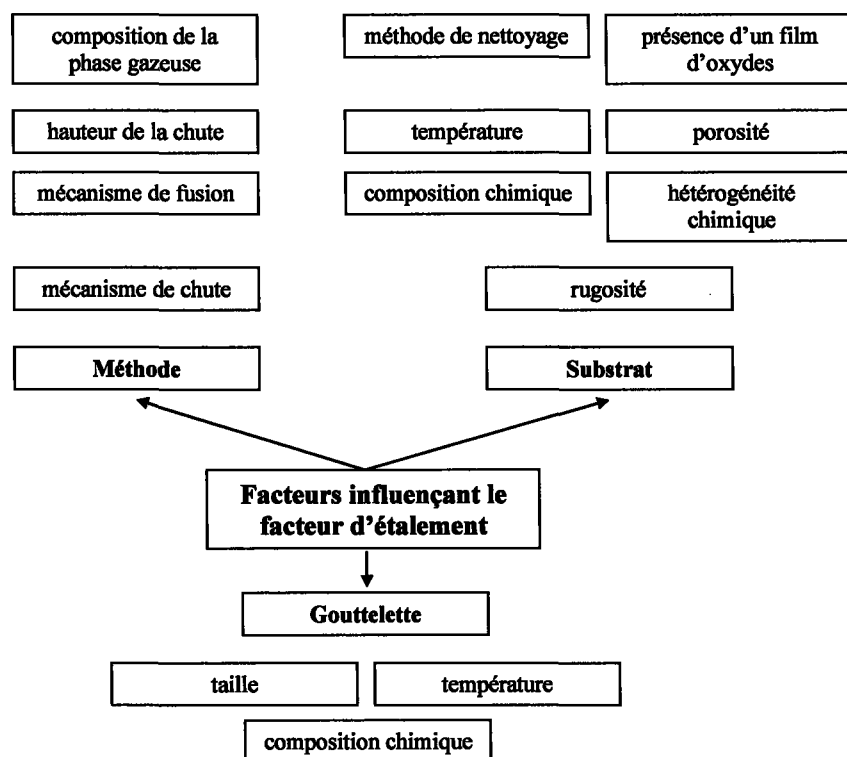


Figure 24 – Principaux facteurs influençant l'étalement

La section 4 traitant sur les méthodes expérimentales donne plus de détails sur les précautions nécessaires à l'obtention de mesures de mouillabilité dynamique par les facteurs d'étalement

### 3.1.5. Rapport d'énergies et rapport de forces

La hauteur de chute et la masse de la gouttelette sont deux paramètres très importants dans l'expérience de l'étalement de la goutte. En fait, ces paramètres influencent fortement la dynamique de l'étalement en jouant un rôle primordial dans l'évolution de la forme de la gouttelette qui épouse le substrat. En effet, la hauteur de chute et la masse de la gouttelette régissent le régime dans lequel s'effectue l'étalement (paragraphe 3.1.4). Cela se traduit par la prédominance ou non du régime cinétique associé à la chute de la gouttelette sur le régime visqueux associé à la tension de surface du métal liquide. Deux concepts peuvent être utilisés pour quantifier le régime d'étalement, à savoir le rapport d'énergies et le rapport de forces.

Le premier concept utilisant les rapports d'énergies mentionne que l'énergie de capillarité de la gouttelette doit être maintenue un ordre de grandeur plus élevé que l'énergie potentielle de la gouttelette heurtant le substrat [5]. Ceci se traduit par :

$$\left[ E_{\text{capillarité}} = 4\pi r^2 \cdot \gamma \right] \geq 10 \cdot \left[ E_{\text{cinétique}} = mgh \right]$$

$$\text{Rapport d'énergies} = \frac{mgh}{4\pi r^2 \cdot \gamma} \leq 0.1$$

$$\text{Rapport d'énergie} = \frac{5mgh}{2\pi r^2 \cdot \gamma} \leq 1 \quad (7)$$

où  $r$  et  $m$  sont respectivement le rayon et la masse de la gouttelette,  $\gamma$  est la tension de surface entre le liquide et la phase gazeuse,  $g$  est la constante de l'accélération gravitationnelle et  $h$  est la hauteur de chute de la gouttelette.

Le deuxième concept suggère plutôt le rapport des forces cinétiques sur les forces superficielles, mieux connu sous le nom de nombre de Weber ( $We$ ). La tension de surface est cette force s'exerçant sur une surface d'un fluide pour le retenir (voir paragraphe 3.1.1). Le nombre de Weber est adimensionnel et doit être maintenu inférieure à 1 pour que le mécanisme d'étalement de la goutte soit dominé par la tension de surface de celle-ci. Le nombre de Weber se traduit comme suit :

$$We = \frac{\rho D u^2}{\gamma} = \frac{\rho 2r u^2}{\gamma} \leq 1$$

$$mgh = \frac{1}{2} m u^2 \Rightarrow u^2 = 2gh$$

$$We = \frac{4\rho rgh}{\gamma} \leq 1$$

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{3m}{4\pi r^3}$$

$$We = \frac{12mrg h}{4\pi r^3 \gamma} = \frac{4mgh}{\gamma \pi r^2} \leq 1 \quad (8)$$

où  $\rho$  est la densité du liquide,  $D$  est le diamètre de la gouttelette et  $u$  est la vitesse de la gouttelette avant l'impact sur le substrat.

Il paraît évident que, avec de simples transformations mathématiques, les équations 7 et 8 sont quasi-équivalentes. Seul le coefficient multipliant le rapport, d'énergies ou de forces, est différent. Conséquemment, le nombre de Weber représente autant un rapport d'énergies qu'un rapport de forces. Tel que décrit à la section 4, dans les présents travaux, les masses des gouttelettes et les hauteurs de chute ont été fixées à des valeurs permettant de minimiser le nombre de Weber.

### **3.2. Transfert de chaleur**

La seconde partie de la caractérisation de la solidification des gouttelettes d'aluminium consiste à calculer le coefficient de transfert de chaleur à l'interface gouttelette/substrat en fonction du temps. Ce coefficient est, en quelque sorte, une mesure de la conductance de l'interface face au flux thermique qui cherche à le traverser et influence fortement le processus de solidification. Il dépend de la géométrie, de la nature des matériaux en jeu, de la température et d'autres caractéristiques du système dans lequel l'échange thermique se produit. Par

conséquent, le coefficient de transfert de chaleur d'interface doit être dérivé ou fondé expérimentalement pour chaque système analysé.

### 3.2.1. Nombre de dimensions du problème

Les travaux de Leboeuf [6] ont considéré le problème de solidification d'une gouttelette sur un substrat à une dimension. Or, des simulations à l'aide du logiciel *ProCast* ont permis de constater qu'il y avait des différences en prenant en compte les deux dimensions,  $x$  et  $y$ , pour modéliser le substrat. En effet, en imposant un flux de chaleur de  $2 \cdot 10^5 \text{ W/m}^2$  sur la surface complète du substrat de cuivre (température initiale =  $25^\circ\text{C}$ ), il est possible de recréer un flux de chaleur unidirectionnel caractéristique d'un problème à une dimension. Par la suite, ce même flux est imposé, mais cette fois, sur une parcelle de la surface du substrat correspondant à la zone où une goutte de métal transfère sa chaleur. À noter que les autres faces du substrat sont considérées adiabatiques tout comme dans le cas à une dimension.

La Figure 25 illustre les résultats après 2 secondes de simulation (l'échelle de couleurs représente des températures). En deux dimensions, le profil de température obtenu au centre de la zone d'imposition du flux (ligne pointillée) est

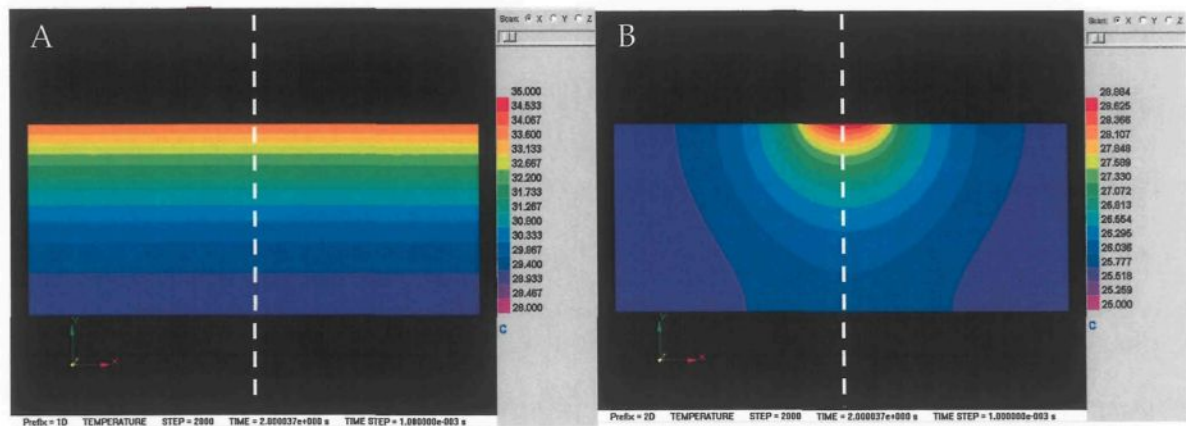


Figure 25 - Résultats de simulations: A) 1D ; B) 2D

de valeur inférieure à celui obtenu en 1D. Les différences de températures entre les simulations 1D et 2D sont de l'ordre de 10 à 12% après 2s de simulation. Plus de détails sur ces différences sont donnés au paragraphe 5.2. La différence réside dans le fait qu'il existe une composante tangentielle au flux de chaleur en 2D et ce flux n'est donc pas unidirectionnel. En considérant ces différences, l'utilisation d'un programme numérique en 2D est justifiée du côté du substrat. Il est à noter qu'étant donnée la symétrie du problème à l'étude, à savoir une goutte de métal de forme circulaire se solidifiant sur un substrat rectangulaire, il n'est pas nécessaire de considérer la troisième dimension.

Du côté de la gouttelette, un modèle à une dimension a été utilisé en raison de l'épaisseur relativement uniforme de la gouttelette. La sélection de ce modèle a

également été basée sur l'observation que la quantité de chaleur transférée par la surface libre de la gouttelette était négligeable par rapport à la chaleur transférée à l'interface avec le substrat. Cette hypothèse a été validée par certains résultats expérimentaux présentés au paragraphe 5.3.2. où il est démontré qu'une condition adiabatique à la surface libre de la gouttelette était parfaitement appropriée. Également, l'orientation des grains telle qu'illustrée à la Figure 45 illustre bien le transfert de chaleur unidirectionnel dans la gouttelette.

### 3.2.2. Évaluation du coefficient de transfert de chaleur d'interface

Lorsque la gouttelette de métal touche le substrat, la chaleur est transférée à l'interface avec ce dernier. Le flux de chaleur transitoire peut être décrit par la loi de refroidissement de Newton :

$$q(t) = h(t)[T_s^G(t) - T_s^S(t)] \quad (9)$$

Les paramètres de l'équation 9 sont déterminés en deux étapes distinctes. La première implique la résolution d'un problème classique de conduction inverse afin d'obtenir le flux de chaleur entrant dans le substrat,  $q(t)$ . Pour ce faire, l'approche par les fonctions de spécification séquentielles tel que proposé par Beck a été utilisée [46]. La deuxième étape consiste en la résolution de deux problèmes directs, soit un du côté du substrat et un du côté de la gouttelette, afin d'obtenir les

profils de températures dans les deux milieux. Les températures des interfaces,  $T^G_S(t)$  et  $T^S_S(t)$ , sont alors extraites de ces profils et insérées dans l'équation 9 avec le flux de chaleur,  $q(t)$ , afin d'obtenir le coefficient de transfert de chaleur d'interface,  $h(t)$ .

### 3.2.2.1. Résolution du problème classique de conduction inverse

L'approche par les fonctions de spécification séquentielles permet, contrairement aux méthodes directes conventionnelles où la condition limite à l'interface est connue, de calculer cette condition limite à l'aide de mesures de températures effectuées dans le substrat. La description détaillée de la méthode est présentée dans l'ouvrage de Beck [46]. Un portrait simplifié est ici présenté.

La période, pendant laquelle le phénomène de solidification est étudié, est divisée en un certain nombre d'intervalles. Le flux de chaleur ( $q_m$ ) varie d'un intervalle de temps à un autre mais est constant à l'intérieur de chaque intervalle ( $m$ ). La valeur optimale du flux de chaleur est obtenue par itération en utilisant l'équation suivante :

$$q_m^{n+1} = q_m^n + \frac{\sum_{i=1}^r \sum_{j=1}^J (\gamma_{m+i-1} - T_{m+i-1}(q_m^n)) \cdot Z_{m+i-1}^n}{\sum_{i=1}^r \sum_{j=1}^J (Z_{m+i-1}^n)^2} \quad (10)$$

où les quantités  $Z_{m+i-1}^n$  sont des coefficients de sensibilité estimés par :

$$Z_{m+i-1}^n \approx \frac{T_{m+i-1}(q_m^n(1+\delta)) - T_{m+i-1}(q_m^n)}{\delta q_m^n} \quad (11)$$

où  $Y_{m+i-1}$  se réfèrent à une température mesurée à l'intervalle de temps  $m+i-1$ , tandis que  $T_{m+i-1}(q_m^n)$  et  $T_{m+i-1}(q_m^n(1+\delta))$  sont des températures calculées en solutionnant les équations de l'ANNEXE A lorsque des flux  $q_m^n$  et  $q_m^n(1+\delta)$  sont imposés à la surface du substrat. La valeur de  $\delta$  incrémente le flux  $q_m^n$  d'une valeur prédéterminée, ici égale à 0.001. Les températures calculées sont celles des mêmes nœuds que ceux où les mesures de températures furent effectuées. Le terme  $J$  est associé au nombre de thermocouples. Le terme  $r$  est, quant à lui, associé au nombre de pas de temps futurs (*future time step*) qui permet l'obtention d'une solution plus précise. L'exposant  $n$  se réfère à la  $n^{\text{ième}}$  itération.

Au commencement de la série d'itérations, un problème direct est tout d'abord résolu en utilisant une valeur de départ pour  $q_m^n$  et ensuite pour  $q_m^n(1+\delta)$ . Le coefficient de sensibilité de l'équation 10 est alors calculé et introduit dans l'équation 9. Les itérations continuent ensuite jusqu'à ce que la solution converge, i.e., lorsque :

$$\frac{q_m^{n+1} - q_m^n}{q_m^n} < 0.005 \quad (12)$$

Bien que les flux de chaleur soient présumés constants sur une période mettant en jeu  $r$  pas de temps futur, la valeur optimale obtenue ne s'applique que sur l'intervalle de temps  $m$ .

### 3.2.2.2. *Résolution des problèmes directs*

Le flux de chaleur étant ainsi obtenu, le problème direct du côté substrat est résolu en utilisant l'équation de conduction de chaleur en régime transitoire tel qu'exprimée ci-dessous en deux dimensions en coordonnées cartésiennes :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( k \frac{\partial T}{\partial y} \right) = \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} \quad (13)$$

Des approximations de cette équation par la méthode explicite des différences finis ont permis de calculer l'évolution de la température dans le substrat. La méthode numérique employée est dite explicite car la température d'un nœud au temps  $t+1$  est calculée explicitement à partir des températures des nœuds voisins au temps  $t$ . Contrairement à la méthode implicite qui utilise les températures au temps  $t+1$  pour calculer une température au temps  $t$ , la méthode explicite a l'avantage d'être

directe. En effet, le calcul d'une température s'effectue à partir de températures déjà calculées. Cependant, c'est au niveau de la stabilité que la méthode explicite a ses limites [47]. Ce point est discuté au paragraphe 3.2.2.4.

Du côté de la gouttelette, un modèle à une dimension avec formulation enthalpique [48] pour prendre en compte la solidification a été utilisé. L'énergie thermique transportée par convection dans la région liquide de la gouttelette a été considérée en utilisant une conductivité thermique effective pour l'aluminium liquide défini par [49] :

$$k_{eff} = k_c * k(T) \quad T \geq T_L \quad (14)$$

$$k_{eff} = f_s * k_s(T) + f_l * k_l(T) * \left[ 1 + (k_c - 1) * \left( \frac{T - T_s}{T_L - T_s} \right)^2 \right] \quad T_s \leq T \leq T_L \quad (15)$$

La valeur de  $K_c$  introduite pour tenir compte de la convection se situe typiquement entre 5 et 10. Les fractions solide et liquide,  $f_s$  et  $f_l$  respectivement, ont été calculées en supposant qu'elles variaient linéairement.

### 3.2.2.3. Conditions aux limites et initiales

Les conditions aux limites du substrat ont été fixées en imposant le flux de chaleur,  $q(t)$ , de l'équation 9 à l'interface du substrat avec la gouttelette. Les autres surfaces

ont été maintenues adiabatiques en raison de l'imposant volume du substrat relativement à la gouttelette. De plus, par son importante conductivité thermique, le substrat agit comme un puissant réservoir de chaleur et les frontières du substrat qui ne sont pas en contact avec la gouttelette peuvent être considérées adiabatiques. La température initiale du substrat était mesurée par des thermocouples et était typiquement autour de 25°C. Pour la gouttelette, le flux de chaleur,  $q(t)$ , a également été utilisé comme condition limite à l'interface de la goutte avec le substrat. La condition limite à la surface de la goutte a été définie comme une perte thermique par convection naturelle ( $h = 15 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ , [50]) et rayonnement (émissivité = 0.17, [51]). La température initiale de la gouttelette d'aluminium pur était de 725°C.

#### 3.2.2.4. *Équations par la méthode des différences finis*

Le système est composé d'un bloc (20mm \* 50mm) de cuivre électrolytique ou d'acier outil H13 discrétisé en un certain nombre d'éléments ainsi qu'une goutte d'aluminium pur supposée rectangulaire de dimensions variables et également discrétisée en un certain nombre d'éléments. À l'intérieur de ces deux domaines, le mode principal de propagation de la chaleur est la conduction.

La Figure 26 et les équations 16 à 19 montrent un exemple d'équations développées sous la forme de bilan pour tous les nœuds situés à la surface du substrat et sous la goutte de métal. À noter que le flux  $q(t)$  provenant de la goutte de métal est transféré aux nœuds  $(1,j)$  où  $j$  est compris entre les nœuds du substrat qui sont vis-à-vis du premier et du dernier nœud de la goutte [52]. La façon d'écrire l'équation d'un flux entre deux nœuds va comme suit. Le flux allant du nœud  $(1,j)$  vers le nœud  $(2,j)$  s'écrit  $q_{1,2}$ . Celui allant du nœud  $(i,j-1)$  vers le nœud  $(i,j)$  s'écrit  $q_{j-1,j}$ . Il est important d'être cohérent avec les signes utilisés. Les flux sont positifs lorsque les différences de température entre deux nœuds s'expriment du nœud situé en aval du flux moins le nœud situé en amont.

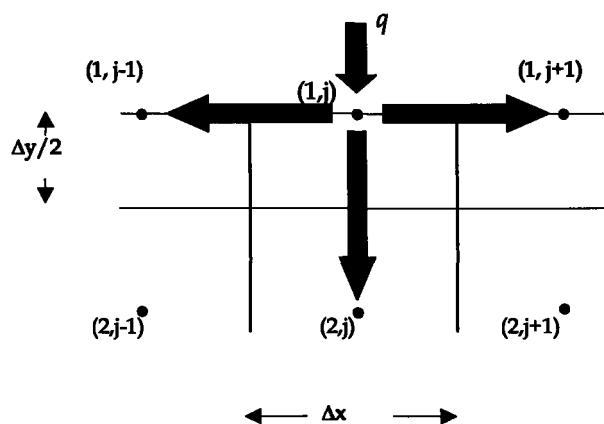


Figure 26 - Système nodal pour le développement des équations par la méthode des différences finis

Pour les nœuds  $1,j$  de la Figure 26 :

$$\begin{cases} \text{énergie qui entre} + \text{énergie générée} = \\ \text{énergie qui sort} + \text{énergie accumulée} \end{cases} \quad (16)$$

$$\{q + 0 = (q_{1,2} + q_{j,j-1} + q_{j,j+1}) + E_{1,j}\} \quad (17)$$

$$\left\{ q = \frac{2k_{1,j} \cdot k_{2,j}}{k_{1,j} + k_{2,j}} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta y} \cdot (T_{1,j} - T_{2,j}) + \frac{2k_{1,j} \cdot k_{1,j-1}}{k_{1,j} + k_{1,j-1}} \cdot \frac{\Delta y}{2} \cdot \frac{(T_{1,j} - T_{1,j-1})}{\Delta x} + \right. \\ \left. \frac{2k_{1,j} \cdot k_{1,j+1}}{k_{1,j} + k_{1,j+1}} \cdot \frac{\Delta y}{2} \cdot \frac{(T_{1,j} - T_{1,j+1})}{\Delta x} + \rho \cdot C_{1,j} \cdot \Delta x \cdot \frac{\Delta y}{2} \cdot \frac{\Delta T_{1,j}}{\Delta t} \right\} \quad (18)$$

Après réarrangement,

$$\frac{\Delta T_{1,j}}{\Delta t} = \frac{2}{\rho \cdot C_{1,j} \cdot \Delta x^2} \cdot \left[ q - \frac{2k_{1,j} \cdot k_{2,j}}{k_{1,j} + k_{2,j}} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta y} \cdot (T_{1,j} - T_{2,j}) + \frac{2k_{1,j} \cdot k_{1,j-1}}{k_{1,j} + k_{1,j-1}} \cdot \frac{\Delta y}{2} \cdot \frac{(T_{1,j} - T_{1,j-1})}{\Delta x} + \right. \\ \left. \frac{2k_{1,j} \cdot k_{1,j+1}}{k_{1,j} + k_{1,j+1}} \cdot \frac{\Delta y}{2} \cdot \frac{(T_{1,j} - T_{1,j+1})}{\Delta x} \right] \quad (19)$$

L'équation 19 traduit la variation de la température pour chaque incrément de temps  $\Delta t$ . Il est à noter que cette équation utilise des propriétés thermiques de conductivité ( $k$ ) et de capacité calorifique ( $C$ ) dépendantes de la température. Également, afin de condenser les équations,  $\Delta x$  et  $\Delta y$  ont été considérés de la même valeur et ont donc été simplifiés.

L'équation 19 n'est toutefois pas l'équation finale utilisée dans le calcul numérique car le programme ne recherche pas une variation de température mais plutôt une évolution. Sachant que:

$$T_{1,j}^{t+1} = T_{1,j}^t + \Delta T_{1,j}^{t,t+1} \quad (20)$$

et en introduisant les modules de Fourier  $Fo_j^-, Fo_j^+, Fo_i^-, Fo_i^+$  [53] tel que :

$$Fo_j^- = \frac{\alpha \cdot \Delta t}{\Delta x^2} = \frac{k \cdot \Delta t}{\rho \cdot C \cdot \Delta x^2} \Big|_{(1,j)} = \frac{2k_{1,j} \cdot k_{1,j-1}}{k_{1,j} + k_{1,j-1}} \cdot \frac{\Delta t}{\rho \cdot C_{1,j} \cdot \Delta x^2} \quad (21)$$

L'équation 20 se réécrit :

$$T_{1,j}^{t+1} = T_{1,j}^t \cdot [1 - Fo_j^- - 2Fo_i^+ - Fo_j^+] + T_{1,j-1}^t \cdot Fo_j^- + 2 \cdot T_{2,j}^t \cdot Fo_i^+ + T_{1,j+1}^t \cdot Fo_j^+ + \frac{2 \cdot q \cdot Fo_i^+ \cdot \Delta x \cdot (k_{1,j} + k_{2,j})}{2k_{1,j} \cdot k_{2,j}} \quad (22)$$

Les modules de Fourier permettent de vérifier la convergence de la solution numérique explicite. Le premier terme de droite de l'équation 22 montre clairement ce fait. Si  $(Fo_j^- + 2Fo_i^+ + Fo_j^+) \geq 1$ , la température  $T_{1,j}^t$  multiplierait un coefficient négatif et la solution divergerait. Cette restriction dans la valeur des modules de Fourier limite automatiquement le choix des valeurs de  $\Delta t$  et  $\Delta x$  (ou  $\Delta y$ ). C'est, à toutes fins pratiques, la faiblesse principale de la formulation explicite.

Pour l'écriture des équations des nœuds au centre du substrat, sur les côtés ou dans les coins, le principe demeure le même. Seulement, en ces endroits, les bilans de chaleur sont différents en raison de la géométrie et de l'existence ou non de conditions adiabatiques au voisinage (ANNEXE A).

Les équations numériques du côté de la goutte diffèrent quelque peu de celles du substrat et ce, en raison du changement de phase qui s'opère dans la goutte et également, des pertes thermiques par convection et rayonnement à la surface de celle-ci.

La formulation enthalpique est utilisée pour traiter le problème de conduction de la chaleur transitoire dans la goutte en une dimension :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( k(T) \frac{\partial T}{\partial x} \right) = \rho \frac{\partial H}{\partial t} \quad (23)$$

Cette équation de transport est applicable pour les phases liquide et solide et prend en compte les variations de  $k$  (conductivité thermique) et  $H$  (enthalpie massique) avec la température [54].

Par la suite, la même méthodologie que celle employée pour l'écriture des équations du substrat permet l'obtention des équations dans la goutte (ANNEXE

A). À noter que les pertes thermiques effectives à la surface du substrat sont supposées ainsi [50] :

$$q_{perte} = q_{rayonnement} + q_{convection} \quad (24)$$

où

$$q_{rayonnement} = \varepsilon \cdot \sigma \cdot (T_{surface}^4 - T_{ambient}^4) \quad (25)$$

$$q_{convection} = h_{convection} (T_{surface} - T_{ambient}) \quad (26)$$

Les valeurs des enthalpies obtenues des équations de l'ANNEXE A doivent être converties en température. Pour ce faire, la méthode de Newton-Raphson est appliquée à l'équation 27 [55]. Cette méthode permet la résolution d'équations non-linéaires.

$$\Delta H^T = H(T) - H(273.15 + T_{ambiante}) = \int_{273.15 + T_{ambiante}}^T C_p dT + L(1 - f_s(T)) \quad (27)$$

Il est à noter que les valeurs pour la capacité calorifique sont intégrées sur les plages de températures correspondant à chaque phase. Également, la fraction solide  $f_s$  est considérée comme variant de façon linéaire avec la température dans la zone de coexistence des deux phases.

## 4. EXPÉRIMENTATIONS

Une représentation schématique du montage expérimental est donnée à la Figure 27. Ce montage est semblable à ceux utilisés par Ebrill et al. [5] et Leboeuf et al. [6]. Un élément chauffant entourant un creuset de graphite a été utilisé pour fondre l'aluminium commercialement pur (AA 1080, 99.8%) et l'amener à une température de 725°C. Le creuset de graphite est d'une hauteur de 155mm et d'un diamètre de 75mm permettant ainsi de fusionner environ 200g d'aluminium. Un

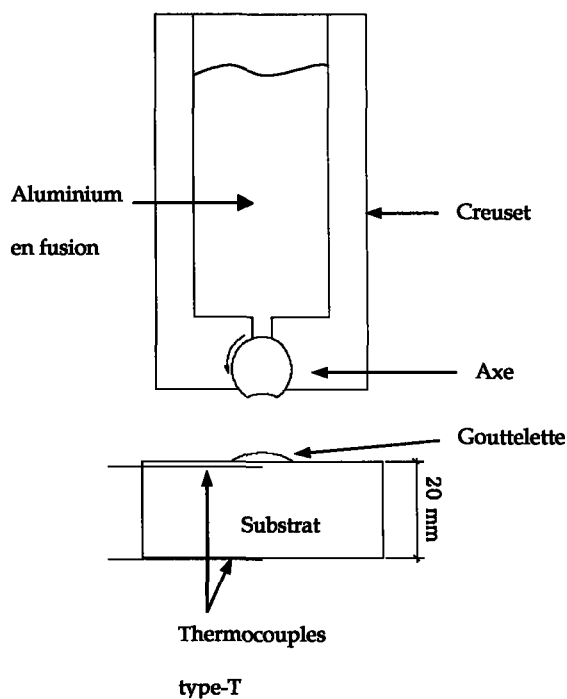


Figure 27 – Représentation schématique du montage expérimental

axe de graphite dans lequel une cavité est machinée est inséré dans la partie inférieure du creuset (Figure 28). Par la rotation de l'axe à l'aide d'un moteur électrique, le métal liquide remplit la cavité, permettant ainsi de libérer une gouttelette de métal sur le substrat.

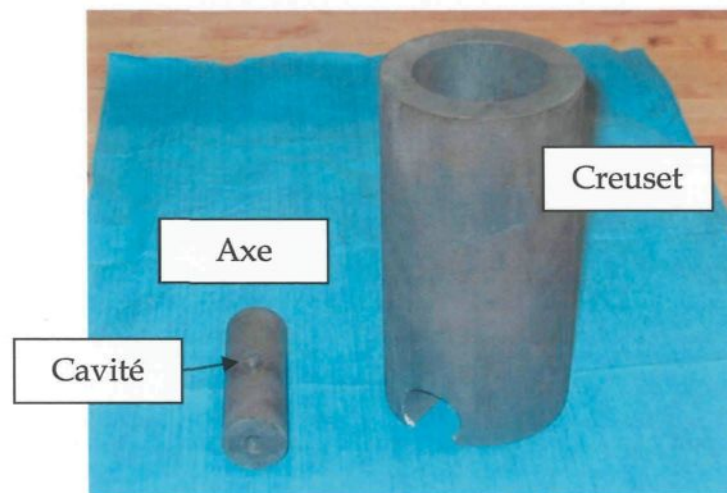


Figure 28 - Photos du creuset et de l'axe de graphite

Le volume des gouttelettes est déterminé par la dimension de la cavité usinée dans l'axe. Typiquement, les gouttelettes avaient une masse variant entre 0.3 et 0.5g. Les substrats utilisés sont faits de cuivre électrolytique (99.9+%) et d'acier H13 usinés en des blocs de 20mm d'épaisseur et ayant une largeur et une longueur de 50mm et 130mm respectivement. Certains substrats étaient revêtus d'argent, de chrome, de carbures de chrome, de titane, de TiAlN et de nitrure de titane. Certains de ces revêtements sont utilisés dans le domaine de fonderie tandis que d'autres ont été

utilisés à titre exploratoire. Tous les substrats ont été polis jusqu'à l'obtention de rugosités allant de 0.1 à 0.4  $\mu m R_a$ . En tout, soixante expériences ont été réalisées (ANNEXE B).

Un trou a été percé dans chaque substrat à 1mm sous la surface afin d'y insérer un thermocouple type « T », ce qui a permis de mesurer l'évolution de la température dans le substrat. Un autre thermocouple fixé au dos du substrat a assuré l'uniformité de la température de ce dernier avant chaque essai. Les thermocouples ont été maintenus en place avec un système à ressort qui permet un bon contact entre la jonction chaude des thermocouples et le substrat (Figure 29). Les

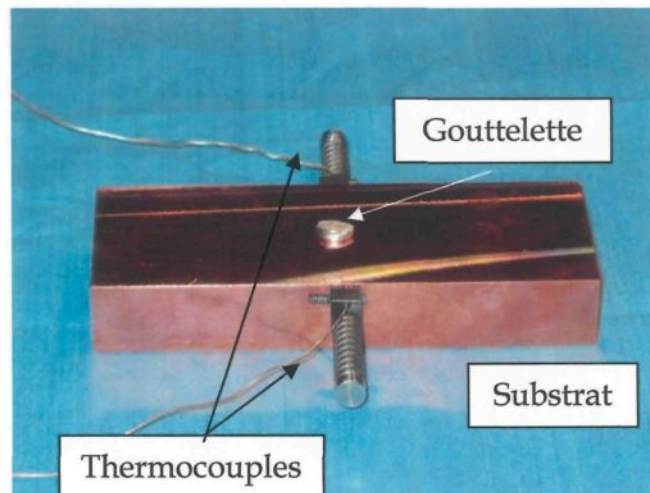


Figure 29 – Photo d'un substrat de cuivre sans revêtement ( $0.12 \mu m R_a$ )

températures sont enregistrées à une fréquence de 1000Hz. Une table mobile permet d'assurer un bon alignement entre la gouttelette et le thermocouple. Le mauvais alignement d'une gouttelette et des thermocouples est la principale source d'erreur expérimentale. Une attention particulière a donc été portée à cet aspect. Un système de refroidissement, dans lequel de l'eau circule, est vissé au dos du substrat afin de le refroidir une température initiale voisine de 25°C entre chaque essai. Le substrat repose sur un lit inclinable afin de pouvoir incliner le substrat après un essai et ainsi caractériser l'adhérence de la gouttelette sur le

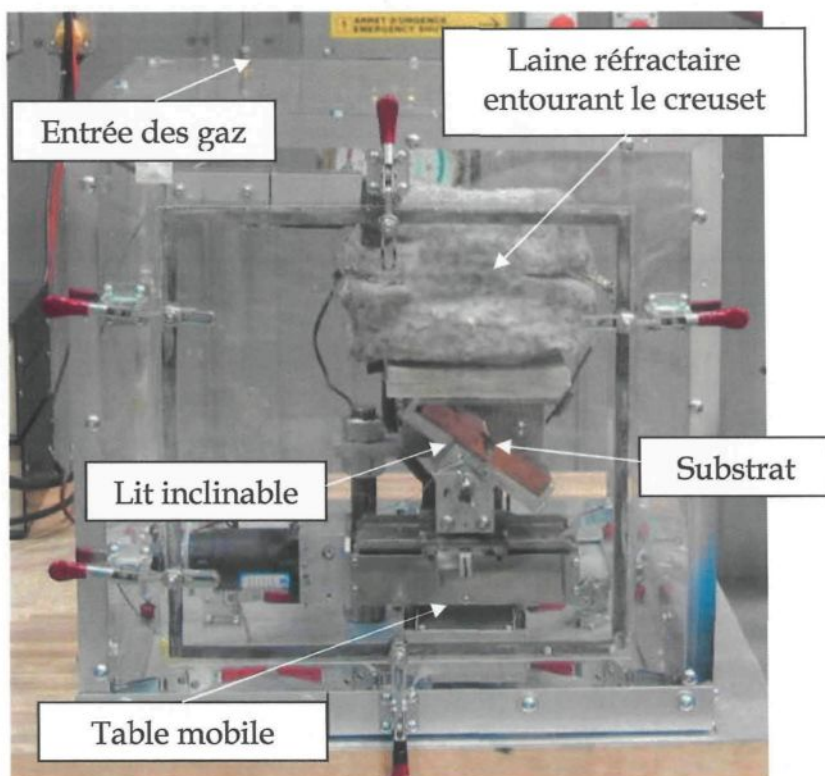


Figure 30 - Photo du montage expérimental

substrat. Or, certains problèmes avec le montage n'ont pas permis d'utiliser cette caractéristique du montage et tous les essais ont été réalisés avec un substrat horizontal. Le montage est contenu à l'intérieur d'une chambre d'acrylique afin d'assurer un contrôle de l'atmosphère (Figure 30). Les expériences ont été conduites dans des atmosphères d'air purifié ( $\text{H}_2\text{O} < 10$  ppm, BOC Canada Ltd), d'hélium (99.999%, Air Liquide Canada) ou d'argon (99.998%, Air Liquide Canada).

Les Tableaux 2, 3, 4 et 5 listent les propriétés thermophysiques des matériaux composant les substrats, les revêtements, le métal de la gouttelette et les atmosphères.

Tableau 2 – Propriétés thermophysiques des matériaux des substrats

| Propriétés [Unités]  | Valeur   | Réf. |
|--|--|------|
| <u>Cuivre ETP</u>  |  |      |
| Capacité calorifique [ $\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ] | $4.77 \cdot 10^{-1} - 1.68 \cdot 10^{-4}T - 5.07 \cdot 10^{-3}T^2 + 1.49 \cdot 10^{-7}T^3$ | 55   |
| Conductivité thermique [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ] | $419 - 6 \cdot 10^{-2}T$   | 56   |
| Densité [ $\text{kg m}^{-3}$ ]                             | 8960   | 57   |
| <u>Acier outil H13</u>                                     |  |      |
| Capacité calorifique [ $\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ] | $4.88 \cdot 10^{-1} - 2.03 \cdot 10^{-4}T + 3.66 \cdot 10^{-7}T^2$                         | 58   |
| Conductivité thermique [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ] | 24.3   | 59   |
| Densité [ $\text{kg m}^{-3}$ ]                             | 7800   | 59   |

Tableau 3 – Propriétés thermophysiques des matériaux constituant les revêtements

| Propriétés [Unités]   | Valeur  | Réf. |
|---|---|------|
| <u>Chrome</u>   |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $3.02 \cdot 10^{-1} + 6.13 \cdot 10^{-4}T - 4.0 \cdot 10^{-7}T^2$ | 60   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $106.19 - 0.039T$   | 61   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 7800  | 59   |
| <u>Titane</u>   |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $4.39 \cdot 10^{-1} + 3.05 \cdot 10^{-4}T - 8.0 \cdot 10^{-8}T^2$ | 60   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $15.36 - 0.005T$  | 61   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 4540  | 59   |
| <u>Argent</u>   |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $2.14 \cdot 10^{-1} + 6.03 \cdot 10^{-5}T$                        | 60   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $457.53 - 0.079T$   | 61   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 10500   | 59   |
| <u>TiAlN</u>  |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $6.87 \cdot 10^{-1} + 1.05 \cdot 10^{-4}T$                        | 62   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $10 - 0.007T$   | 62   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 4700  | 62   |
| <u>CrC</u>  |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $1.99 \cdot 10^{-1} + 1.43 \cdot 10^{-3}T - 9.0 \cdot 10^{-7}T^2$ | 56   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | 19.0  | 63   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 6700  | 63   |
| <u>TiN</u>  |   |      |
| Capacité calorifique [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $7.35 \cdot 10^{-1} + 1.05 \cdot 10^{-4}T$                        | 64   |
| Conductivité thermique [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $3.4 + 1.3 \cdot 10^{-3}T$  | 65   |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                               | 5220  | 59   |

**Tableau 4 – Propriétés thermophysiques de l'aluminium constituant les gouttelettes**

| <b>Aluminium AA 1080</b>  |   |    |
|---|---|----|
| Capacité calorifique solide [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]  | $1.16 - 6.08 \cdot 10^{-4}T - 1.33 \cdot 10^{-4}T^{-2} + 7.69 \cdot 10^{-7}T^2$ | 55 |
| Capacité calorifique liquide [kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | 1.17  | 55 |
| Conductivité thermique solide [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]  | $2.64 \cdot 10^2 - 5.63 \cdot 10^{-2}T$   | 56 |
| Conductivité thermique liquide [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | $6.0 \cdot 10^1 + 3.27 \cdot 10^{-2}T$  | 56 |
| Température solidus [K]   | 919.15  | 59 |
| Température liquidus [K]  | 930.15  | 59 |
| Densité [kg m <sup>-3</sup> ]                                       | 2700  | 59 |
| Chaleur latente de solidification [kJ kg <sup>-1</sup> ]            | 396.6   | 55 |

**Tableau 5 – Conductivités des gaz utilisés dans les essais<sup>§</sup>**

| <b>Gaz</b>                                       | <b>Conductivité</b> |
|--|---------------------|
| Air purifié [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ] | 0.0262              |
| Hélium [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]      | 0.142               |
| Argon [W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]       | 0,01772             |

---

<sup>§</sup> <http://fr.wikipedia.org>

## 5. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Les influences de trois paramètres ont été analysées au cours des essais, à savoir la nature du substrat, du revêtement et de l'atmosphère gazeuse dans laquelle les essais se sont déroulés. À noter également que l'influence de la tension de surface du métal constituant la gouttelette a été expérimentée mais sans succès. Un bref paragraphe sur le sujet est présenté à la section 5.7.

Pour chacun des essais, seul le paramètre à l'étude a été varié, les autres paramètres ont été gardés constants afin de ne pas brouiller l'effet de ce paramètre sur les résultats de mouillabilité dynamique et de coefficient de transfert de chaleur d'interface. Par exemple, la hauteur de chute des gouttelettes a été fixée à 7mm, soit la hauteur minimale permise par les dimensions des gouttelettes dont les diamètres variaient de 5.7 à 6.3 mm. Avec les masses de gouttelettes relativement faible, cette hauteur de chute a permis de minimiser les nombres de Weber autour de 2 et ainsi maximiser l'effet des forces visqueuses sur les forces d'inertie (paragraphe 3.1.4). Les essais se sont déroulés à température ambiante, avec un taux d'humidité relative inférieure à 25% et avec une température initiale de gouttelette autour de 725°C. Les paramètres expérimentaux se retrouvent à l'ANNEXE B.

Tous les résultats des évolutions de températures dans les substrats ont été lissés à l'aide d'un polynôme de degré six afin d'éliminer le bruit associé aux prises de températures dans le substrat à une fréquence de 1000Hz (Figure 31). Les calculs de coefficients de transfert de chaleur et de flux de chaleur ont été calculés à partir de ces résultats. Par la suite, une moyenne sur les résultats de 5 essais a été calculée pour chaque condition expérimentale. Les écarts-types sur les moyennes varient entre 3 et 18%.

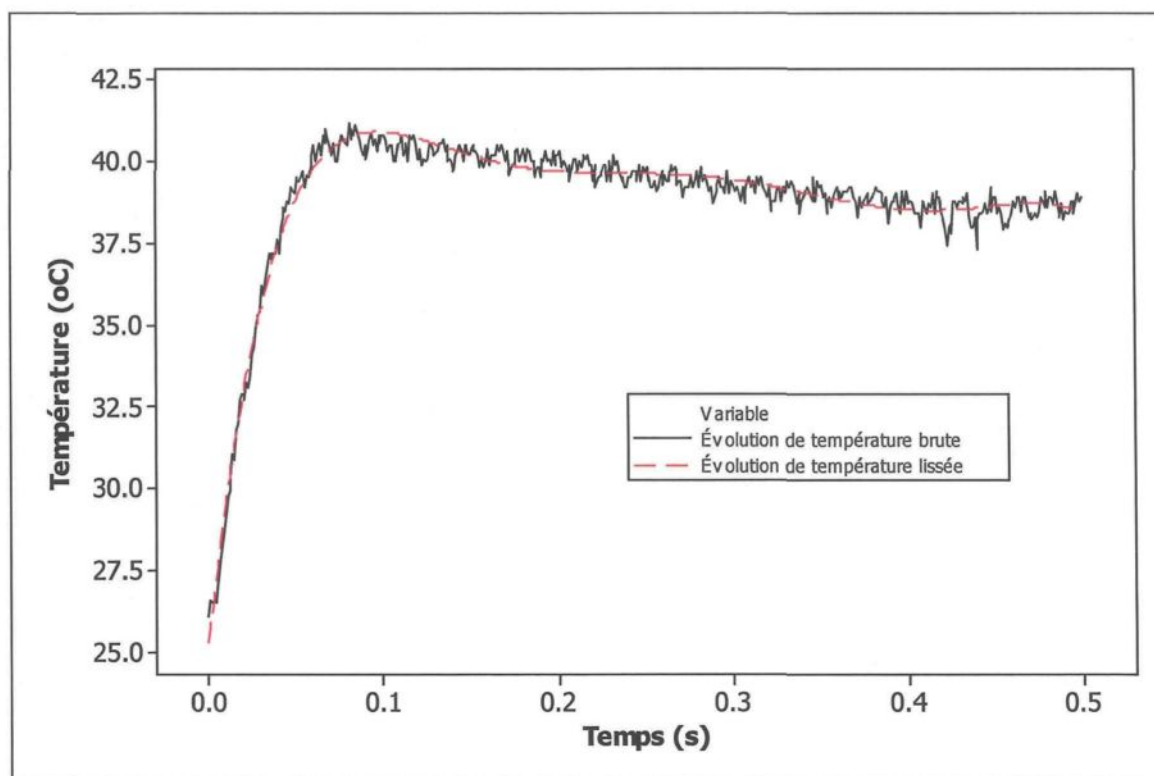


Figure 31 – L'effet du lissage sur l'évolution de la température dans le substrat

Dans le cadre du présent travail, les équations numériques utilisées dans les calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface ont été élaborées tel que décrit à la section 3.2. Or, le développement d'un modèle mathématique requiert certaines validations afin d'assurer la conformité des équations et la première partie de cette section traite de ce sujet. Également, une étude de sensibilité portant sur l'influence du nombre de dimension, des conditions limites du problème ainsi que de la convection dans la gouttelette a été réalisée et est présentée préalablement aux résultats des essais physiques.

## **5.1. Validations des calculs numériques**

### **5.1.1. Validation de la routine 2D côté substrat pour tous nœuds excluant ceux de surface**

Dans la sous-routine du calcul des températures dans le substrat, une condition limite de Dirichlet a été fixée ( $T_s = 500^\circ\text{C}$ ) pour l'ensemble des nœuds situés sur la première ligne du substrat (nœud à la surface  $(1,j)$ ). Pour les autres nœuds dans le substrat, la température a été fixée à  $T_o = 25^\circ\text{C}$ . À des temps donnés (0.001s, 0.01s, 0.1s, 0.2s et 0.5s), les profils de températures obtenus avec les équations du côté du substrat ont été comparés avec les résultats de la solution analytique bien connue en forme de fonction d'erreur reliant la température  $T$  en fonction de la position  $x$  au temps  $t$  :

$$\frac{T - T_s}{T_0 - T_s} = \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{\alpha t}} \quad (28)$$

Le graphique de la Figure 32 montre les résultats des divers profiles de température calculés à différents temps pour un substrat de 20mm d'épaisseur lorsque la température de la surface du substrat est fixée à 500°C. Les résultats des calculs numériques corroborent les calculs analytiques pour les nœuds du substrat, excluant ceux de la surface. Cela laisse croire que les équations sont valides.

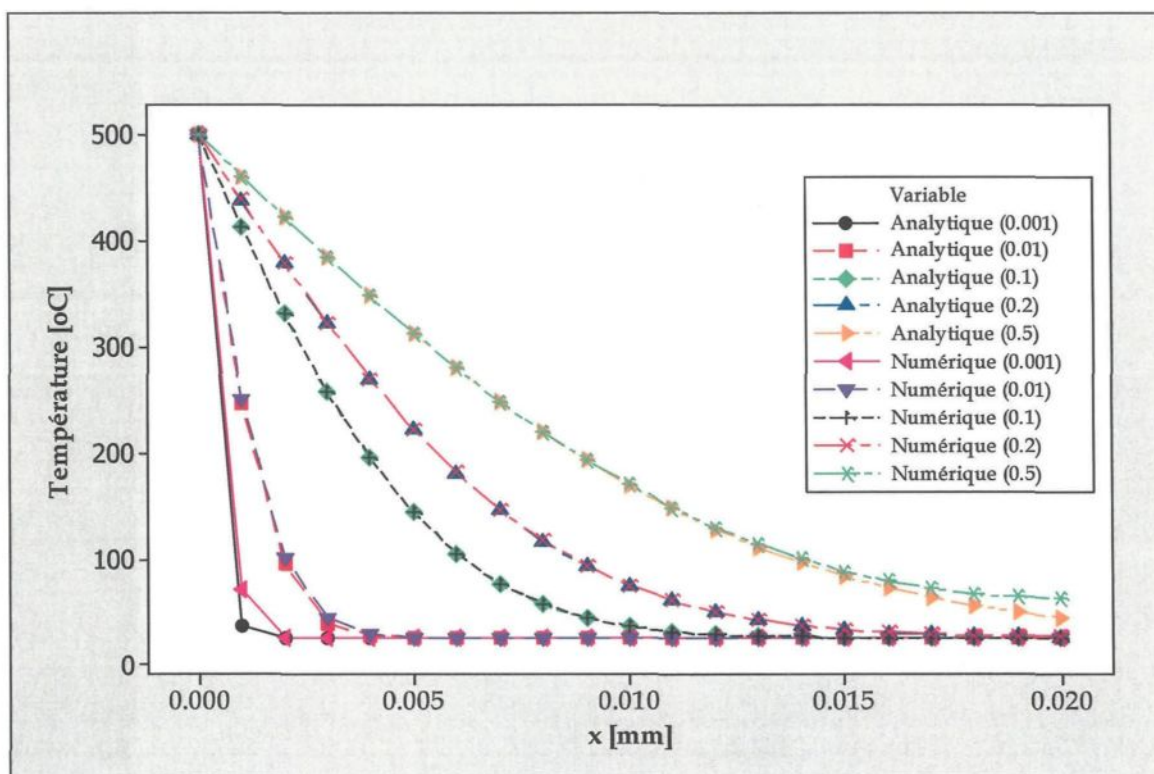


Figure 32 – Comparaison des profiles de températures numériques et analytiques

### 5.1.2. Validation de la routine 2D côté substrat pour les nœuds de surface

Étant donné que la méthodologie utilisée pour la validation des équations numériques estimant l'évolution des températures dans le substrat implique l'imposition d'une condition de Dirichlet ( $T_s = 500^\circ\text{C}$ ), les équations des nœuds de la surface du substrat ont dû être validées par un autre moyen. Ainsi, une condition limite de Neumann ( $q(t) = 2 \cdot 10^5 \text{ W/m}^2$ ) a été imposée à la surface du substrat et les évolutions des températures obtenues en différents endroits ont été comparées avec les températures calculées par le logiciel *ProCast* dans les mêmes conditions. Les maillages utilisés pour discrétiser le substrat étaient identiques, à savoir un substrat d'une épaisseur de 20mm par 50mm de largeur ayant des éléments de 1mm\*1mm.

Trois courbes de températures en fonction du temps ont été obtenues (Figure 33), soit une courbe pour le deuxième nœud du substrat, une courbe pour le nœud central et finalement, une courbe pour le dernier nœud du substrat. Les résultats illustrés à la Figure 33 montrent que, pour les mêmes endroits dans le substrat, les courbes d'évolution de température obtenues des calculs en *Fortran* superposent celles tirées des calculs de *Procast*. Les équations régissant le comportement de la température à la surface du substrat ont donc été, de ce fait, validées.

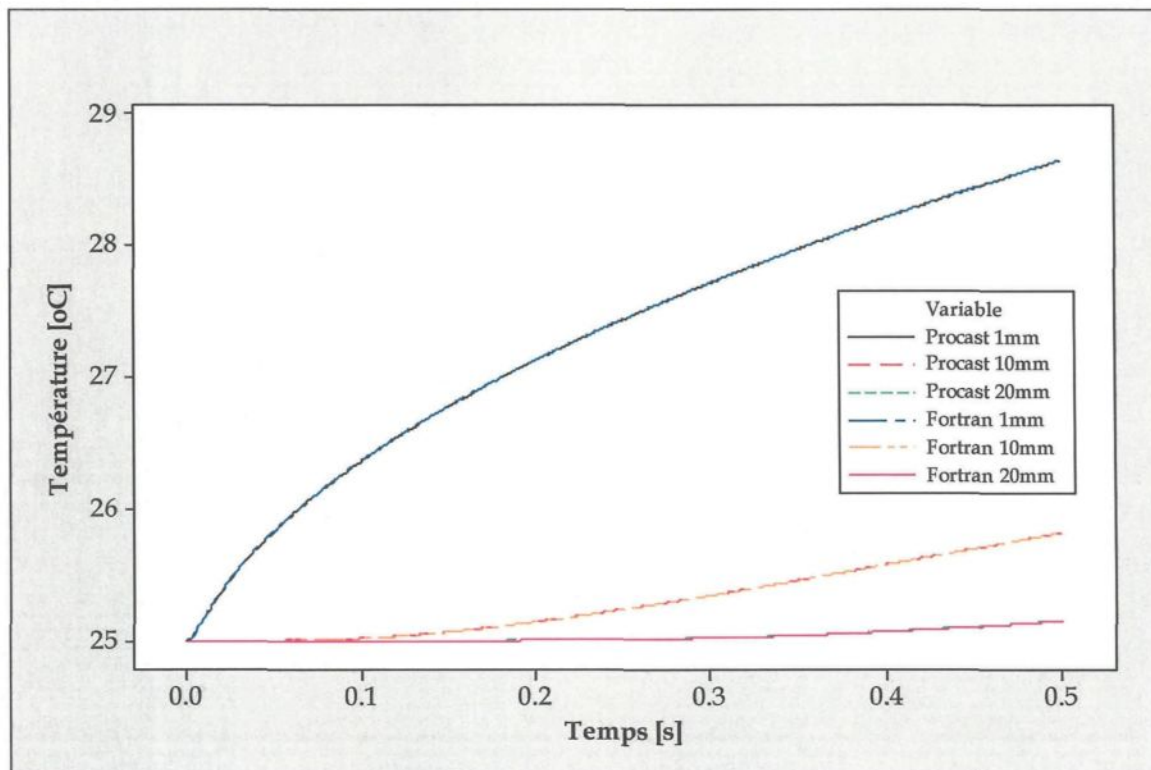


Figure 33 - Comparaison des historiques de températures calculés avec Fortran et Procast

### 5.1.3. Validation de la routine 1D du côté de la gouttelette

La méthodologie qui a été employée pour la validation des équations déterminant l'évolution des températures dans la gouttelette d'aluminium est différente de celle exposée précédemment. En effet, le changement de phase de l'aluminium liquide qui se solidifie sur le substrat offre la possibilité de déterminer l'épaisseur solidifiée en fonction du temps.

La méthode numérique qui a permis de déterminer l'épaisseur de la goutte solidifiée est plutôt simple. La condition d'interface substrat-goutte a tout d'abord été déterminée en spécifiant la valeur du coefficient de transfert de chaleur d'interface «  $h(t)$  » qui, à son tour, détermine le flux de chaleur circulant entre la goutte et le substrat (voir équation 9). Par la suite, la méthode numérique pour déterminer l'épaisseur de métal solidifiée consiste à rechercher, par la solution de l'équation 27, l'endroit où la température égale celle de fusion de l'aluminium pure. À cet endroit correspond une position en «  $j$  » qui, par la suite, a été portée sur un graphique en fonction du temps (Figure 34). L'évolution du front de solidification a ainsi été obtenue en utilisant les propriétés de l'aluminium liquide (Tableau 3).

Pour leur part, les résultats analytiques de l'épaisseur de métal solidifiée ( $M$ ) ont été obtenus par l'entremise de la relation suivante [66] :

$$M = \frac{h \cdot (T_G - T_S)}{\alpha \cdot \rho \cdot \Delta H_F} \cdot t - \frac{h}{2 \cdot k} \cdot M^2 \quad (29)$$

où,

$$\alpha = \frac{1}{2} + \sqrt{\frac{1}{4} + \frac{C \cdot (T_G - T_S)}{3 \cdot \Delta H_F}}$$

$T_G$  = Température de la gouttelette

$T_S$  = Température du substrat

$C$  = Capacité thermique de l'aluminium liquide

$\Delta H_F$  = Chaleur latente de solidification de l'aluminium liquide

$h$  = Coefficient de transfert de chaleur à l'interface substrat - goutte

$k$  = Conductivité thermique de l'aluminium liquide

$\rho$  = Masse volumique de l'aluminium liquide

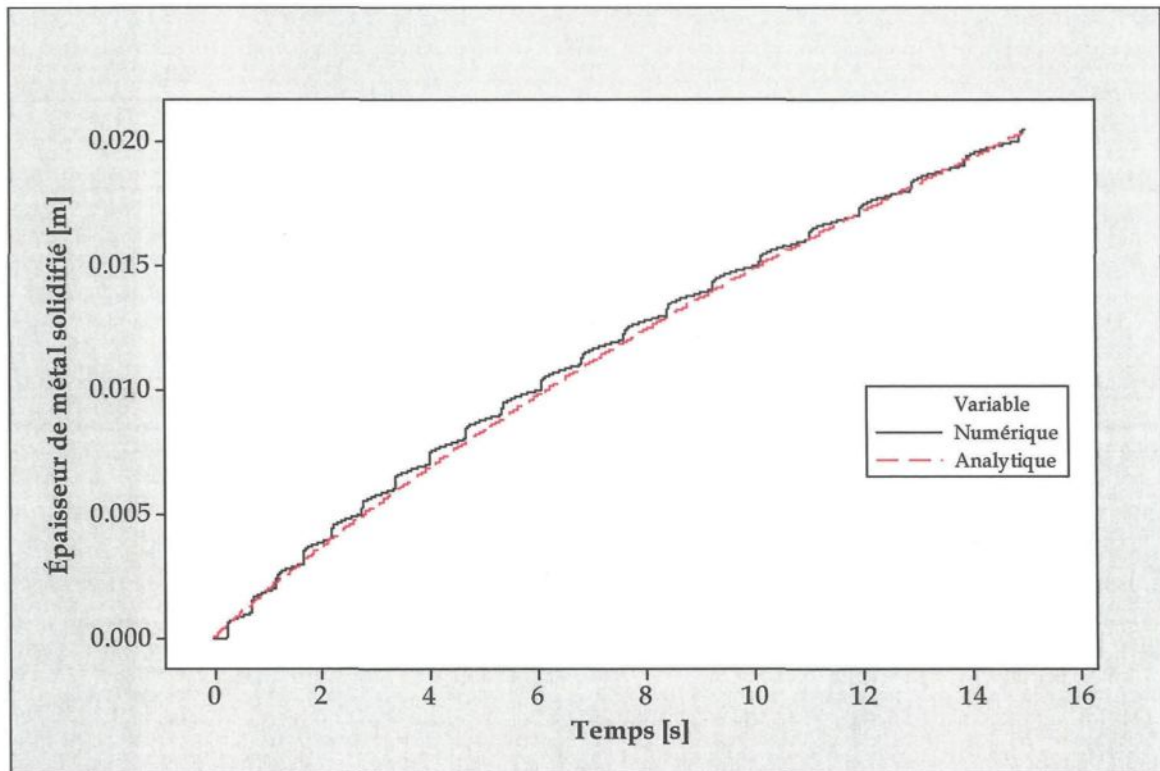


Figure 34 – Comparaison des calculs numériques et analytiques de l'épaisseur de métal solidifiée

À noter que l'équation analytique 29 n'est valide qu'avec les métaux purs ne présentant aucune surfusion et se solidifiant sur un substrat à température constante.

Le graphique de la Figure 34 montre bien que les résultats numériques et analytiques sont très similaires, ce qui valide les équations mathématiques du côté de la gouttelette.

## **5.2. Influence du nombre de dimensions de la modélisation sur le transfert de chaleur**

Des calculs préliminaires à l'aide du logiciel *Procast* avaient permis de constater qu'une modélisation du transfert de chaleur en deux dimensions du côté du substrat permettait d'obtenir des résultats plus proches de la réalité qu'une modélisation en une seule dimension. Il était donc intéressant de quantifier les différences entre les calculs 1D et 2D et ce, pour de réels résultats expérimentaux et en utilisant le code développé dans le cadre des présents travaux. À noter que, tout comme pour l'ensemble des calculs de l'étude de sensibilité (section 5.3), ces calculs ont été réalisés à partir des évolutions de température d'un substrat de cuivre pur sur lequel des gouttelettes d'aluminium se sont solidifiées dans une atmosphère d'air purifié. Également, pour les calculs 2D, le flux de chaleur a été

imposé sur une parcelle de la surface du substrat correspondant à la dimension de la gouttelette.

La première série de calculs a été réalisée en imposant une condition adiabatique au dos du substrat de 20mm d'épaisseur, ce qui est une hypothèse valable considérant les dimensions respectives de la gouttelette et du substrat.

Les résultats sont illustrés à la Figure 35 (les illustrations en niveaux de gris représentent les distributions de températures des modèles 1D et 2D) et montrent que le flux de chaleur calculé avec le modèle 1D est inférieur à celui calculé avec le modèle 2D. Ceci est dû au fait que, pour un même historique de températures dans le substrat, la modélisation du flux de chaleur en 2D prend en compte la chaleur qui se propage latéralement dans le substrat. Les coefficients de transfert de chaleur d'interface suivent également cette tendance.

L'aire sous les courbes de la Figure 35 représente l'énergie totale par unité de longueur transmise de la gouttelette au substrat. Pour les premières 500 ms, cette énergie est 35% plus importante avec la modélisation en 2D. Conséquemment, le flux de chaleur latéral est un élément important du processus.

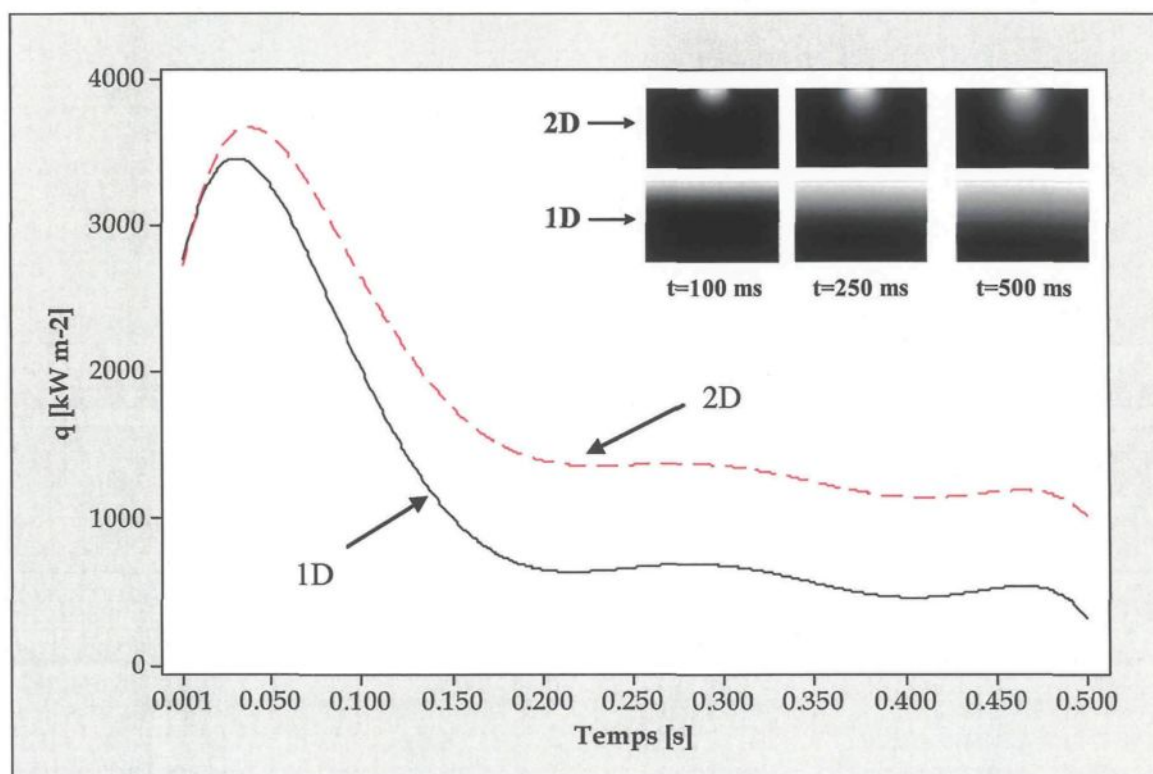


Figure 35 – Évolution des flux de chaleur pour des modélisations 1D et 2D

### 5.3. Étude de sensibilité

#### 5.3.1. Conditions limites au dos du substrat

L'influence de la condition limite au dos du substrat a été analysée en comparant le modèle 2D avec une condition adiabatique au modèle 1D avec une condition de Dirichlet [48]. Cette dernière a été obtenue en plaçant un second thermocouple à 5mm sous la surface du substrat en addition au thermocouple déjà placé à 1mm de la surface. Ainsi, dans cette version du modèle 1D, il a été supposé que le substrat avait une épaisseur de 5mm et la condition limite a été donnée par les températures enregistrées par le thermocouple à cette position. Ce modèle a été utilisé par Leboeuf [6].

Les résultats de la Figure 36 montrent qu'il ya peu de différence entre les modèles. Tel que mentionné précédemment, les modèles 1D et 2D diffèrent en ce qui a trait au flux de latéral qui est pris en compte par le modèle 2D. Toutefois, les résultats présentés à la Figure 36 laissent croire que le flux de chaleur latéral est négligeable sur les 5 premiers millimètres. Ainsi, un modèle 1D avec une condition de Dirichlet suffisamment proche de la surface du substrat peut donner une bonne approximation du transfert de chaleur. Néanmoins, le modèle 2D demeure avantageux car il n'implique pas de deuxième thermocouple susceptible de perturber le flux de chaleur et c'est ce modèle qui a été utilisé pour les calculs.

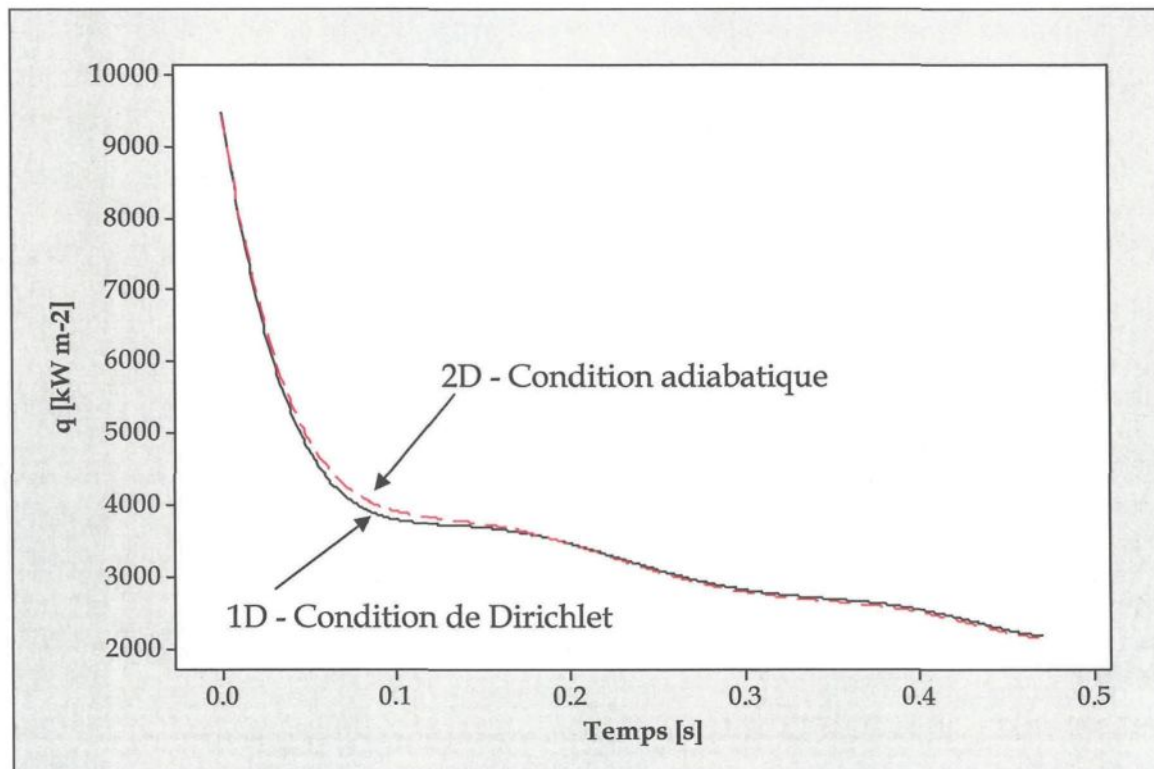


Figure 36 - Évolution des flux de chaleur pour des modélisations 1D et 2D

### 5.3.2. Conditions limites au dessus de la gouttelette

Un autre facteur pouvant affecter les calculs des coefficients de transfert de chaleur et de flux de chaleur est la perte de chaleur par convection naturelle et par rayonnement à la surface de la gouttelette (paragraphe 3.2.2.4). Cet aspect a donc été analysé et les résultats de la Figure 37 montrent que les calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface sont pratiquement indépendants des pertes thermiques par convection et rayonnement à la surface de la gouttelette. Les courbes sont, en effet, superposées, ce qui laisse croire que la chaleur contenue dans la gouttelette est à toutes fins pratique entièrement transmise via l'interface

avec le substrat. Les pertes de chaleur par convection naturelle et par rayonnement à la surface de la gouttele ont donc été négligé dans modèle de calcul.

La Figure 37 montre également l'évolution des températures de la gouttelette à l'interface avec le substrat qui, après environ 0.1s, augmentent.

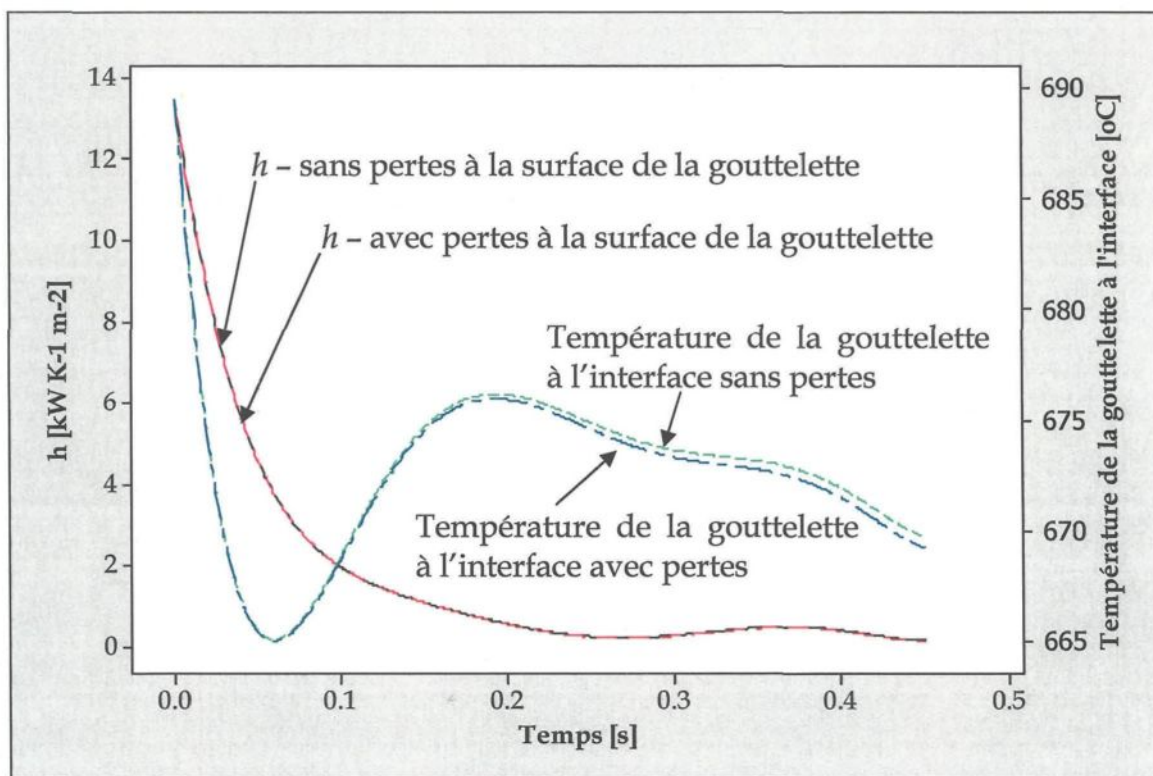


Figure 37 - Influence des pertes thermiques par convection et rayonnement à la surface de la gouttelette

Cela peut être expliqué par l'évolution du coefficient  $h(t)$  illustré sur le même graphique. L'importante valeur du coefficient dans les premiers instants de la

solidification indique qu'il y a un bon contact entre la gouttelette et le substrat, produisant ainsi une importante diminution de la température de cette dernière. Par la suite, le coefficient de transfert de chaleur décroît rapidement et cela est attribuable à la formation d'un espacement d'air à l'interface suite à la rétraction du métal qui se solidifie [30]. De par ce phénomène, le contact à l'interface devient moins intime et la chaleur du métal liquide de la gouttelette continue à être conduite à l'interface. Étant donnée la moins bonne qualité du contact, la chaleur ne peut être transférée aussi efficacement au substrat, ce qui fait augmenter la température de la gouttelette à l'interface.

### 5.3.3. Influence de la convection dans la gouttelette

Le dernier facteur analysé dans l'étude de sensibilité a été l'influence de la convection dans la gouttelette. Tel qu'illustré à la Figure 38, les gouttelettes se meuvent durant quelques millisecondes après l'impact avec le substrat. Ces mouvements produisent de la convection dans la région liquide de la gouttelette qui est susceptible d'affecter le transfert de chaleur. Au paragraphe 3.2.2.2, il a été expliqué que la convection dans la gouttelette pouvait être prise en compte en utilisant la conductivité thermique effective. La Figure 39 illustre les résultats obtenus lorsque le facteur multiplicatif  $k_c$  est varié typiquement de 5 à 10.

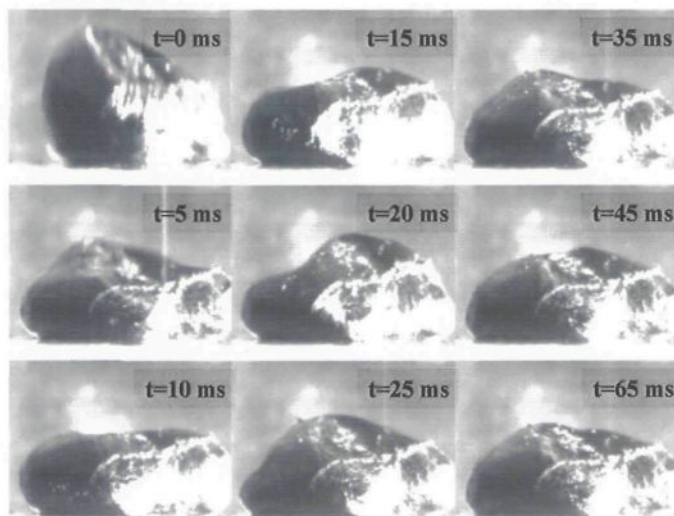


Figure 38 - Évolution de la forme d'une gouttelette après l'impact avec le substrat

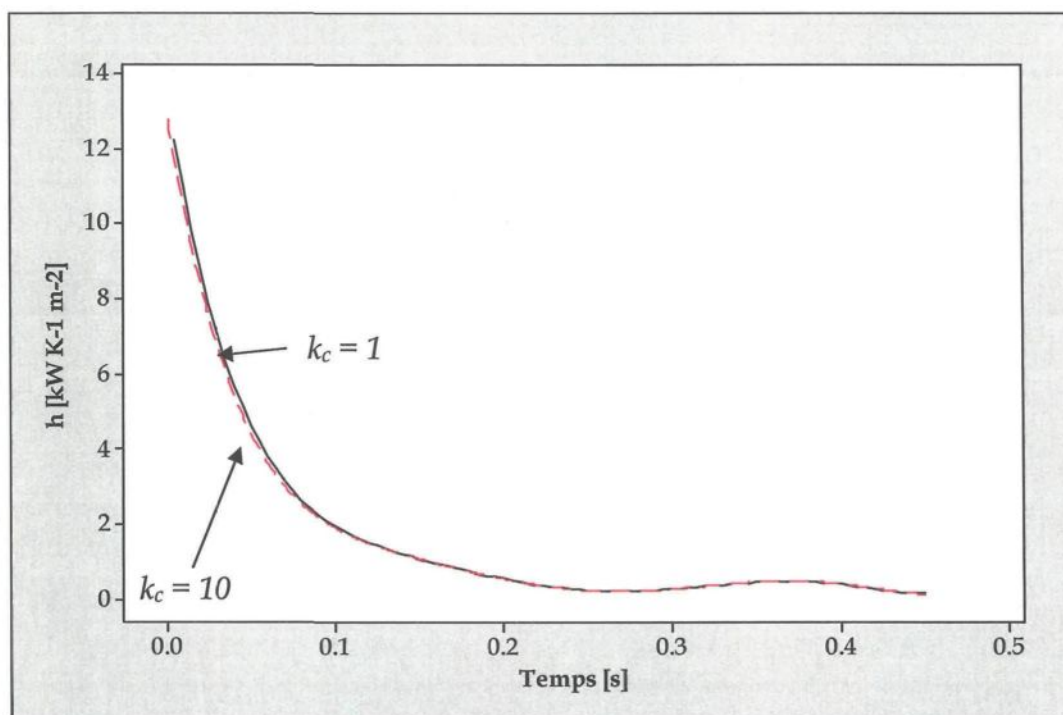


Figure 39 - Influence du facteur multiplicatif  $k_c$  sur le coefficient de transfert de chaleur d'interface

Les résultats montrent qu'il n'y a pas de différences significatives dans les calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface lorsque la convection dans la gouttelette est prise en compte. La conduction est donc le principal mécanisme de transfert de chaleur dans la gouttelette permettant ainsi de négliger l'apport de la convection dans la gouttelette pour le modèle.

#### **5.4. Influence de l'atmosphère sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique**

Les résultats présentés jusqu'à maintenant ont fait ressortir les différences entre les modèles numériques lorsque des conditions limites et des modes de transfert thermique sont modifiés. Le cœur des présents travaux étant de caractériser les interactions entre le coefficient de transfert de chaleur d'interface et la mouillabilité dynamique, la suite de la présente section fera état de ces résultats et de l'influence de certains paramètres sur ceux-ci.

L'effet de l'atmosphère sur le coefficient de transfert de chaleur d'interface et sur la mouillabilité dynamique a été étudié et des essais ont été conduits alternativement dans l'air purifié, l'hélium et l'argon. Les conditions expérimentales sont présentées au Tableau 6. Tout comme pour l'ensemble des expérimentations physiques, les coefficients  $h$  ont été obtenus à l'aide d'un modèle 2D du substrat

ayant une condition limite adiabatique au dos et un modèle 1D de la gouttelette avec cette même condition adiabatique à la surface libre et sans prendre en compte la convection dans la gouttelette.

Tableau 6- Paramètres expérimentaux des essais caractérisant l'influence de l'atmosphère

|                                      | Air Purifié | Hélium | Argon  |
|--------------------------------------|-------------|--------|--------|
| Substrat                             | Cuivre      | Cuivre | Cuivre |
| Revêtement                           | Aucun       | Aucun  | Aucun  |
| Rugosité du substrat [ $\mu m R_a$ ] | 0.12        | 0.12   | 0.12   |
| Masse des gouttelettes [g]           | 0.44        | 0.46   | 0.46   |

Les résultats des essais sont illustrés à la Figure 40 où les facteurs d'étalement ( $\xi$ ) et les coefficients de transfert de chaleur d'interface sont présentés conjointement. L'ordre des valeurs des facteurs d'étalement, bien que peu différents, suit celui des coefficients. Leboeuf [6] a démontré ce même comportement dans une précédente étude portant sur les flux de chaleur. Plus le facteur d'étalement est élevé, traduisant ainsi une meilleure mouillabilité dynamique, plus le coefficient de transfert de chaleur d'interface est élevé (Figure 41). À noter que les barres d'erreur de la Figure 41 représentent un écart-type. Il est donc intéressant de vérifier si cette tendance est confirmée lorsque d'autres paramètres, tels que la nature du substrat et des revêtements, sont testés. Ce point est présenté aux sections suivantes.

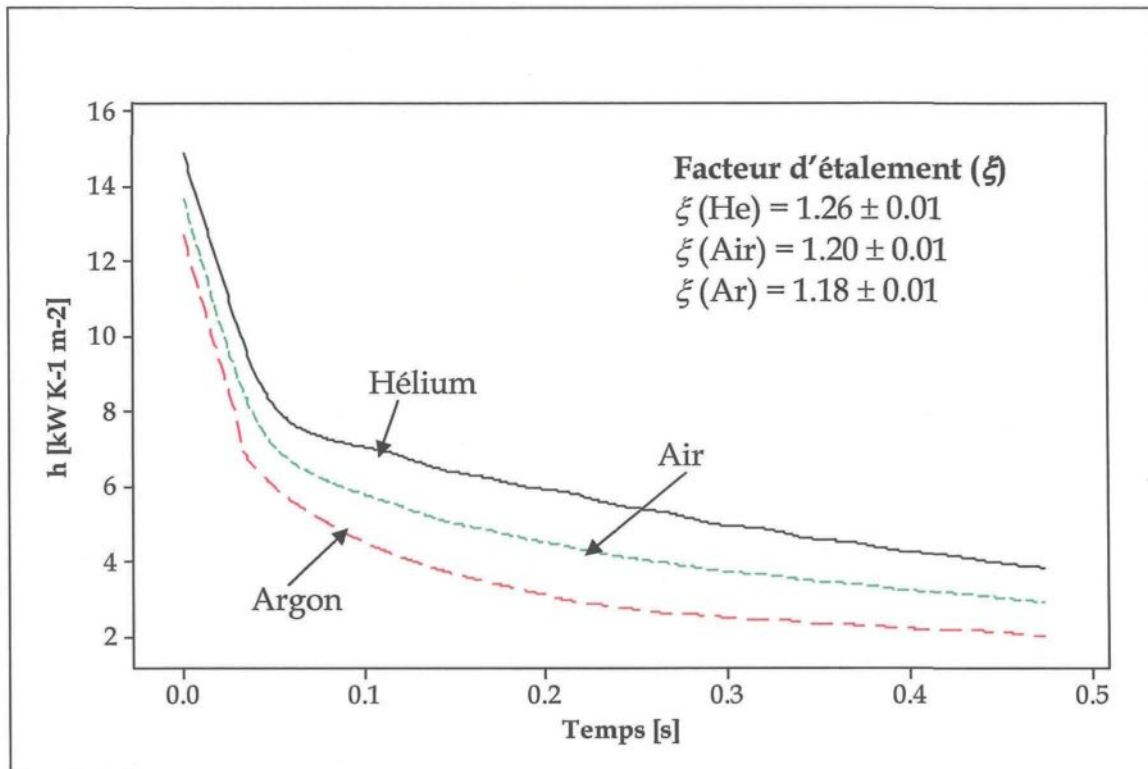


Figure 40 – Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement pour trois atmosphères

Plusieurs facteurs peuvent affecter la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur lorsque l'atmosphère est variée. Par exemple, la formation de la couche d'oxyde sur la gouttelette et l'épaisseur de celle-ci modifient la tension de surface de la gouttelette [67] qui à son tour influence la mouillabilité. Aussi, l'épaisseur et la conductivité thermique de la couche de gaz emprisonnée entre la gouttelette et le substrat peuvent varier en raison de la nature du gaz et il a été démontré que cette couche est la principale résistance au transfert de chaleur [30]. Cela s'explique par le fait que la conductivité d'un gaz est inversement

proportionnelle à sa masse molaire. Ainsi, un gaz ayant une bonne conductivité, donc une faible masse molaire, formera une couche de gaz plus mince qu'un gaz moins conducteur et constitué d'atomes plus gros. C'est le cas de l'hélium qui est plus conducteur que l'argon (Tableau 5) et qui forme une couche de gaz plus mince entre la gouttelette et le substrat, minimisant ainsi la résistance de cette dernière au flux de chaleur.

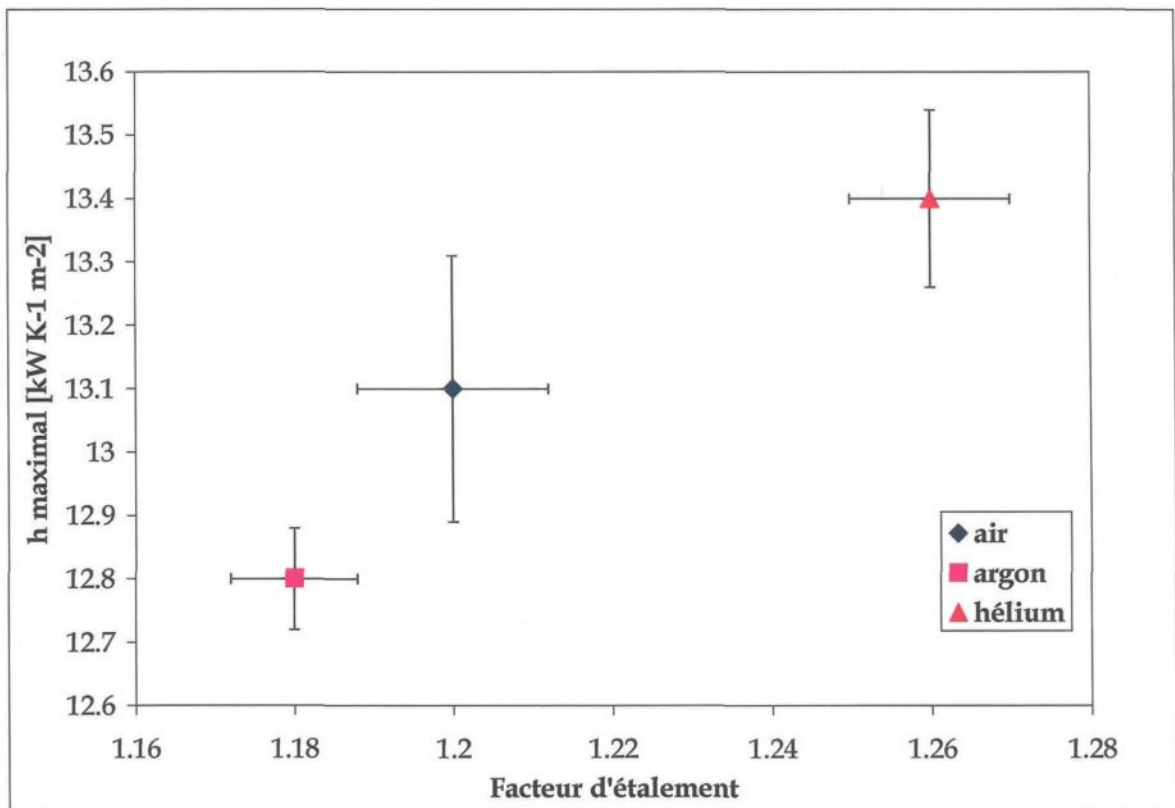


Figure 41 - Coefficients de transfert maximaux et facteurs d'étalement pour trois atmosphères

## 5.5. Influence du revêtement sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique

Que ce soit sur les substrats de cuivre ou d'acier H13, les différents revêtements ont été appliqués par l'une ou l'autre des méthodes présentées au Tableau 7.

Tableau 7 - Méthodes de déposition des revêtements

| Méthodes de déposition          | Revêtements |
|---------------------------------|-------------|
| Projection thermique de poudres | Ag, CrC, Ti |
| Déposition électrolytique       | Cr          |
| Déposition en phase vapeur      | TiAlN, TiN  |

Les trois méthodes utilisées pour revêtir les substrats ont conduit à des revêtements d'épaisseurs et de densités différentes. Pour ces raisons, il a été impossible d'obtenir des rugosités identiques, quoique dans le même ordre de grandeur (de 0.12 à 0.40  $\mu m$   $R_a$ ). Ce facteur a donc été considéré comme ayant un impact négligeable sur les paramètres à l'étude. Les photos de la Figure 42 (même grossissement) illustrent bien les différences entre les revêtements. La photo A montre un revêtement par déposition électrolytique de chrome et la photo B montre un revêtement par projection thermique de poudres d'argent.

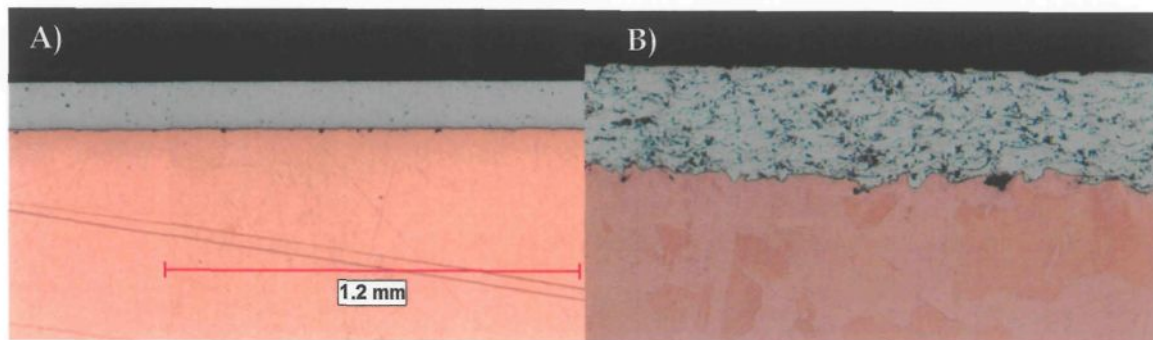


Figure 42 – Photos (même grossissement) montrant les différences dans l'uniformité des revêtements

#### 5.5.1. Revêtements sur des substrats de cuivre

L'influence des revêtements a tout d'abord été analysée pour des revêtements sur des substrats de cuivre. Le Tableau 8 présente les caractéristiques des différents revêtements utilisés dans cette série d'essais. Tel que mentionné à la section précédente, les épaisseurs des revêtements varient passablement. Toutefois, ces épaisseurs ont été prises en compte dans le modèle du substrat. Tous les calculs ont été réalisés en incluant les épaisseurs de revêtements pour lesquels certains nœuds ont été ajoutés à ceux des substrats de cuivre. La même approche a été utilisée pour les revêtements sur des substrats d'acier (section 5.5.2). À noter que la résistance globale, qui représente la réciproque du coefficient de transfert de chaleur d'interface, inclut l'effet du revêtement.

Pour ce qui est des rugosités qui diffèrent, Leboeuf [6] a certes démontré l'influence de la rugosité sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique mais pour des valeurs de rugosité allant de 0.2 à 6.4  $\mu m R_a$ , ce qui est un écart nettement plus important que ceux observés au Tableau 8.

Tableau 8 – Paramètres expérimentaux des essais avec substrats de cuivre

|                                      | Cu     | Cu/Cr  | Cu/CrC | Cu/Ag  | Cu/Ti  | Cu/TiAlN | Cu/TiN |
|--------------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|----------|--------|
| Substrat                             | Cuivre | Cuivre | Cuivre | Cuivre | Cuivre | Cuivre   | Cuivre |
| Revêtement                           | Aucun  | Cr     | CrC    | Ag     | Ti     | TiAlN    | TiN    |
| Épaisseur du revêtement [mm]         | n/a    | 0.13   | 0.16   | 0.26   | 0.30   | 0.005    | 0.005  |
| Rugosité du substrat [ $\mu m R_a$ ] | 0.12   | 0.38   | 0.31   | 0.10   | 0.40   | 0.26     | 0.26   |
| Masse des gouttelettes [g]           | 0.37   | 0.36   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.36     | 0.35   |
| Atmosphère                           | Air    | Air    | Air    | Air    | Air    | Air      | Air    |

Les calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface et de mouillabilité dynamique sont présentés à la Figure 43. Contrairement à la tendance révélée dans les essais sous différents atmosphères, i.e., air, argon et hélium, les coefficients et les facteurs d'étalement ne varient pas dans le même ordre lorsque les revêtements sur les substrats de cuivre sont différents. Par exemple, le coefficient  $h$  calculé pour une gouttelette d'aluminium pur se solidifiant sur un substrat de cuivre revêtu d'argent est supérieur à celui calculé pour un revêtement de TiAlN et ce, même si

le facteur d'étalement caractérisant la mouillabilité dynamique est supérieur pour un revêtement de TiAlN. La Figure 44 illustre bien ce fait. Les coefficients de transfert de chaleur maximaux obtenus pour chacune des conditions expérimentales ne sont pas corrélés avec les valeurs des facteurs d'étalements. Il est donc possible que la valeur de la contribution de la mouillabilité dynamique sur le transfert de chaleur soit différente selon la nature de la surface du substrat.

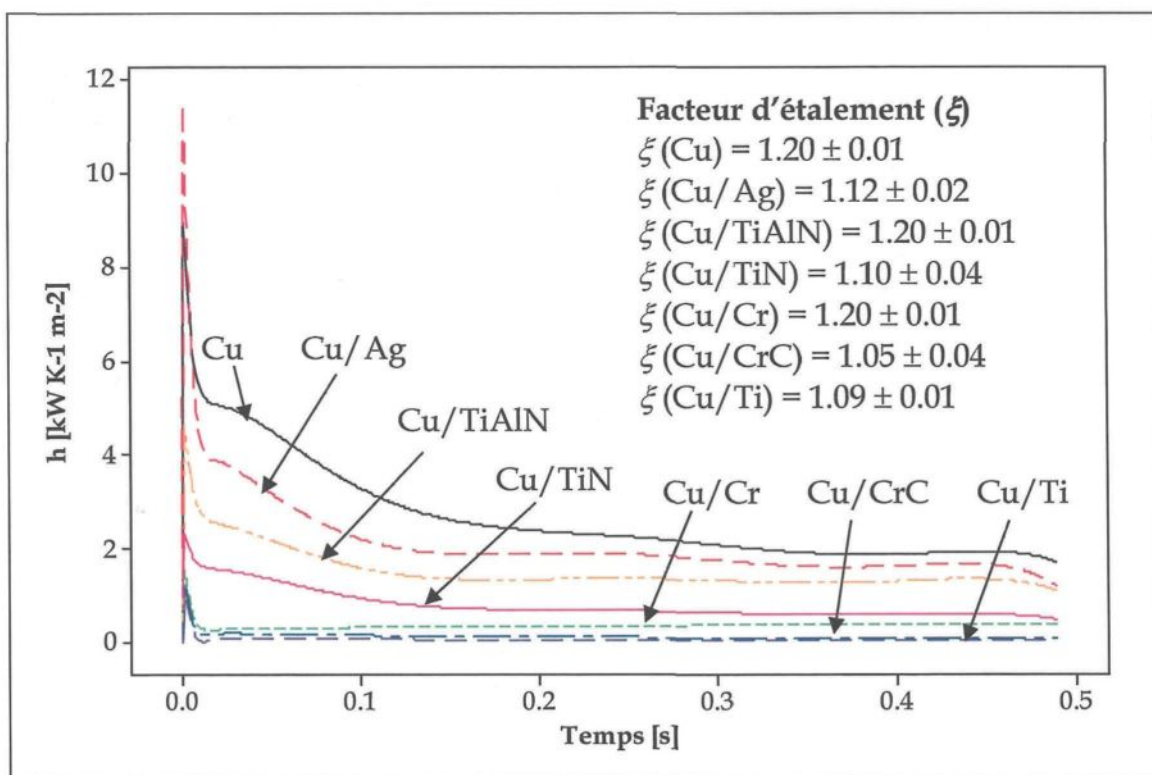


Figure 43 - Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement sur des substrats de cuivre

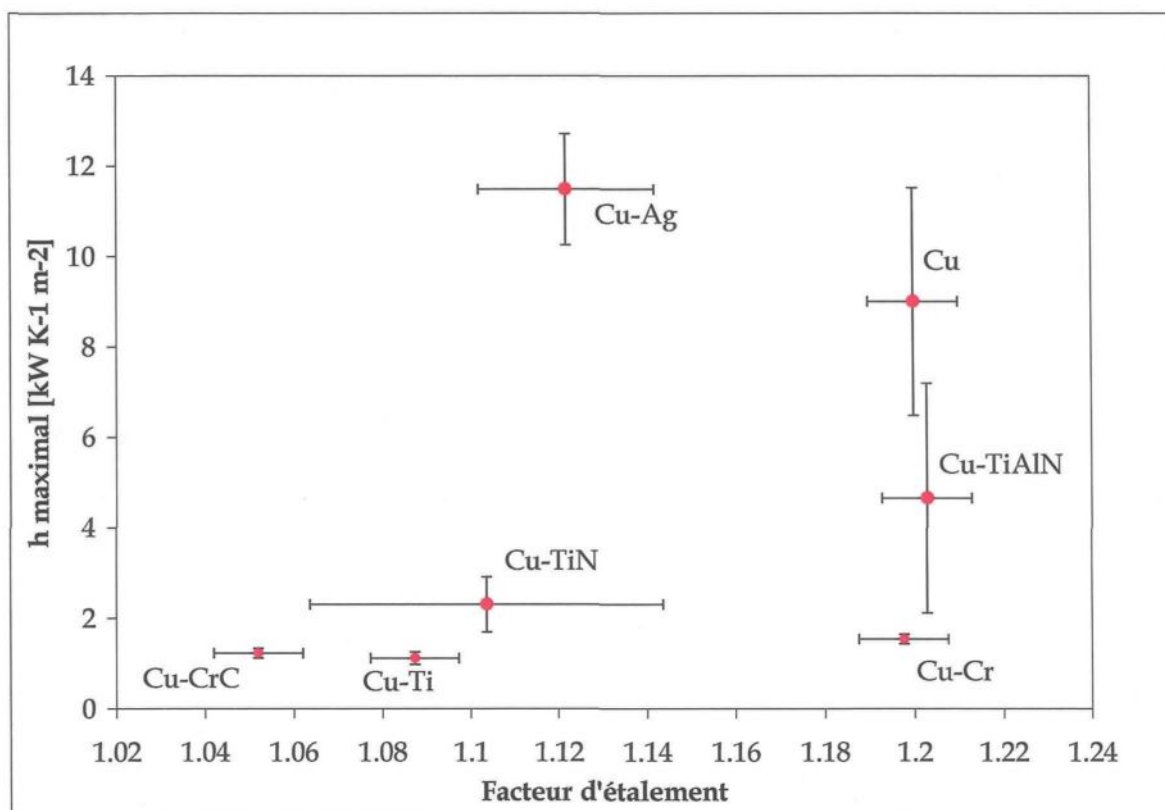


Figure 44 –Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement pour substrats de Cu

Le coefficient de transfert de chaleur global est la somme des résistances à l'interface gouttelette/substrat. Or, bien que la contribution de la résistance au transfert de chaleur créée par l'espacement d'air entre le substrat et la gouttelette est la plus importante, celles créées par la nature du revêtement et la qualité du contact entre le substrat et le revêtement semblent avoir une influence marquée sur le coefficient global de transfert de chaleur d'interface. Ainsi, il est pensable que la

mouillabilité dynamique soit reliée à la résistance créée par l'espacement d'air entre le substrat et la gouttelette car une bonne mouillabilité laisse croire que le métal épouse bien les aspérités du substrat, minimisant ainsi l'épaisseur de l'espacement d'air à l'interface. Cependant, la mouillabilité n'est pas nécessairement influencée par les autres résistances (i.e. revêtement, interface revêtement/substrat) qui contribuent, tout comme l'espacement d'air entre la gouttelette et le substrat, au coefficient global de transfert de chaleur.

Il est néanmoins possible de conclure que le revêtement d'argent est celui qui a généré le plus important coefficient de transfert de chaleur, ce qui va de pair avec le fait qu'il est le matériau offrant la meilleure conductivité thermique.

L'analyse métallographique des gouttelettes après attaque électrolytique  $\text{HBF}_4$  5% pour un temps de 2 minutes (Figure 45 et 46) a permis de valider qu'une vitesse de solidification rapide, caractérisée par un important transfert de chaleur, donne une structure à grains plus fins. En effet, la Figure 47 montre que le plus important coefficient de transfert de chaleur lors des essais, soit celui obtenu sur un substrat revêtu d'argent, est associé aux gouttelettes ayant les plus petits grains. À l'opposé, le coefficient de transfert de chaleur le plus faible a été obtenu sur un substrat

revêtu de CrC, produisant ainsi les gouttelettes avec les structures métallographiques les plus grossières.



Figure 45 - Métallographie d'une gouttelette d'Al pur solidifiée sur un substrat de Cu revêtu d'Ag



Figure 46 - Métallographie d'une gouttelette d'Al pur solidifiée sur un substrat de Cu revêtu de CrC

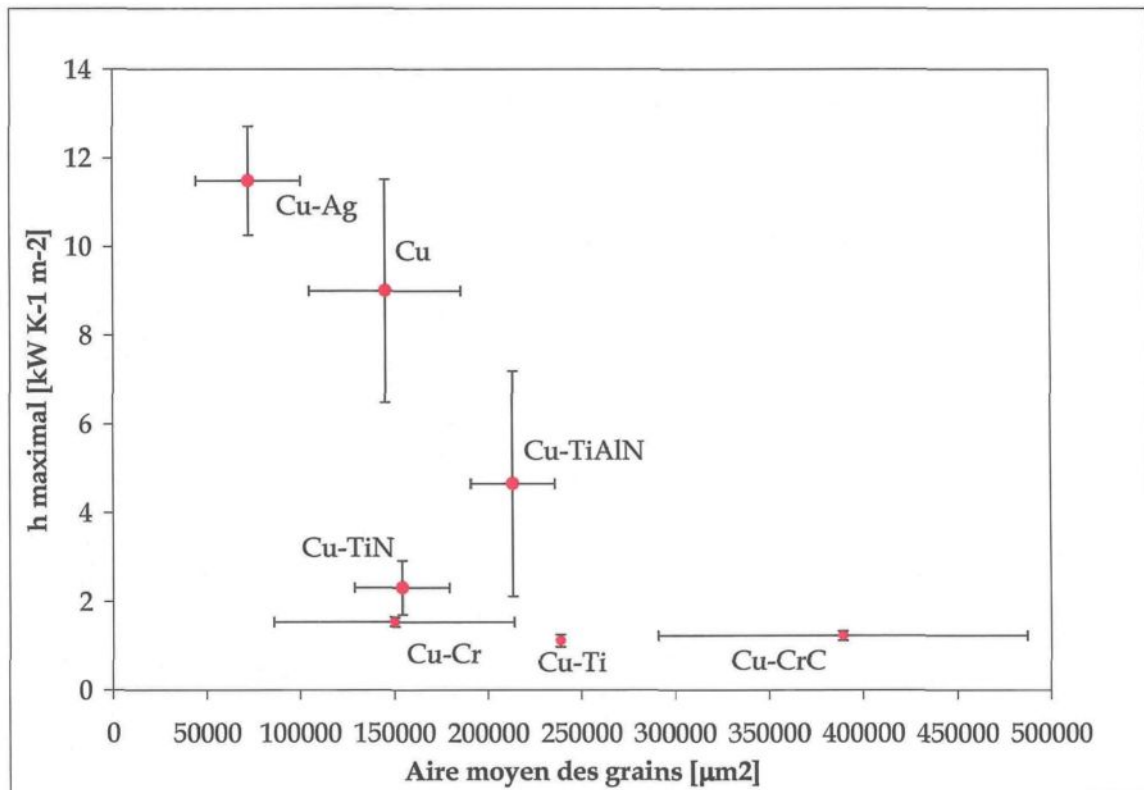


Figure 47 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et aire moyen des grains des gouttelettes

En résumé, les essais sur des substrats de cuivre ont montré que :

- Il n'existe pas de corrélation entre les coefficients de transfert de chaleur et les facteurs d'étalement lorsque l'aluminium pur se solidifie sur un substrat de cuivre ayant ou non l'un des revêtements suivants : Ag, Ti, TiN, TiAlN, CrC et Cr;
- Le coefficient de transfert de chaleur maximal a été enregistré lorsque l'aluminium se solidifie sur un substrat de cuivre revêtu d'argent;

- Il existe une relation entre le coefficient de transfert de chaleur maximal et le nombre de grains des gouttelettes solidifiées;

### 5.5.2. Revêtements sur des substrats d'acier outil H13

Des expérimentations ont, par la suite, été conduites sur trois substrats d'acier outil H13. Deux d'entre eux ont été revêtus, l'un avec un revêtement de CrC et l'autre, de TiN. Le Tableau 9 présente les caractéristiques des différents revêtements utilisés dans cette série d'essais tandis que la Figure 48 montre des images des revêtements prises au microscope optique dans le cas du revêtement de CrC (photo A) et au MEB dans le cas du revêtement de TiN (photo B).

Les résultats des calculs des coefficients de transfert de chaleur d'interface et des facteurs d'étalement sont présentés à la Figure 49. La valeur moyenne des coefficients obtenus lors des essais sur le substrat d'acier revêtu de TiN est

Tableau 9 – Paramètres expérimentaux des essais avec des substrats d'acier outil H13

|                                      | H13   | H13/CrC | H13/TiN |
|--------------------------------------|-------|---------|---------|
| Substrat                             | H13   | H13     | H13     |
| Revêtement                           | Aucun | CrC     | TiN     |
| Épaisseur du revêtement [mm]         | n/a   | 0.18    | 0.001   |
| Rugosité du substrat [ $\mu m R_a$ ] | 0.18  | 0.19    | 0.32    |
| Masse des gouttelettes [g]           | 0.30  | 0.32    | 0.34    |
| Atmosphère                           | Air   | Air     | Air     |

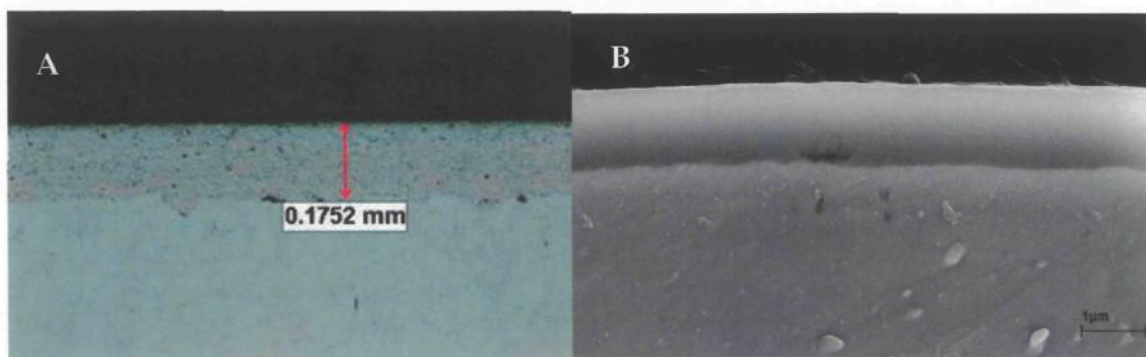


Figure 48 – A) Revêtement de CrC de 0.18mm ; B) Revêtement de TiN de 1.3μm

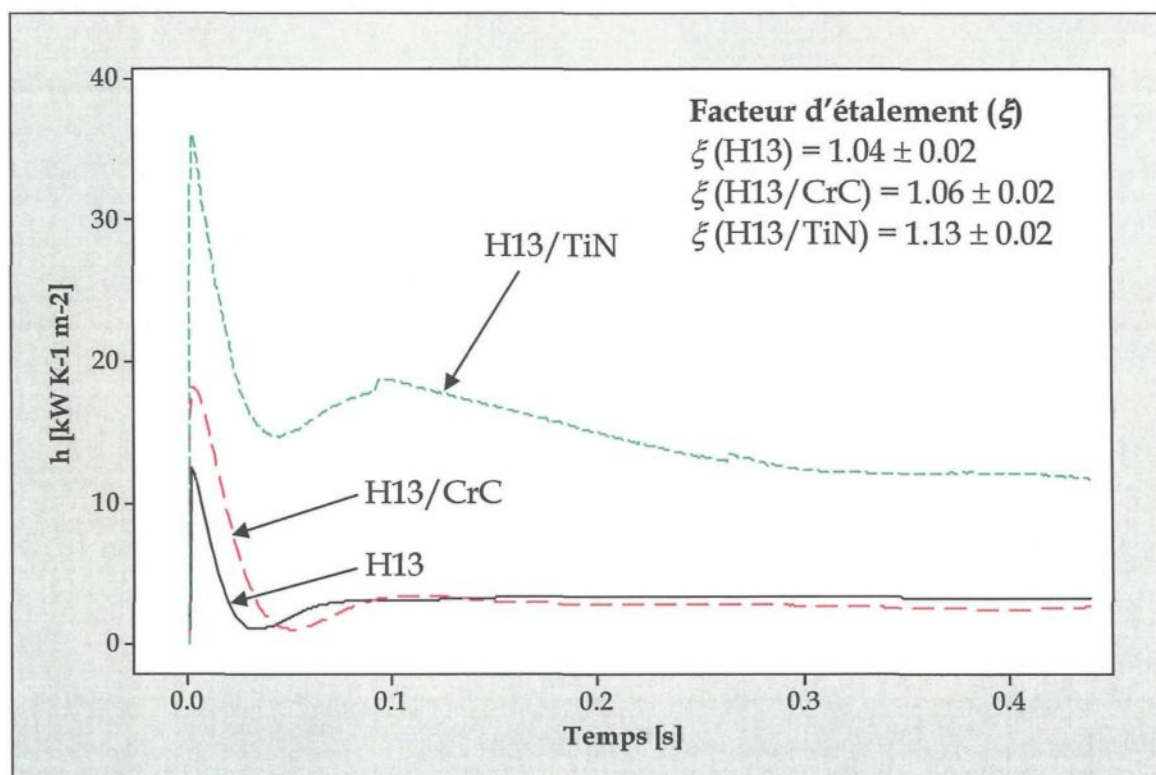


Figure 49 - Coefficients de transfert de chaleur et facteurs d'étalement pour des substrats d'acier H13

nettement supérieure à celles obtenus pour les deux autres substrats. Également, contrairement aux résultats des essais sur les substrats de cuivre, l'ordre dans les valeurs des coefficients suit celui des valeurs des facteurs d'étalement. Par exemple, le facteur d'étalement moyen maximal a été mesuré sur les gouttelettes s'étant solidifiées sur le substrat H13/TiN qui sont celles ayant générées les coefficients de transfert de chaleur les plus importants.

La relation entre le facteur d'étalement et le coefficient de transfert de chaleur est illustré à la Figure 50. Sur cette figure, c'est la valeur maximale du coefficient qui est représenté en abscisse. Même si l'écart entre les mesures des facteurs d'étalement est relativement faible, ces résultats incitent à croire qu'il existe bel et bien une relation entre le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique lorsque de l'aluminium pur se solidifie sur un substrat d'acier H13 pour ces revêtements-ci. Toutefois, l'utilisation d'autres revêtements que TiN et CrC sur les substrats d'acier aurait fort possiblement conduit à des résultats similaires à ceux obtenus pour des substrats de cuivre, à savoir l'absence de relation entre les coefficients de transfert de chaleur et les facteurs d'étalement. Conséquemment, à la lumière des résultats obtenus sur les différents substrats de cuivre, il est impossible de conclure qu'il existe une relation entre le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique et ce, peu importe la nature du substrat.

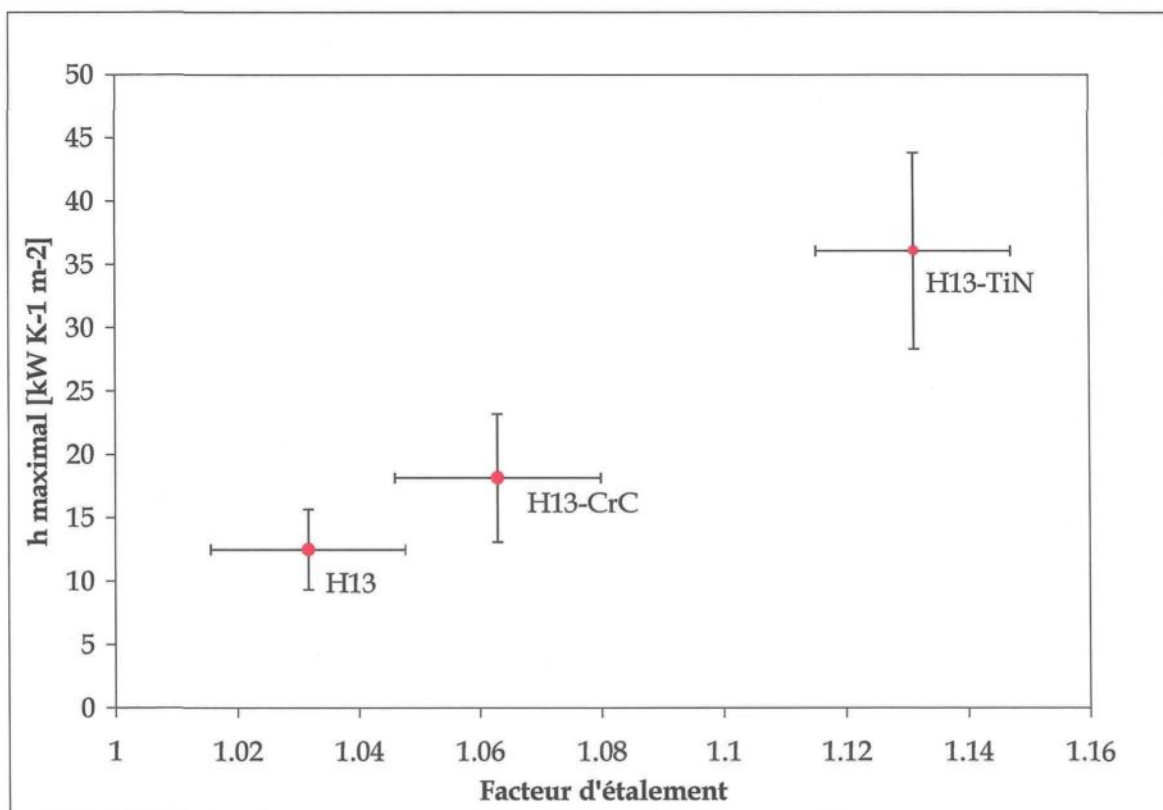


Figure 50 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement sur substrats H13

Finalement, au niveau des microstructures obtenues, les résultats montrés à la Figure 51 indiquent la même tendance que dans le cas des essais sur des substrats de cuivre. Les coefficients de transfert de chaleur et les facteurs d'étalement élevés ont donné des microstructures plus fines comme en fait foi le nombre de grains dans chaque gouttelette. À noter que les gouttelettes avaient toutes des masses semblables de 0,30g à 0,34g.

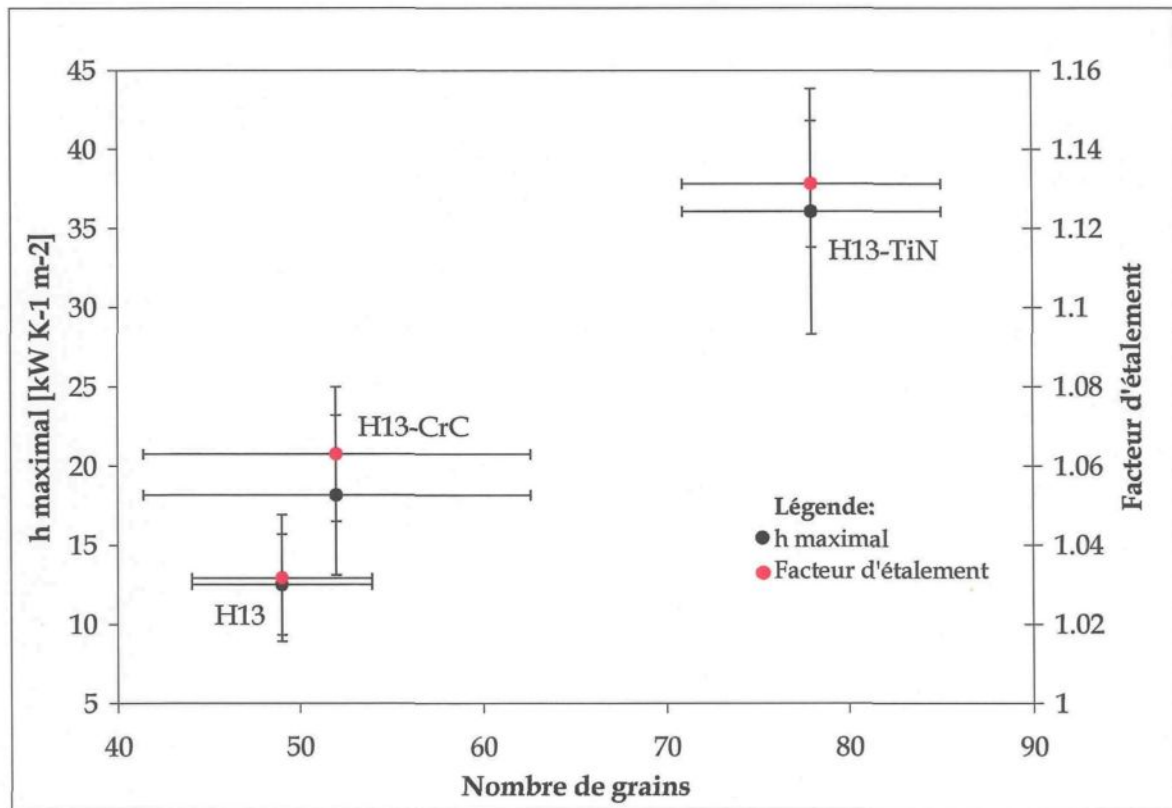


Figure 51 - Coefficients de transfert de chaleur maximaux et facteurs d'étalement versus nombre de grains

## 5.6. Influence de la nature du substrat sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique

Le dernier paramètre analysé est l'influence de la nature du substrat sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique. Pour ce faire, les résultats obtenus sur les substrats sans revêtement et pour les deux seuls revêtements communs aux substrats de cuivre et d'acier ont été comparés. La Figure 52 montre

que, de manière générale, les essais sur des substrats d'acier ont donnés des coefficients de transfert de chaleur plus élevé que pour les substrats de cuivre.

Contrairement au cuivre, les coefficients de transfert de chaleur obtenus lors d'essais sur les substrats d'acier sont plus élevés lorsque des revêtements de TiN et de CrC ont été appliqués. Il semble donc que l'acier revêtu de TiN soit la

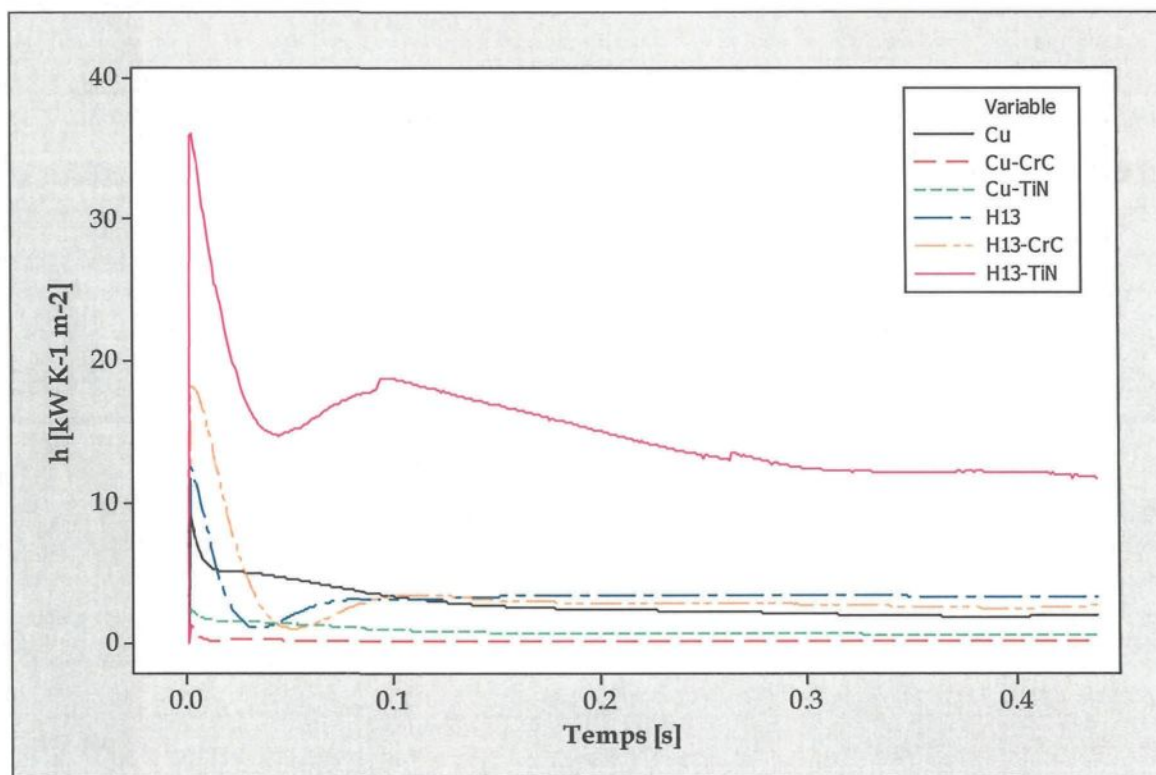


Figure 52 - Coefficients de transfert de chaleur d'interface pour des substrats d'acier H13 et de cuivre

combinaison substrat/revêtement favorisant le meilleur transfert de chaleur lorsque de l'aluminium pur s'y solidifie dans les conditions expérimentales décrites à la section 4.

Les résultats montrés précédemment indiquent que la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur ne sont pas toujours reliés. Cela laisse supposer que la résistance de l'interface substrat-revêtement au transfert de la chaleur n'est pas toujours négligeable, fort possiblement en raison de la qualité du contact entre le revêtement et le substrat. La qualité du revêtement est aussi un élément à considérer surtout en ce qui a trait à sa densité.

La mouillabilité dynamique est reliée aux tensions de surface, dont celle entre le liquide et le solide qui est influencée par la couche superficielle du revêtement tandis que le coefficient de transfert de chaleur dépend de la somme des résistances de toutes les interfaces au transfert de chaleur. La Figure 53 illustre bien ce concept. Pour les substrats de natures différentes ayant des revêtements identiques, à savoir les revêtements de TiN et de CrC, les valeurs des facteurs d'étalement sont semblables même si les coefficients de transfert de chaleur sont fort différents (Figure 52).

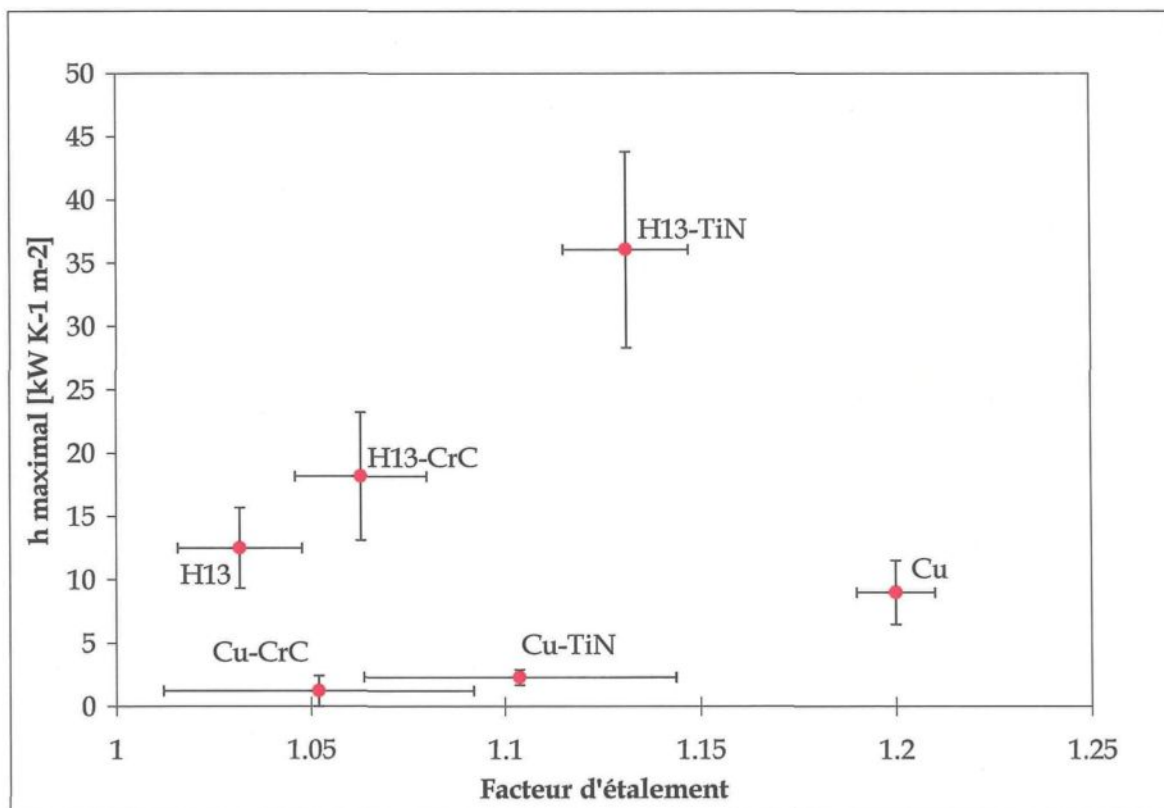


Figure 53 – Valeurs des facteurs d'étalement pour les revêtements appliqués sur les substrats différents

### 5.7. Influence de la gouttelette sur le transfert de chaleur et la mouillabilité dynamique

Des essais portant sur l'influence de la nature de la gouttelette ont été réalisés. Le but étant d'évaluer l'influence de la tension de surface de la gouttelette liquide sur la mouillabilité dynamique et le transfert de chaleur.

Le lithium est connu pour abaisser la tension de surface de l'aluminium liquide [68]. Pour cette raison, un alliage contenant 1% de lithium a été utilisé. Cependant, étant donné la forte réactivité du lithium avec l'oxygène, il a été impossible de réaliser les essais cohérents. En effet, le métal s'est rapidement oxydé et ce, même si une atmosphère d'argon était présente à l'intérieur de l'enceinte. Cette dernière aurait dû être sous un vide important pour pouvoir réaliser les essais. Ainsi, aucune donnée n'est ressortie de cet essai.

## 6. CONCLUSION

L'ensemble du travail de développement du modèle mathématique permettant le calcul du transfert de chaleur d'interface a permis de mieux comprendre l'influence de certains paramètres sur la précision du calcul. Ainsi, il a été démontré qu'un modèle à 2 dimensions est plus précis dans le calcul du coefficient de transfert de chaleur. L'énergie totale par unité de longueur transmise de la gouttelette au substrat est 35% plus importante avec la modélisation en 2D dans les premières 500 ms du processus de solidification en raison de la dissipation latérale de la chaleur dans le substrat en 2D. Par contre, lorsqu'un second thermocouple est utilisé suffisamment près du premier sous la surface du substrat, les résultats du calcul 1D sont semblables à ceux obtenus avec le modèle à 2 dimensions. Toutefois, le modèle 2D demeure avantageux car il ne nécessite pas de second thermocouple inséré dans le substrat qui perturbe le transfert de chaleur.

Également, pour le montage expérimental utilisé dans le cadre des présents travaux où les dimensions des gouttelettes sont inférieures à celles des substrats, il est possible de négliger les pertes de chaleur par la surface libre des gouttelettes, simplifiant ainsi la routine de calcul. Outre les différences dans les tailles, il faut considérer l'importance de la conductivité des substrats sans quoi le refroidissement des gouttelettes ne serait pas si rapide. Pour ces mêmes raisons, la

convection dans la gouttelette est un mode de transport de la chaleur qui est négligeable, ce qui contribue d'autant plus à simplifier le modèle.

Les expérimentations menées dans le cadre de ce projet ont démontré que l'atmosphère dans lequel s'effectue la solidification est un paramètre important, tant sur le coefficient de transfert de chaleur que sur la mouillabilité dynamique. En effet, la nature de l'atmosphère influence la tension de surface et la formation de la couche d'oxyde sur le liquide qui à son tour influence la mouillabilité dynamique. Aussi, l'épaisseur et la conductivité thermique de la couche de gaz emprisonnée entre la gouttelette et le substrat peuvent varier selon la nature du gaz. Un autre point fort intéressant est l'excellente corrélation qui existe entre le facteur d'étalement, qui est une mesure de la mouillabilité, et le coefficient de transfert de chaleur d'interface maximum lorsque la nature de l'atmosphère est variée. Dans ces cas, le transfert de chaleur est régi par la mouillabilité dynamique.

Cependant, dans le cas des essais sur l'influence de la nature du revêtement sur la mouillabilité dynamique et le transfert de chaleur, la corrélation entre la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur d'interface est moins évidente. Plusieurs facteurs influencent le coefficient de transfert de chaleur tel que la contribution de chacune des résistances au travers de l'interface

gouttelette/substrat. Par contre, ces facteurs n'influencent pas nécessairement la mouillabilité dynamique qui est plutôt un concept relié aux surfaces. Les coefficients de transfert de chaleur obtenus dans ces essais sont, par contre, reliés aux microstructures des gouttelettes solidifiées, ce qui donne plus de confiance dans les calculs des coefficients.

Pour les substrats d'acier avec des revêtements de CrC et TiN ou sans revêtement, c'est le revêtement de TiN qui a généré le plus important coefficient de transfert de chaleur. Aussi, l'ensemble des résultats de mouillabilité dynamique et des coefficients de transfert de chaleur évoluent dans le même sens. Par contre, tel que mentionné précédemment, il est difficile de conclure à l'interdépendance entre les coefficients de transfert de chaleur et les mesures de mouillabilité dynamique pour toutes les combinaisons substrats/revêtements. Encore cette fois-ci, les résultats de transfert de chaleur sont étroitement liés à la microstructure des gouttelettes d'aluminium.

Finalement, les résultats obtenus lors de l'analyse de l'influence de la nature du substrat permettent de réitérer la conclusion selon laquelle la mouillabilité dynamique et le coefficient de transfert de chaleur ne sont pas nécessairement dépendant l'un de l'autre. En effet, en analysant les résultats des deux types de

substrat, à savoir de cuivre et d'acier outil H13, ayant les mêmes revêtements (TiN et CrC), il a été possible de remarquer à quel point les résultats des facteurs d'étalement sont semblables lorsque le revêtement est le même. Cela est logique car la mouillabilité dynamique n'est aucunement influencée par la nature du substrat si ce dernier possède un revêtement. Au contraire, les coefficients de transfert de chaleur sont différents même si le revêtement sur les substrats de cuivre et d'acier est identique.

## 7. RECOMMANDATIONS

Quelques faiblesses du montage expérimental ont été notées tout au long des travaux et ont contribué à faire échouer certains essais. En effet, l'impossibilité de faire un vide partiel dans l'enceinte du montage a fait avorter les essais sur l'influence de la nature des gouttelettes en raison de l'oxydation excessive de l'alliage au lithium. Également, il a été impossible d'obtenir des mesures d'adhérence telles que désirées initialement car le mécanisme d'inclinaison des substrats était peu précis et demandait une intervention manuelle dans l'enceinte qui modifiait l'atmosphère à l'intérieur de celle-ci. Un mécanisme d'inclinaison actionné à distance aurait grandement aidé sur ce point. Finalement, le nombre de gouttelettes recueillies pour chaque condition expérimentale était limité par le fait que le mécanisme de chute des gouttelettes s'altérait, plus particulièrement au niveau de la cavité de l'axe de graphite qui avait tendance à s'agrandir. Ainsi, après une quinzaine de gouttelettes, celles-ci devenaient plus grosses et avaient tendance à demeurer dans la cavité de l'axe de graphite. D'autres mécanismes de chute de gouttelette ont été utilisés dans différents travaux [20, 35] et devraient être considérés lors de futurs essais.

## RÉFÉRENCES

1. Strezov, L. et Herbertson, J., *Experimental studies of interfacial heat transfer and initial solidification pertinent to strip casting*, ISI International, 1998, 38(9), p. 959-966.
2. Ebrill, N., Durandet, Y. et Strezov, L., *Dynamic reactive wetting and its role in hot dip coating of steel sheet with Al-Zn-Si alloy*, Metallurgical and Materials Transactions B, 2000, 31B(5), p. 1069-1079
3. Evans, T. et Strezov, L., *Interfacial heat transfer and nucleation of steel on metallic substrates*, Metallurgical and Materials Transactions B, 2000, 31B(5), p. 1081-1089
4. Mughal, M. P., Fawad, H. et Mufti, R., *Numerical thermal analysis to study the effect of static contact angle on the cooling rate of a molten metal droplet*, Numerical Heat Transfer-Part A, 2006, 49, p. 95-107.
5. Ebrill, N. J., *The influence of the "steel substrate entry temperature" on wetting and interfacial resistance in hot dip metallic coating*, Thèse, Newcastle, Australie, 2000.
6. Leboeuf, S. *Dynamic wetting and heat transfer behavior of aluminium droplets impinging and solidifying on copper substrate*, Thèse, Montréal, 2004.
7. Jacobson, L. A. et McKittrick, J., *Rapid solidification processing*, Materials Science and Engineering, 1994, R11, p. 355-408.
8. Collins, L. E. et Wronski, Z. S., *Rapidly solidified metals*, National Research Council of Canada, New Metallic Materials and new fabrication processes, 1987, pp. 40.
9. Monteiro, W. A., *Rapid solidification processes in aluminum alloys*, Metalurgia International, 1989, 2(6), p.150-155.
10. Singer, A. E. R., *Forming metals by rapid solidification*, AGARD Conference Proceeding 256, Advanced solidification processes, Florence, 1979, pp. 10.
11. Fleetwood, M. J., *Rapid solidification processes*, Metals and materials, 1987, 3(1), p. 17-20.
12. Bouchard, D., Hamel, F. G. et al., *Effects of substrate conditions on heat transfer and shell morphology in the solidification of a copper alloy*, Metallurgical and Materials Transaction B, 2000, 32B, p. 111-118.
13. Li, G. et Thomas, B. G., *Transient thermal model of the continuous single-wheel thin-strip casting process*, Metallurgical and Materials Transaction B, 1996, 27B(3), p. 509-525.
14. Wang, G. X., Prasad, V. et Sampath, S., *Rapid solidification in thermal spray deposition: microstructure and modeling*, Sadhana, 2001, 26(1-2), p. 35-57.
15. Kamnis, S et Gu, S., *Numerical modeling of droplet impingement*, Journal of Physics D: Applied Physics, 2005, 38, p. 3664-3673.

16. Ebrill, N. Durandet, Y et Strezov, L., *Dynamic reactive wetting and its role in hot dip coating process of steel sheet with an Al-Zn-Si alloy*, Metallurgical and Materials Transaction B, 2000, 31B (5), p. 1069-1079.
17. Ebrill, N., *Dynamic wetting and its influence on interfacial resistance during hot dip galvanizing*, Transactions of the JWRI, 2001, 30, p. 351-359.
18. American Society for Metals, *Handbook Volume 18: Friction, Lubrication, and Wear*, ASM International, 1992.
19. Asthana, R. et Sobczak, N., *Wettability, spreading and interfacial phenomena in high-temperature coating*, JOM : the Journal of the Minerals, Metals & Materials Society, 2000, 52(1), pp. 40.
20. Sobczak, N., *Improvement of wetting and bonding of dissimilar materials*, Interfacial Science in Ceramic Joining, 1998, p. 27-42.
21. Anson, J. P., Drew, R. A. L. et Gruzleski, J. E., *The surface tension of molten aluminum and Al-Si-Mg alloy under vacuum and hydrogen atmospheres*, Metallurgical and Materials Transaction B, 1999, 30B (6), p. 1027-1032.
22. Sobczak, N, Sobczak, J., Nowak, R., Kudyba, A. et Darlak, P., *Application of push-off shear test for evaluation of wetting-interface structure bonding relationship of solder joints*, Journal of Materials Science, 2005, 40, p. 2547-2551.
23. Egry, I., Schneider, S., Seyhan, I. et Volkmann, T., *Surface tension measurements of high temperature metallic melts*, Transaction of the JWRI, 2001, 30, p. 195-200.
24. Shen, P., Fujii, H., Matsumoto, T. et Nogi, K., *Reactive wetting of SiO<sub>2</sub> substrates by molten Al*, Metallurgical and Materials Transaction A, 2004, 35A, p. 583-588.
25. Maringer, R. E., *Solidification on a substrate*, Material Science and Engineering, 1988, 98(1-2), p. 13-20.
26. Adler, R.P.I. et Hsu, S.C., *Dynamic wetting/solidification phenomena*, Rapid Solidification Processing: Principles and Technologies, 1983, 3, p. 448-451.
27. Maruo, H., Hirata, Y. et Matsumoto, Y., *Deformation et solidification of a molten droplet by impact on a planar substrate*, Proceedings of 14<sup>th</sup> International Thermal Spray Conference, Kobe, Japan, 1995, p. 341-346.
28. Ulrich, J., Berg, M., et Bauckhage, K., *Determination of a splashing threshold for impacting metal droplets using high speed video imaging*, EPD Congress, San Diego, USA, 1999, p. 105-116.
29. Beck, J.V., *Nonlinear estimation applied to the nonlinear heat conduction problem*, International Journal of Heat and Mass Transfer, 13(4), 1970, p. 703-716.
30. Hallam, C. P. et Griffith, W. D., *A model of the interfacial heat-transfer coefficient for the aluminum gravity die-casting process*, Metallurgical and Materials Transactions B, 2004, 35B, p. 721-733.

31. Kim, J. S., Isac, M., Guthrie, R. I. L. et Byun, J., *Measurements of interfacial heat transfer resistances and characterization of strip microstructures for Al-Mg alloys cast on a single belt casting simulator*, The 39<sup>th</sup> Conference of Metallurgists of CIM – Light Metals, 2000, p.635-654.
32. Tavares, R. P., Isac, M., Hamel, F. G., et Guthrie, R. I. L., *Instantaneous interfacial heat fluxes during the 4 to 8 m/min casting of carbon steels in a twin-roll caster*, Metallurgical and Materials Transactions B, 2001, 32B(1), p. 55-67.
33. Strežov, L., Herbertson, J. et Belton, G. R., *Mecanism of initial melt/substrate heat transfer pertinent to strip casting*, Metallurgical et Materials Transactions B, 2000, 31B(5), p. 1023-1030.
34. Loulou, T. et Bardon, J. P., *Heat transfer during the spreading and solidification of a molten metal droplet on a cooled substrate*, High Temperature Material Processes, 2000, 4(1), p. 69-78.
35. Liu, W., Wang, G. X. et Matthys, E. F., *Thermal analysis and measurements for a molten metal drop impacting on a substrate: cooling, solidification and heat transfer coefficient*, International Journal of Heat and Mass Transfer, 1995, 38(8), p. 1387-1395.
36. Misra, P., Phinichka, N. et Cramb, A. W., *The effect of the presence of liquid films on a copper mold surface on the rate of heat transfer during the solidification of steel droplets*, Iron and Steelmaker, 2003, 30(10), p. 46-55.
37. Todoroki, H., Lertarom, R., Suzuki, T. et Cramb, A. W., *Solidificaiton of droplets against a water cooled copper mold*, 1998 Mclean Symposium Proceedings, 1998, p. 155-175.
38. American Society for Metals, *Engineered ASM Handbook Volume 05: Surface Engineering*, ASM International, 1994.
39. Wikipedia, <http://en.wikipedia.org/>
40. Massey, B. S., *Mechanics of fluids*, 6<sup>th</sup> Edition, 1989, Grande-Bretagne.
41. Naidich, J. V., *Wettability of solids by liquid metals*, Progress in Surface and Membrane Science, 1981, p. 353-484.
42. Bondi, A., *The spreading of liquid metals on solid surfaces*, The American Chemical Society, 1953, 53, p. 417-458.
43. Sobczak, N., Asthana, R., Ksiazek, M., Radziwill, W., Mikulowski, B. et Surowiak, I., *The influence of wettability on the interfacial shear strength in the Al-alumina system*, 2000 TMS Fall Meeting, 2000, USA, p. 129-142.
44. Fukumoto, M., Nishioka, E. et Matsubara, T., *Effect of interface wetting on flattening of freely fallen metal droplet onto flat substrate surface*, Journal of Thermal Spray Technology, 2002, 11(1), p.69-74.
45. Amada, S., Haruyama, M., Ohyagi, T. et Tomoyasu, K., *Wettability effect on the flattening ratio of molten metal droplets*, Surface and Coating Technology, 2001, 138, p. 211-219.

46. Beck, J., Blackwell, B. et St. Clair, C., *Inverse Heat Conduction - Ill-Posed Problems*, Wiley-Interscience, 1985
47. Gebhart, B., *Heat conduction and mass diffusion*, McGraw-Hill Inc, 1993., USA
48. Lewis, R. W., Nithiarasu, P. et Seetharamu, K. N., *Fundamentals of finite element method for heat and fluid flow*, John Wiley and Sons Ltd., 2004, Angleterre
49. Lally, B., Biegler, L. et Henein, H., *Finite difference heat-transfer modeling for continuous casting*, Metallurgical and Materials Transactions B, 21B, 1990, 761-770
50. Gaskell, D. R., *An introduction to transport phenomena in materials engineering*, Macmillan Publishing Company, 1992, New York, USA
51. Gubareff, G. G., Janssen, J.E. et Torborg, R.H., *Thermal radiation properties survey: a review of the literature*, Honeywell Research Center, 1960, Minneapolis, USA
52. Myers, G. E., *Analytical methods in conduction heat transfer*, McGraw-Hill, 1971, USA
53. Holdman, J. P., *Heat Transfert*, McGraw-Hill, Inc., 1981, USA
54. Szekely, J. et Themilis, N. J., *Rate Phenomena in Process Metallurgy*, Wiley-Interscience, 1971, Royaume-Uni
55. Kubaschewski, O., Alcock, C. B. et Spencer, P. J., *Materials Thermo-Chemistry*, 6<sup>th</sup> Edition, Pergamon Press Ltd., 1993, New York, USA
56. Touloukian, Y. S., Powell, R.W., Ho, C. Y. et Klemens, P. G., *Thermophysical Properties of Matters*, Vol. 1, Plenum Publishing Corp., 1970, New York, USA
57. Brandes, E. A. et Brook, G. B., *Smithells Metals Reference Book*, 7<sup>th</sup> Edition, Butterworth-Heinemann, 1992, Oxford, Royaume-Uni
58. \*\*MPDB: Bohler-Uddeholm America Inc, W302 ISOBLOCK Datasheet
59. [www.matweb.com](http://www.matweb.com)
60. MPDB: B.J. McBride, S. Gordon et M.A. Reno, NASA Technical Paper 3287, 1993
61. MPDB: C.Y. Ho, R.W. Powell et P.E. Liley, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Volume 1, p. 279, 1972
62. MPDB: M.W. Barsoum, C.J. Rawn, T. El-Raghy, A.T. Procopio, W.D. Porter, H. Wang et C.R. Hubbard, *J. Applied Physics*, 87(12), p. 8407, 2000
63. American Society for Metals, *Engineered Materials Handbook Vol. 4: Ceramics and Glasses*, ASM International, 1991.
64. MPDB: K.K. Kelley, *US Bureau of Mines, Bulletin No. 476*, 1949

65. MPDB: room temperature value from M. Rohde, *Thin Solid Films*, Volume 238, p. 199, 1994 ; temperature dependence from T. Yamada, M. Shimada et M. Koizumi, *American Ceramic Society Bulletin*, 59(6), p. 611, 1980
66. Poirier, D. R. et Geiger, G. H., *Transport Phenomena in Materials Processing*, The Minerals, Metals and Materials Society, 1994
67. Goumiri, L. et Joud, J. C., *Auger electron spectroscopy study of aluminum – tin liquid system*, *Acta Metall*, 1982, 30 (7), p. 1397-1405
68. Lang, G., *Effect of added elements on the surface tension of high purity of aluminium alloy*, *Otto Rentsch*, 1974, 50, p. 731-734

## ANNEXE A – Équations mathématiques

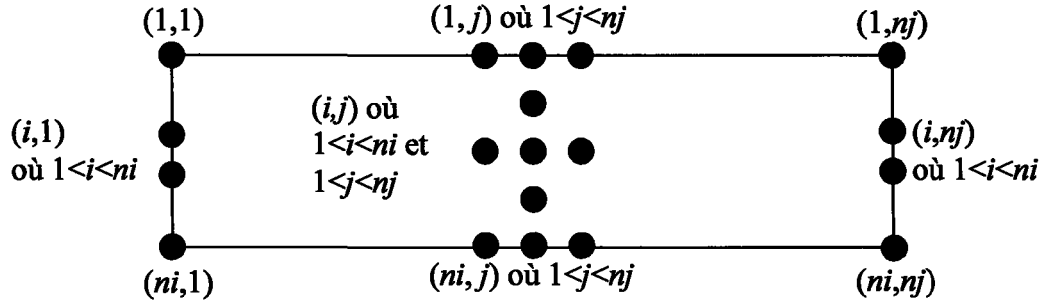


Figure 54 - Représentation schématique des nœuds du substrat

Tableau 10 – Équations des nœuds du substrat

| Nœuds              | Équations  |
|--------------------|--|
| 1,1                | $T_{1,1}^{t+1} = T_{1,1}^t \cdot [1 - 2Fo_i^+ - 2Fo_j^+] + 2 \cdot T_{2,1}^t \cdot Fo_i^+ + 2 \cdot T_{1,2}^t \cdot Fo_j^+ +$ $+ \frac{q \cdot Fo_i^+ \cdot \Delta x \cdot (k_{1,1} + k_{2,1})}{k_{1,1} \cdot k_{2,1}}$                            |
| 1, j où 1 < j < nj | $T_{1,j}^{t+1} = T_{1,j}^t \cdot [1 - 2Fo_i^+ - Fo_j^+ - Fo_j^-] + 2 \cdot T_{2,j}^t \cdot Fo_i^+ +$ $T_{1,j+1}^t \cdot Fo_j^+ + T_{1,j-1}^t \cdot Fo_j^- + \frac{q \cdot Fo_i^+ \cdot \Delta x \cdot (k_{1,j} + k_{2,j})}{k_{1,j} \cdot k_{2,j}}$ |
| 1,nj               | $T_{1,nj}^{t+1} = T_{1,nj}^t \cdot [1 - 2Fo_i^+ - 2Fo_j^-] + 2 \cdot T_{2,nj}^t \cdot Fo_i^+ + 2 \cdot T_{1,nj-1}^t \cdot Fo_j^- +$ $+ \frac{q \cdot Fo_i^+ \cdot \Delta x \cdot (k_{1,nj} + k_{2,nj})}{k_{1,nj} \cdot k_{2,nj}}$                  |
| i,1 où 1 < i < ni  | $T_{i,1}^{t+1} = T_{i,1}^t \cdot [1 - Fo_i^+ - Fo_i^- - 2Fo_j^+] + T_{i+1,1}^t \cdot Fo_i^+ + T_{i-1,1}^t \cdot Fo_i^- +$ $2 \cdot T_{i,2}^t \cdot Fo_j^+$   |

|  |   |
|--|---|
| $i,j$ où $1 < i < ni$<br>et $1 < j < nj$ | $T_{i,j}^{t+1} = T_{i,j}^t \cdot [1 - Fo_i^+ - Fo_i^- - Fo_j^+ - Fo_j^-] + T_{i+1,j}^t \cdot Fo_i^+ + T_{i-1,j}^t \cdot Fo_i^- + T_{i,j+1}^t \cdot Fo_j^+ + T_{i,j-1}^t \cdot Fo_j^-$ |
| $i,nj$ où $1 < i < ni$                   | $T_{i,nj}^{t+1} = T_{i,nj}^t \cdot [1 - Fo_i^+ - Fo_i^- - 2Fo_j^-] + T_{i+1,nj}^t \cdot Fo_i^+ + T_{i-1,nj}^t \cdot Fo_i^- + 2 \cdot T_{i,nj-1}^t \cdot Fo_j^-$                       |
| $ni,1$                                   | $T_{ni,1}^{t+1} = T_{ni,1}^t \cdot [1 - 2 \cdot Fo_i^- - 2Fo_j^+] + 2 \cdot T_{ni-1,1}^t \cdot Fo_i^- + 2 \cdot T_{ni,2}^t \cdot Fo_j^+$  |
| $ni,j$ où $1 < j < nj$                   | $T_{ni,j}^{t+1} = T_{ni,j}^t \cdot [1 - 2Fo_i^- - Fo_j^+ - Fo_j^-] + 2 \cdot T_{ni-1,j}^t \cdot Fo_i^- + T_{ni,j+1}^t \cdot Fo_j^+ + T_{ni,j-1}^t \cdot Fo_j^-$                       |
| $ni,nj$                                  | $T_{ni,nj}^{t+1} = T_{ni,nj}^t \cdot [1 - 2 \cdot Fo_i^- - 2Fo_j^-] + 2 \cdot T_{ni-1,nj}^t \cdot Fo_i^- + 2 \cdot T_{ni,nj-1}^t \cdot Fo_j^-$  |

## ANNEXE B – Paramètres expérimentaux

| Nature du substrat | Revêtement | Atmosphère | Humidité relative (%) | Température initiale du substrat (°C) | Température initiale du métal (°C) |
|--------------------|------------|------------|-----------------------|---------------------------------------|------------------------------------|
| Cu                 | CrC        | Air        | 24                    | 27                                    | 723                                |
| Cu                 | CrC        | Air        | 20                    | 25                                    | 725                                |
| Cu                 | CrC        | Air        | 19                    | 26                                    | 724                                |
| Cu                 | CrC        | Air        | 19                    | 27                                    | 726                                |
| Cu                 | CrC        | Air        | 18                    | 24                                    | 729                                |
| Cu                 | Ag         | Air        | 19                    | 26                                    | 723                                |
| Cu                 | Ag         | Air        | 19                    | 28                                    | 726                                |
| Cu                 | Ag         | Air        | 19                    | 29                                    | 727                                |
| Cu                 | Ag         | Air        | 18                    | 27                                    | 724                                |
| Cu                 | Ag         | Air        | 18                    | 27                                    | 725                                |
| Cu                 | Ti         | Air        | 19                    | 30                                    | 726                                |
| Cu                 | Ti         | Air        | 19                    | 31                                    | 723                                |
| Cu                 | Ti         | Air        | 18                    | 31                                    | 727                                |
| Cu                 | Ti         | Air        | 18                    | 29                                    | 725                                |
| Cu                 | Ti         | Air        | 18                    | 30                                    | 724                                |
| Cu                 | TiN        | Air        | 12                    | 35                                    | 723                                |
| Cu                 | TiN        | Air        | 21                    | 33                                    | 723                                |
| Cu                 | TiN        | Air        | 25                    | 33                                    | 726                                |
| Cu                 | TiN        | Air        | 25                    | 32                                    | 726                                |
| Cu                 | TiN        | Air        | 25                    | 32                                    | 723                                |
| Cu                 | TiAlN      | Air        | 15                    | 36                                    | 722                                |
| Cu                 | TiAlN      | Air        | 15                    | 35                                    | 723                                |
| Cu                 | TiAlN      | Air        | 15                    | 36                                    | 725                                |
| Cu                 | TiAlN      | Air        | 15                    | 38                                    | 727                                |
| Cu                 | TiAlN      | Air        | 15                    | 39                                    | 727                                |
| Cu                 | Cr         | Air        | 15                    | 29                                    | 726                                |
| Cu                 | Cr         | Air        | 15                    | 35                                    | 725                                |
| Cu                 | Cr         | Air        | 15                    | 36                                    | 727                                |
| Cu                 | Cr         | Air        | 15                    | 36                                    | 724                                |
| Cu                 | Cr         | Air        | 14                    | 36                                    | 724                                |

| Nature du substrat | Revêtement | Atmosphère | Humidité relative (%) | Température initiale du substrat (°C) | Température initiale du métal (°C) |
|--------------------|------------|------------|-----------------------|---------------------------------------|------------------------------------|
| Cu                 | -          | Air        | 16                    | 26                                    | 725                                |
| Cu                 | -          | Air        | 17                    | 24                                    | 721                                |
| Cu                 | -          | Air        | 17                    | 24                                    | 729                                |
| Cu                 | -          | Air        | 15                    | 25                                    | 727                                |
| Cu                 | -          | Air        | 15                    | 24                                    | 727                                |
| Cu                 | -          | Argon      | 5                     | 25                                    | 730                                |
| Cu                 | -          | Argon      | 2                     | 27                                    | 727                                |
| Cu                 | -          | Argon      | 3                     | 27                                    | 725                                |
| Cu                 | -          | Argon      | 5                     | 28                                    | 725                                |
| Cu                 | -          | Argon      | 4                     | 31                                    | 727                                |
| Cu                 | -          | Hélium     | 4                     | 23                                    | 726                                |
| Cu                 | -          | Hélium     | 4                     | 24                                    | 722                                |
| Cu                 | -          | Hélium     | 5                     | 28                                    | 727                                |
| Cu                 | -          | Hélium     | 5                     | 24                                    | 730                                |
| Cu                 | -          | Hélium     | 2                     | 25                                    | 728                                |
| H13                | -          | Air        | 24                    | 27                                    | 720                                |
| H13                | -          | Air        | 23                    | 25                                    | 722                                |
| H13                | -          | Air        | 24                    | 25                                    | 728                                |
| H13                | -          | Air        | 23                    | 24                                    | 728                                |
| H13                | -          | Air        | 23                    | 24                                    | 727                                |
| H13                | CrC        | Air        | 15                    | 23                                    | 723                                |
| H13                | CrC        | Air        | 15                    | 25                                    | 729                                |
| H13                | CrC        | Air        | 15                    | 25                                    | 727                                |
| H13                | CrC        | Air        | 15                    | 24                                    | 730                                |
| H13                | CrC        | Air        | 15                    | 26                                    | 728                                |
| H13                | TiN        | Air        | 15                    | 28                                    | 726                                |
| H13                | TiN        | Air        | 15                    | 28                                    | 729                                |
| H13                | TiN        | Air        | 15                    | 28                                    | 725                                |
| H13                | TiN        | Air        | 15                    | 28                                    | 727                                |
| H13                | TiN        | Air        | 15                    | 28                                    | 727                                |

**ANNEXE C - Conference of Metallurgists of CIM, Calgary,  
2005**

**Dynamic wetting spread factors and interfacial heat transfer coefficients in the solidification of aluminum droplets on copper substrates**

**David-Alexandre Tremblay and Dominique Bouchard**  
*Aluminium Technology Centre*  
*501 De l'Université Boulevard*  
*Chicoutimi, Québec, Canada G7H 8C3*

**László Kiss**  
*Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)*  
*555 Boul. Université,*  
*Chicoutimi, Québec, Canada G7H 2B1*

**ABSTRACT**

Dynamic wetting spread factors and interfacial heat transfer coefficients were determined for aluminum droplets solidifying on copper substrates. The spread factors were determined from the droplet geometries while the heat transfer coefficients were obtained by solving inverse heat conduction problems. 1-D and 2-D heat transfer models are presented and the results they provided are compared. For the latter, a sensitivity analysis was also performed to determine the influence of thermophysical properties and boundary conditions. Experiments were alternatively carried out with three different gaseous atmospheres and the dynamic wetting spread factors were correlated to the interfacial heat transfer coefficients.