

UNIVERSITE DE LIMOGES

École doctorale Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Énergétique et Aéronautique

FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES

Laboratoire Science des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface

N°67-2010

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LIMOGES

Discipline : Matériaux céramiques et traitements de surface

Présentée et soutenue publiquement par

Simon GOUTIER

Le 01 / 12 / 2010

Etude expérimentale de l'impact et de la solidification de gouttes
céramiques et métalliques de tailles micrométrique et millimétrique
sur différents types de substrats : Compréhension du mécanisme de
formation des dépôts par projection thermique.

Thèse dirigée par : Michel Vardelle, Jean-Claude Labbe

Rapporteurs:

M. Dominique GOBIN	Directeur de Recherche CNRS	Orsay
M. José Maria GUILMANY	Professeur	Barcelone

Examineurs:

Mme Alix GICQUEL	Professeur	Paris 13
M. Michel JEANDIN	Professeur	Mines-Paris Tech
M. David QUERE	Directeur de Recherche CNRS	ESPCI Paris Tech
M. Pierre FAUCHAIS	Professeur	Limoges
M. Thierry CHARTIER	Directeur de Recherche CNRS	Limoges
M. Michel VARDELLE	Professeur	Limoges

Invitées:

Mme Julie CEDELLE	Maître de conférences	Paris Ouest
Mme Armelle VARDELLE	Professeur	Limoges

A ma famille,

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au sein du laboratoire Science des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface (SPCTS), unité mixte de recherche CNRS/Université de Limoges/ENSCI n°6638. Je remercie son directeur, Monsieur Thierry Chartier, de m'avoir permis d'y travailler.

Je remercie les responsables successifs de l'équipe de recherche « Procédés de traitements de surface », Monsieur le Professeur Ghislain Montavon et Monsieur Alain Denoirjean. Pour m'avoir accueilli et permis d'utiliser le matériel du laboratoire.

Un grand merci à Monsieur le Professeur Pierre Fauchais pour sa disponibilité, sa bonne humeur et ses remarques au cours de la thèse, et également pour avoir accepté de présider mon jury de thèse. Je suis aussi grandement reconnaissant à mes rapporteurs, Monsieur Dominique Gobin et Monsieur le Professeur José Maria Guilemany, d'avoir accepté de relire mon manuscrit.

C'est avec un grand plaisir que je tiens à remercier mon directeur de thèse Monsieur le Professeur Michel Vardelle pour m'avoir fait passé ces années de thèse dans les meilleures conditions. Son soutien sans faille, sa bonne humeur, son grand professionnalisme et sa confiance au quotidien m'ont permis de me former et de développer une capacité de recherche que j'espère transmettre dans mon futur métier. Je tiens également à le remercier pour m'avoir fait participer à des contrats de recherche et ainsi me permettre de participer à la mise en place de nouveaux équipements.

Merci à Monsieur Alain Grimaud, ses connaissances scientifiques et mécaniques ont toujours débloqué la situation. Qu'il voit en ces quelques lignes une reconnaissance sans bornes pour tout ce qu'il m'a transmis. Le temps qu'il m'a consacré et ses conseils m'ont toujours été utiles.

Une thèse en projection thermique ne pourrait jamais avoir lieu sans le support mécanique et technique apporté par Messieurs Jacques Charbonnel, Nicolas Lory et Sébastien Faure. Leurs capacités à adapter les pièces et leur rapidité à les réaliser m'ont été indispensables.

Je tiens également à remercier ma tutrice de monitorat, Madame Corinne Champeaux, qui a su me transmettre les points clefs pour organiser et intervenir dans les meilleures conditions auprès des étudiants. Je remercie également Monsieur le Professeur François Reynaud, du laboratoire XLIM, pour m'avoir encadré en master 1^{ère} année et m'avoir donné l'envie de poursuivre en thèse, mais également pour m'avoir accepté au sein d'Ecole en Fac.

Merci à toutes les personnes qui m'ont apporté de l'aide (technique, scientifique ou administrative) et des conseils tout le long de la thèse, je pense à Daniel Tetard, Pierre Carles, Etienne Laborde, Paule Denoirjean, Frédéric Chambon, Armelle Vardelle, Hélène Memy, Nadine Tchefranoff, Martine Segear, Gaëlle Peyrat, Mathilde Lecompte. Et à tout le personnel de la BU la Borie, merci pour votre rapidité pour les prêts entre bibliothèques.

J'en viens maintenant à remercier les personnes qui ont dû me supporter au quotidien et avec lesquels j'ai partagé tant de choses. Parmi la *MV Team*, ma première pensée va à Elise, qui m'a montré au cours de mon master recherche, la ligne directrice pour mener à bien des travaux de thèse. Je pense ensuite à Manu (rocket man) avec lequel j'ai dépassé le simple

statut de collègue. Manu si tu lis ces quelques lignes je te remercie pour tous les bons moments de rigolade et pour ton soutien dans les mauvaises passes. Merci également à Teddy, pour sa bonne humeur et son organisation.

Merci à tous mes collègues doctorants ou docteurs, je pense à Aure (notre guide et maitre à tous), Geoffrey (notre caricaturiste préféré), Elodie (une vraie pile à combustible), Antoine (grand skieur et botaniste), Quentin, Olivier, Saïd, Cécile, Pierrette, Fahdel, Salman, Jean Baptiste, Hervé, Marie (Vive Jidé), Julie et David.

Je tiens également à remercier Sandrine pour les discussions sur les thèmes de la vie courante.

Merci également aux masters recherche, qui m'ont permis de tester diverses techniques d'encadrements je pense à Franck, Guillaume, Julien, Pierre, Maxou. Dédicace personnelle à Manon, qui est une personne avec une joie de vivre et une énergie à revendre hors du commun. Une pensée également à Stéphane, Julien et Pierre qui commencent leur thèse. Puissiez-vous passer trois années comme je les ai passées.

En dernier lieu je souhaite vivement remercier les membres de ma famille sans lesquels faire une thèse aurait juste été impossible. Merci Maman pour m'avoir encouragé, rassuré et avoir accepté mes horaires.

Nomenclature

c_p : Capacité calorifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)

Re_0 : Nombre de Reynolds de la particule incidente

Pe_0 : Nombre de Peclet de la particule incidente

Bi_0 : Nombre de Biot de la particule incidente

We_0 : Nombre de Weber de la particule incidente

K : paramètre de Sommerfeld

v_0 : Vitesse d'impact de la particule incidente (m/s)

D_0 : Diamètre de la particule incidente (μm)

T_0 : Température de la particule juste avant l'impact ($^{\circ}C$)

ρ : masse volumique (kg/m^3)

μ : viscosité (Pa.s)

σ : tension superficielle ($N.m^{-1}$)

α : diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)

λ : conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)

ξ_{max} : facteur d'étalement maximum de la lamelle

D_{max} : diamètre d'étalement maximum (μm)

D_{min} : diamètre d'étalement final de la lamelle (μm)

v_{trempe} : vitesse de refroidissement moyenne de la surface de la lamelle ($^{\circ}C/\mu s$)

t_{exp} : temps d'exposition de la camera (μs).

$t_{chauffe}$: temps de chauffage du substrat (s)

T_{max} : température maximale atteinte par le substrat ($^{\circ}C$)

v_E : Vitesse d'étalement moyenne de la matière sur la surface du substrat (m/s)

a : Vitesse d'étalement normalisée par rapport à la vitesse d'impact

$Re_{L;Rmax} = (\rho \cdot v_E \cdot R_{max} / \mu)$: Nombre de Reynolds de l'étalement, dimension caractéristique :
rayon d'étalement maximal

$We_{L;Rmax} = (\rho \cdot v_E^2 \cdot R_{max} / \sigma)$: Nombre de Weber de l'étalement, dimension caractéristique :
rayon d'étalement maximal

$We_{L;Do} = (\rho \cdot v_E^2 \cdot D_0 / \sigma)$: Nombre de Weber de l'étalement dimension caractéristique :
diamètre de la particule incidente

K_f : paramètre de Fukumoto

T_t : température de transition au-dessus de laquelle seules des lamelles circulaires sont obtenues.

R_a : Ecart moyen arithmétique de la surface (nm)

$R_{\Delta q}$: Ecart moyen quadratique (RMS) de la surface (nm)

R_t : Profondeur totale de la surface (nm)

S_k : Facteur d'asymétrie de la surface

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I : Etude bibliographique	5
I-1/ Introduction.....	7
I-2/ L'étalement de particule sur une surface.	7
I-2.1 Principe de fonctionnement de la torche à plasma.	7
I-2.2 Origines des imperfections d'un dépôt obtenu par plasma thermique.	8
I-2.3 Adhérence d'une lamelle provenant de l'étalement d'une particule fondue sur un substrat.	9
I-2.4 Comportement d'un liquide sur une surface	10
I-2.5 Modifications de l'état de surface d'un substrat soumis à une atmosphère polluée et oxydante.	13
I-3/ Les différentes études antérieures.....	15
I-3.1 Les moyens de caractérisation de l'impact	15
I-3.2 Résumés des principaux résultats.....	32
I-4/ Conclusions de la partie bibliographique.....	39
Chapitre II : Dispositifs expérimentaux	41
II-1/ Introduction	43
II-2/ Dispositif de caractérisation à l'impact de gouttes de taille micrométrique	43
II-2.1 Dispositif de projection thermique.....	44
II-2.2 Métrologie sur particules « en vol » et à l'impact.	46
II-2.3 Le porte substrat.....	68
II-3/ Dispositif millimétrique.....	69
II-3.1 Caractéristique du dispositif de projection	69
II-3.2 Métrologie.....	70
II-3.3 Techniques d'imagerie.....	72
II-3.4 Déclenchement des appareils de mesure.....	73

II-3.5 Le porte substrat.....	74
II-3.6 Travail en atmosphère peu oxydante.	75
II-4/ Les substrats utilisés.....	75
II-5/ Les moyens d'analyses.....	76
II-5.1 Caractérisation microscopique.....	76
II-5.2 Caractérisation par spectroscopie de photoélectrons (XPS).....	76
II-6/ Conclusions sur les dispositifs expérimentaux.....	77
Chapitre III : Phénomènes thermiques et hydrodynamiques lors de la formation de la lamelle	79
III-1/ Introduction.....	81
III-2/ Echelle micrométrique.....	81
III-2.1 Etude de l'impact d'une goutte céramique : Al_2O_3	81
III-2.2 Etude de l'impact d'une goutte métallique : NiAl.....	112
III-2.3 Conclusions sur le processus d'impact de particule micrométrique de type Al_2O_3 ou NiAl, sur deux types de substrat.....	132
III-3/ Echelle millimétrique.....	142
III-3.1 Etude de l'impact d'une goutte céramique : Al_2O_3	143
III-3.2 Etude de l'impact d'une goutte métallique : NiAl.....	158
III-3.3 Conclusions.....	167
III-4/ Comparaison entre les 2 échelles d'étalement.....	168
III-4.1 Vitesse d'étalement.....	169
III-4.2 Evolution de l'étalement en fonction de la tension superficielle, et de la viscosité de la goutte.....	174
III-4.3 Comparaison avec la littérature.....	175
III-5/ Conclusions : <i>Contribution à la modélisation de l'étalement</i>	176
Chapitre IV : Examen physico-chimique de l'interface lamelle / substrat.....	179
IV-1/ Introduction.....	181
IV-2/ Cas de l'alumine sur un substrat d'acier inoxydable.....	181

IV-2.1 Examens topographiques.....	182
IV-2.2 Etudes chimiques.....	185
IV-3/ Cas du NiAl sur un substrat d'alliage de titane.....	194
IV-3.1 Impact d'une particule millimétrique de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous air	194
IV-3.2 Impact d'une particule millimétrique de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous argon	198
IV-3.3 Discussions et conclusions.	200
Conclusion générale et perspectives	205
Conclusion générale	207
Perspectives	212
Annexes.....	217
Références bibliographiques	227

Table des figures

Figure I-1 : Principe de la torche à plasma [188].....	8
Figure I-2 : Angle de contact d'avancée et de reculée suivant la rugosité du substrat [45].....	11
Figure I-3 : Morphologies de lamelles obtenues pour différentes conditions de projection [48]	17
Figure I-4 : Photographie de l'étalement de particules de molybdène. Chaque ligne montre 5 photos correspondant approximativement au même temps. Les différents moments de déclenchement sont précisés par les labels de a à e [4].....	20
Figure I-5 : (a) Images de l'impact et (b) vues de la forme finale de la lamelle pour différentes températures de préchauffage, le tir est réalisé sur substrat froid [57]	21
Figure I-6 : (a) Images de l'impact et (b) vues de la forme finale de la lamelle pour différentes températures de préchauffage, le tir est réalisé sur substrat chaud (350°C) [57].....	22
Figure I-7 : Trajectoire et impact d'une particule de zirconium durant un temps d'exposition de 50 μ s [181]	23
Figure I-8 : Trajectoire et impact d'une particule de zirconium en configuration exposition multiple ; $t_{exp} = 50 \mu$ s, (ouvert 5 μ s, fermé 5 μ s) [181].....	23
Figure I-9 : (a) Déformation et refroidissement d'une particule de zirconium de taille micrométrique impactant sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante, (b) profil du rayonnement issu de la particule lors de l'étalement. [117].....	25
Figure I-10 : Principaux paramètres influençant l'étalement d'une goutte sur un substrat [181]	32
Figure II-1 : Micrographies des poudres <i>après tamisage</i> : (a) NiAl (5%), (b) Al ₂ O ₃	46
Figure II-2 : Schéma du dispositif permettant l'étude de l'étalement de particules de taille micrométrique.	47
Figure II-3 : Schéma du dispositif, vue de côté et parallèle au marbre.....	48
Figure II-4 : (a) Portions de disques situées sur la trajectoire des particules et (b) signal théorique recueilli en sortie de l'amplificateur –filtreur.	49
Figure II-5 : Position des impulsions TTL par rapport aux impulsions lumineuses provenant du passage de la particule dans le volume de mesure et permettant la mesure de la vitesse de la particule.	50
Figure II-6 : Exemple de signal recueilli dans le cas d'une particule de diamètre 40 μ m et de vitesse égale à 140 m/s.	51
Figure II-7 : Schéma du système d'acquisition pyrométrique et profils théoriques des signaux recueillis.	53
Figure II-8: Comparaison entre les signaux fournis d'une part par un PM et une résistance (40k Ω), et d'autre part, par un PM et un amplificateur (C7247-01), le signal provient de la même particule, les dispositifs étant placés respectivement sur la longueur d'onde 1 et 2.....	54
Figure II-9 : Intensité lumineuse de la lampe à vapeur d'Al mesurée sur chacune des voies en fonction de la position du réseau (a) et de la longueur d'onde (b).....	56
Figure II-10 : Exemples de signaux pyrométriques pour différentes positions de réseau (a) 560 / 688 et (b) 690 / 818	57
Figure II-11 : Courbe d'étalonnage du pyromètre bi-chromatique, où R est le rapport des intensités de chaque voie pour une température donnée.	58
Figure II-12 : Allure théorique d'un signal pyrométrique avec description des différentes phases de l'impact.	59
Figure II-13 : Exemple de signaux pyrométriques (a) avant et (b) après lissage.....	59
Figure II-14 : Détails des temps de la caméra PCO Sensicam.....	61

Figure II-15 : (a) Photographie du microscope longue distance QUESTAR et (b) champ de vision en fonction des lentilles utilisée et de la distance de travail.....	62
Figure II-16 : Photographie de l'objectif Sigma	62
Figure II-17 : (a) Taille du champ vu par les caméras munies de l'objectif Sigma et de deux télé-convertisseurs, (b) taille de l'image après recadrage.	63
Figure II-18 : Photographies d'une lamelle déposée sur une surface pour différentes positions en X du substrat, la position X=0 correspond au point de focalisation.....	63
Figure II-19 : Netteté de l'image (focalisée à froid) obtenue torche plasma allumée, (a) sans, (b) avec barrière d'air.....	64
Figure II-20 : Visualisation de la trajectoire ($t_{exp}=1\mu s$) d'une particule d'alumine juste avant l'impact sur le substrat (a) vue de la caméra 1 (b) vue de la caméra 2	66
Figure II-21 : Signal pyrométrique brut recueilli en sortie du pyromètre, le temps $t=0$ correspond à la génération de l'impulsion de déclenchement. Le croisement des deux droites permet d'en déduire le moment de l'impact.....	67
Figure II-22 : Schéma du dispositif de caractérisation de l'impact de goutte de taille millimétrique	70
Figure II-23 : (a) Schéma du dispositif de pyrométrie rapide embarqué, (b) champ vu par la caméra et par le pyromètre (tache laser rouge)	72
Figure II-24 : Procédure de déclenchement des différents systèmes composant le dispositif millimétrique	74
Figure III-1 : Evolution de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage.....	83
Figure III-2 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 210 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et à température ambiante ($20^{\circ}C$), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle et (c) vue de la lamelle résultante.	84
Figure III-3 : Images à différents grandissements de la forme de la lamelle finale provenant de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 210 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et à température ambiante ($20^{\circ}C$) (a) vue de la zone centrale de la lamelle, (b) vue de la zone d'impact, (c) vue de la zone annulaire.....	85
Figure III-4 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 226 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé $80^{\circ}C / 10\ min$, $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle et (c) vue de la lamelle résultante.	86
Figure III-5 : Image de la zone d'impact d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impact à une vitesse de 226 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($80^{\circ}C / 10\ min$).....	86
Figure III-6 : Photographie de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 270 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^{\circ}C / 10\ min$), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat et, (b) tangentielle (c) vue de la lamelle résultante.	87
Figure III-7 : Agrandissements des images obtenues par les caméras, pour l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 270 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^{\circ}C / 10\ min$), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle	88
Figure III-8 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu m$) impactant à une vitesse de 248 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^{\circ}C / 14\ min$), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a)	

perpendiculaire, déclenchée 0,7 μ s après l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée 0,7 μ s avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante.....	90
Figure III-9 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 242 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 16 min), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée 0,1 μ s après l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée 1,3 μ s avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante.....	91
Figure III-10 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 245 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 16 min), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée 1 μ s avant l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée 2,4 μ s avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante.....	91
Figure III-11 : Zooms de la périphérie de la lamelle finale dans le cas de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 245 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 16min), (a) détail d'une éjection avec rupture du film, et (b) détail d'une éjection sans rupture du film et (c) détail de la périphérie.....	92
Figure III-12 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 223 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 25 min), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée 0,2 μ s avant l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée 1,6 μ s avant l'impact et (c) lamelle résultante.....	93
Figure III-13 : Photographies de l'étalement de particules d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse moyenne de 180 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et lamelle résultante (dernière colonne). Les cas (a), (b) et (c) sont des exemples de forme de lamelles.....	94
Figure III-14 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 198 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min / 20 °C / 1 min), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante..	95
Figure III-15 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 185 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min / 20°C / 24 h), $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante..	96
Figure III-16 : Exemple d'évolution de la température de surface de la lamelle dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine de diamètre 40 μ m et de vitesse à l'impact de 210 m/s sur un substrat de type 304L à température ambiante.....	97
Figure III-17 : Exemple de calcul de D_{max} et de D_{min} pour différentes formes de lamelles.....	97
Figure III-18 : (a) Evolution de la vitesse de trempe en fonction du diamètre d'étalement maximal de la lamelle et (b) évolution du diamètre d'étalement en fonction de la température de chauffage	98
Figure III-19 : Evolutions de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage.....	100
Figure III-20 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μ m) impactant à une vitesse de 180 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type Ti-6242), poli et à température ambiante, $t_{exp}=10\mu$ s suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante.....	100

Figure III-21: Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), poli et chauffé dans différentes conditions résumées dans la première colonne, Vitesse moyenne d'impact = 215 m/s	101
Figure III-22 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 221 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type Ti-6242), poli et préchauffé à 300°C / 10 min puis refroidi à 20°C, $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante	102
Figure III-23 : Visualisations du processus d'étalement pour différents moments de déclenchement et différentes particules d'alumine impactant sur un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : paramètres particules (vitesse et température à l'impact) et retard par rapport au moment de l'impact ; deuxième colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{\text{exp}} = 2\mu\text{s}$).....	108
Figure III-24 : Visualisations du processus d'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 200 m/s sur un substrat de type 304L pour différentes formes de lamelles, (1) déchiquetée avec un anneau périphérique, (2) circulaire avec éjections périphériques, (3) circulaire avec éjection centrale perpendiculaire	110
Figure III-25 : Evolutions de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage.....	113
Figure III-26 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 117 m/s sur un substrat d'acier inoxydable (type 304L), poli et à température ambiante, $t_{\text{exp}} = 10 \mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante	113
Figure III-27 : (a) image de la lamelle, après complet refroidissement, prise avec la caméra 1 en présence d'un éclairage annexe et (b) superposition avec l'image de la lamelle au cours de l'étalement.	114
Figure III-28 : Photographies de l'étalement de particules de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 110 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et de la lamelle résultante (dernière colonne). Chaque ligne correspond à une procédure de chauffage différente.....	115
Figure III-29 : Agrandissement de la zone centrale d'une lamelle de NiAl déposée sur un substrat d'acier inoxydable, chauffé à 320°C / 16 min	116
Figure III-30 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 106 m/s sur un substrat d'acier inoxydable (type 304L), poli et préchauffé à 300°C / 10 min puis refroidi à 20°C, $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante.....	117
Figure III-31 : Superposition de lamelles obtenues sur un substrat chauffé dans les mêmes conditions (320°C / 16 min) mais dont la température est différente au moment de l'impact.....	118
Figure III-32 : Etude topographique d'une lamelle de NiAl déposée sur un substrat d'acier inoxydable chaud (300°C / 10min) de type 304L, (a) vue générale de la lamelle et (b) vue du profil selon un diamètre.....	118
Figure III-33 : Vues zoomées de (a) l'image de la caméra 1 et de (b) la lamelle finale	119
Figure III-34 : Vues zoomées de (a) l'image de la caméra 1 et de (b) la lamelle finale	121
Figure III-35 : Evolution de la vitesse de trempé de particules de NiAl en fonction du diamètre d'étalement maximal de la lamelle.....	122

Figure III-36 : Evolutions de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage.....	124
Figure III-37 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 109 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), poli et à température ambiante, $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante	124
Figure III-38 : Photographies de l'étalement de particules de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 114 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et de la lamelle résultante (dernière colonne). Chaque ligne correspond à une procédure de chauffage différente.....	125
Figure III-39 : Visualisations du processus d'étalement pour différents moments de déclenchement et différentes particules de NiAl impactant sur un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : paramètres particules (vitesse et température à l'impact) et retard par rapport au moment de l'impact ; deuxième colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{\text{exp}} = 2\mu\text{s}$).....	129
Figure III-40 : Visualisations du processus de fragmentation du film pour différents moments de déclenchement et différentes particules de NiAl impactant sur un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{\text{exp}} = 1\mu\text{s}$)	130
Figure III-41 : Schématisation des différentes zones de film au fur et à mesure de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat de type 304L à température ambiante.	131
Figure III-42 : Lien entre la valeur de la température de transition et l'énergie de formation des oxydes [183].....	133
Figure III-43 : Schématisation du processus d'étalement en termes de bilan énergétique et de refroidissement, et exemples de cas (impacts sur un substrat type 304L)	140
Figure III-44 : Visualisations de la chronologie de la formation et de la fragmentation du film en présence d'un obstacle sur le substrat.	147
Figure III-45 : Vues des images présentées sur la Figure III-44 agrandies et centrées sur la position de l'obstacle, (a) passage du front de matière au dessus de l'obstacle, (b) séparation du film et du bourrelet, (c) cassure du bourrelet.....	148
Figure III-46 : Evolution du diamètre d'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique impactant sur un substrat de type 304L froid.	149
Figure III-47 : Visualisation de la chronologie de la formation et de la fragmentation du film sur une surface mouillée froide.	150
Figure III-48 : Comparaison de l'angle de propagation du bourrelet par observation de son reflet sur la surface du substrat entre un substrat mouillé et un substrat sec.....	151
Figure III-49 : Evolution du diamètre d'étalement d'une particule d'alumine impactant sur un substrat de type 304L mouillé.	151
Figure III-50 : Visualisations du processus d'éjection perpendiculaire au substrat dans le cas de l'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique présentant un cœur solide.	152
Figure III-51 : Evolution de la distance parcourue par l'éjection perpendiculaire en fonction du temps	153
Figure III-52 : Vues tangentielles de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante (20°C), la flèche pointe le côté opposé de la lamelle (dû à un angle d'observation de 2°).....	154

Figure III-53 : Vues tangentielles de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à (200°C), la flèche pointe le côté opposé de la lamelle (dû à un angle d'observation de 2°).....	156
Figure III-54 : (a) Signaux pyrométriques ($\lambda=630\text{nm}$) et (b) évolutions de la température de surface de la lamelle pour une surface froide (20°C) et chaude (400°C), les nombres encadrés correspondent à des points temporels.....	157
Figure III-55 : Visualisation de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante.....	159
Figure III-56 : Vues agrandies de l'image de l'étalement au moment de l'impact.....	160
Figure III-57 : Visualisations de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé 300°C / 10 min.....	160
Figure III-58 : Vues agrandies de l'image de l'étalement au moment de l'impact.....	161
Figure III-59 : Visualisations de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante sous argon.	163
Figure III-60 : Visualisations de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé 300°C / 10 min, sous argon	163
Figure III-61 : Visualisations pour un même temps des différents types d'étalement rencontrés suivant les conditions de tir, (a) substrat à 20°C, atmosphère d'air, (b) substrat à 300°C, atmosphère d'air, (c) substrat à 20°C, atmosphère d'argon, (d) substrat à 300°C, atmosphère d'argon	165
Figure III-62 : Vue schématique de la création des triangles de matière au moment de l'impact de la particule sur le substrat.	166
Figure III-63 : Evolution de la tension superficielle en fonction du pourcentage d'oxygène	166
Figure III-64 : Evolutions de la vitesse d'étalement normalisée, notée « a », ($a=v_E/v_0$), pour une lamelle d'alumine sur un substrat en acier inoxydable, en fonction (a) du facteur d'étalement « ξ_{max} » ($\xi_{\text{max}}=D_{\text{max}}/D_0$), (b) de la température du substrat « T_{substrat} ».....	171
Figure III-65 : Evolutions de la vitesse d'étalement normalisée, notée « a », ($a=v_E/v_0$), pour une lamelle de NiAl sur un substrat en alliage de titane, en fonction (a) du facteur d'étalement « ξ_{max} » ($\xi_{\text{max}}=D_{\text{max}}/D_0$), (b) de la température du substrat « T_{substrat} ».....	172
Figure III-66 : Evolutions de l'étalement de gouttes de natures différentes aux deux échelles d'étalement, en fonction (a) du Reynolds ($Re_{L, R_{\text{max}}}$) (b) du Weber ($We_{L, R_{\text{max}}}$), la vitesse prise en compte est celle de la matière sur le substrat et la dimension caractéristique est égale au rayon d'étalement maximal.....	174
Figure III-67 : Evolutions du facteur K_f en fonction de la température du substrat pour deux types de particules (a) céramique (Al_2O_3) (b) métalliques (NiAl). D'après [183], en dessous de $K_f^c=7$, seules des lamelles circulaires sont obtenues.	175
Figure III-68 : Evolution de l'étalement de gouttes en fonction du Weber d'étalement calculé pour différentes dimensions caractéristiques (a) Rayon d'étalement maximal (R_{max}) (b) Diamètre de la particule incidente (D_0).....	177
Figure IV-1 : Vues microscopiques du dessous de la lamelle (a) pour un impact sur un substrat froid et (b) pour un impact sur un substrat chaud (400°C)	182
Figure IV-2 : Topographies de surface des substrats à des échelles de rugosité différentes, avant (a, c) et après impact (b, d), substrat froid (20°C)	183
Figure IV-3 : Topographies de surface des substrats à des échelles de rugosité différentes, avant (a, c) et après impact (b, d), substrat chaud (400°C)	184
Figure IV-4 : Image du substrat après impact et position des différentes zones analysées. ..	186
Figure IV-5 : Spectres XPS globaux des différentes zones d'analyses.....	187
Figure IV-6 : Déconvolution du spectre haute résolution du composé Fe_3O_4 [185].....	188
Figure IV-7 : Spectres haute résolution de la liaison Fe2p, (a) zone 1 (hors impact) (b) zone 2 (bords de la lamelle), (c) zone 3 (zone centrale).....	189

Figure IV-8 : Spectres haute résolution de la liaison O1s, (a) zone 1 (hors impact) (b) zone 2 (bords de la lamelle), (c) zone 3 (zone centrale), les échelles en ordonnées ne sont pas identiques.	189
Figure IV-9 : Résumé des différents composés présents dans les zones analysées.	191
Figure IV-10 : Spectre XPS global de la face de la lamelle en contact avec le substrat.	192
Figure IV-11 : Spectres haute résolution de la liaison Al2p, (a) avant impact (b) après impact	193
Figure IV-12 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de NiAl sur un substrat de Ti-6242 à température ambiante (diamètre initial de la particule 5 mm).....	195
Figure IV-13 : Vue microscopique de la couche 1 située en contact du substrat	195
Figure IV-14 : Vue microscopique de la couche 2 composée d'une structure eutectique et cellulaire.....	196
Figure IV-15 : Vue microscopique de la couche 3 et du reste de la lamelle (flèche 4)	196
Figure IV-16 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de NiAl sur un substrat de Ti-6242 chauffé à 300°C	197
Figure IV-17 : (a) Couche 1 et (b) Couche 2	197
Figure IV-18 : Couche 3.....	198
Figure IV-19 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de Ni5Al sur un substrat de Ti-6242 à température ambiante lors de l'impact de la particule de diamètre 5 mm	199
Figure IV-20 : Vues microscopiques de la couche 1 (a) pour une zone homogène et (b) pour une zone présentant des cristaux.	199
Figure IV-21 : Vues microscopiques de l'interface dans le cas de l'impact sous argon sur une surface chauffée à 350°C, (a) vue globale des différentes couches intermédiaires, (b) vue de la couche 2 et (c) vue de la zone 4.....	200
Figure IV-22 : Schéma récapitulatif des différentes couches trouvées à l'interface lamelle / substrat.	201
Figure IV-23 : profil de concentration des différentes espèces à l'interface lamelle substrat.	202

Table des tableaux

Tableau II-1 : Paramètres de fonctionnement de la torche.....	45
Tableau II-2 : Caractéristiques du capteur de la caméra PCO	61
Tableau II-3 : Caractéristiques de l'objectif Sigma	62
Tableau II-4 : Caractéristiques de la caméra rapide FastCam PCI	73
Tableau II-5 : Caractéristiques du détecteur utilisé pour déclencher les divers appareils	73
Tableau III-1 : Résumé des conditions d'impact et des paramètres de rugosité dans le cas de lamelles de forme différente résultant de l'impact de particules d'alumine de diamètre 40 µm sur des substrats d'acier inoxydable polis et chauffés dans les mêmes conditions. ..	92
Tableau III-2 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe).....	98
Tableau III-3 : Rugosité de surface des substrats d'acier inoxydable froid (20°C) ou chauffé (200°C / 10 min).....	99
Tableau III-4 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe).....	103
Tableau III-5 : Rugosité de surface des substrats d'alliage de titane froid (20°C) ou chauffé (300°C / 10 min).....	103
Tableau III-6 : Caractéristiques physiques des différents substrats utilisés.....	105
Tableau III-7 : Rugosité de surface de substrats non chauffé, d'acier inoxydable et d'alliage de titane	106
Tableau III-8 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe) pour des particules de NiAl	122
Tableau III-9 : Rugosité de surface des substrats d'acier inoxydable froid (20°C) ou chauffé (320°C / 10 min).....	123
Tableau III-10 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe).....	126
Tableau III-11 : Rugosité de surface des substrats d'alliage de titane froid (20°C) ou chauffé (300°C / 10 min).....	127
Tableau III-12 : Comparaison de l'étalement pour deux types de particules (Al ₂ O ₃ , NiAl) de taille micrométrique (40µm) impactant sur un substrat de type 304L dont la température est égale à 20°C ou au delà la température de transition, les cercles représentent le diamètre d'étalement maximal.	138
Tableau III-13 : Visualisations de l'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique (5 mm) impactant à différentes vitesses (cas D1 à D3), et pour deux températures de substrat (cas D3 à D4).....	144
Tableau IV-1 : Composition chimique du substrat d'acier inoxydable de type 304L	185
Tableau IV-2 : Composition chimique du substrat d'acier inoxydable analysée par EDS, avant et après l'impact d'une particule d'alumine.....	186
Tableau IV-3 : Positions et intensités des différents pics détectés dans les différentes zones, zone 1 (hors impact), zone 2 (bords de la lamelle), zone 3 (zone centrale), un tiret indique l'absence du pic dans la zone considérée	190
Tableau IV-4 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 1	195
Tableau IV-5 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 2 pour les deux différentes zones	196
Tableau IV-6 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein du reste de la lamelle..	196
Tableau IV-7 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 3	198

Table des équations

Eqn. I-1	12
Eqn. I-2.....	29
Eqn. I-3.....	30
Eqn. I-4.....	30
Eqn. I-5.....	30
Eqn. I-6.....	31
Eqn. I-7.....	31
Eqn. II-1	51
Eqn. II-2	52
Eqn. II-3	52
Eqn. II-4	58

Introduction générale

L'étude de l'étalement d'une goutte impactant une surface a depuis longtemps intéressé de nombreuses équipes de recherche, que ce soit pour les imprimantes dites à jet d'encre, la peinture au pistolet, les gouttes de pluie, et entre autres, la projection thermique, objet de cette étude [1-9] [131].

Dans le domaine de la projection thermique, procédé permettant de projeter des particules dans un état fondu ou semi fondu pour élaborer un dépôt, l'étalement de ces particules sur la surface du substrat influence fortement les caractéristiques du dépôt [10-12]. En effet, du fait des cinétiques d'étalement et de refroidissement des particules impactant le substrat, le dépôt est constitué d'un empilement successif de lamelles. Une des qualités premières d'un revêtement est une bonne adhérence, la première couche de lamelles est donc essentielle à sa durée de vie. L'interface doit être la plus continue possible, c'est-à-dire exempt de vide, fissures, cavités [13-14]. Pour étudier la formation de cette couche, la première étape consiste à observer, sur un substrat lisse non encore recouvert, le comportement à l'impact d'une particule [15].

De nombreuses études furent menées sur le procédé de projection thermique, et ont permis de trouver des conditions de fonctionnement en vue d'obtenir un dépôt adhérent, de structure convenable, de par sa compacité et son homogénéité. Néanmoins, ces études, où seule la forme finale de la lamelle était examinée, n'ont pu permettre une bonne compréhension du comportement de la goutte suivant les différentes conditions d'impact.[16][17]. Puis le développement de modèles a permis d'émettre des hypothèses sur l'étalement de la particule et le processus d'éjection [10] [18-28][18]. Pour confirmer la véracité de ces modèles, l'obtention de résultats expérimentaux devint nécessaire. Cependant, dans le procédé de projection thermique, les particules projetées ont un diamètre de quelques microns et les vitesses d'impact sont de l'ordre de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de mètres par seconde. L'étalement de la particule et sa solidification se produisent en quelques microsecondes [32]. Il est alors très difficile de suivre l'étalement de la particule sur la surface même avec la plus rapide des caméras qui a actuellement une fréquence d'acquisition d'une image/ μ s. La recherche s'est alors orientée vers l'observation de l'impact de particules de taille millimétrique [24] [29-31][30] [115]. Les observations sont alors plus simples car les temps d'étalement sont de l'ordre de la milliseconde. Du fait de l'augmentation de la taille de

la particule, les résultats obtenus à l'échelle millimétrique ne sont peut-être pas directement transposables à l'échelle micrométrique. C'est pour confirmer les résultats obtenus à l'échelle millimétrique que se sont développés dans les dix dernières années, des dispositifs permettant d'approcher la chronologie de l'étalement pour des particules micrométriques [32-38] [53]. Ces dispositifs mettent en œuvre des caméras à expositions rapides afin de visualiser des moments de l'étalement pour différentes particules et ainsi reconstituer la chronologie de leur étalement. Néanmoins, la qualité des images ne permet d'obtenir qu'une approximation de l'étalement maximal et non de la répartition de la matière sur le substrat. Ces essais couplés à des mesures de vitesses et de températures des particules « en vol » ont cependant permis une avancée dans la compréhension des phénomènes à l'impact. De nombreux points restent tout de même en suspens. En effet, lors de l'impact et / ou de l'étalement des particules, des éjections de matière se produisent. Le moment et la manière dont sont générées ces éjections n'ont encore jamais été précisés. Seuls, la forme finale de la lamelle (particulièrement le nombre de filaments de matière présents) et les résultats obtenus à l'échelle millimétrique, ont permis à certains auteurs d'émettre des hypothèses sur les phénomènes conduisant à ces éjections. Il est également à noter que les études réalisées à l'échelle millimétrique ont porté uniquement sur des particules métalliques. Les résultats obtenus ne sont, par conséquent, peut-être pas transposables aux particules céramiques.

En parallèle à ces études centrées sur le processus d'étalement, d'autres auteurs se sont focalisés sur la caractérisation de la liaison entre le dépôt et le substrat, soit à l'échelle du dépôt, soit à celle d'une lamelle. Mais les caractérisations ont été, dans la majorité des cas, réalisées sur des lamelles obtenues dans des conditions où les paramètres d'impact de la particule n'étaient pas ou peu connus. C'est la raison pour laquelle il existe une grande variabilité dans les résultats, suivant les lamelles et le type de matériau considéré.

Il apparaît donc nécessaire de caractériser au mieux l'étalement de la particule sur le substrat et c'est dans ce contexte que le travail présenté dans ce manuscrit prend tout son sens. En effet, le but principal de cette étude est d'observer l'étalement de la matière à la surface du substrat, pas seulement au moment de l'étalement maximal mais à tout instant pour pouvoir évaluer la répartition de la matière durant l'étalement et étudier les éjections de matière. Pour ce faire, la technique utilisée est la même que celle des autres auteurs, mais deux dispositifs sont mis en place parallèlement, chacun permettant d'étudier l'impact à une échelle d'étalement différente.

Le premier dispositif, déjà existant, permet d'étudier l'étalement à l'échelle micrométrique. Ce dispositif développé au laboratoire SPCTS, a été utilisé dans une étude précédente pour permettre de visualiser les phénomènes d'éjection à l'impact et de suivre le refroidissement de lamelles [37-40]. Ce banc de test avait alors des limites dans la visualisation des phénomènes. Il a donc été nécessaire d'améliorer ce dispositif pour visualiser, le plus nettement possible, les différents phénomènes à étudier et de caractériser au mieux la particule avant l'impact et lors de son étalement.

Le deuxième dispositif permet d'étudier l'impact, à l'échelle millimétrique, de particules céramiques et métalliques. Ce dispositif reposant, entre autre, sur la chute libre d'une grosse goutte, a entièrement été développé pour cette étude et pour des gouttes aussi bien métalliques que céramiques.

La première partie de ce manuscrit est essentiellement bibliographique. Après une présentation du contexte de l'étude et une brève description du fonctionnement d'une torche à plasma, utilisée pour la projection thermique, différentes études antérieures sur les particules aussi bien céramiques que métalliques sont présentées. Une réflexion est menée sur la validité d'une comparaison de l'étalement de particules à des échelles différentes. Cette partie permet donc de réaliser « l'état de l'art » des études sur l'étalement de gouttes chaudes, point clef du procédé de projection thermique.

La deuxième partie présente les différents bancs expérimentaux comportant des techniques d'imagerie et de caractérisation de la vitesse et de la température des particules « en vol » et à l'impact. Pour fondre les particules à l'échelle micrométrique, une torche à plasma est utilisée. A l'échelle millimétrique, le choix s'est porté sur un système composé d'un arc électrique permettant de fondre des matériaux massifs de différentes natures. Dans le cas du dispositif millimétrique, la vitesse de chute libre ne suffit pas pour étudier l'impact sur une large gamme de vitesse. C'est pourquoi un dispositif permettant de déplacer le substrat selon un axe vertical a été ajouté au montage, pour augmenter la vitesse d'impact relative.

La troisième partie présente l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus aux deux échelles pour deux types de substrat et deux types de particules incidentes. Les résultats obtenus, grâce aux différents dispositifs de mesures, permettent de suivre les évolutions de l'étalement de la matière en fonction de la température du substrat. Il est étudié plus particulièrement, dans le cas des céramiques, l'influence du temps de préchauffage du substrat

sur la morphologie de la lamelle. Ensuite, pour mieux préciser les temps d'apparitions des phénomènes d'éjections, une chronologie de l'étalement est présentée pour deux types de particules impactant un même substrat. A la fin de ce chapitre, une discussion de l'ensemble des résultats permet de définir des « scénarios » de l'étalement en fonction des propriétés physiques (tension superficielle, viscosité) du matériau et d'établir une relation entre la vitesse d'étalement de la matière et le diamètre d'étalement maximal.

Dans la quatrième partie, grâce à l'utilisation de divers moyens de caractérisations chimiques (XPS, FEG, EDS...), les efforts portent sur l'étude des réactions chimiques se produisant à l'échelle millimétrique lors de l'impact d'une particule sur un substrat. Pour étudier ces réactions à l'échelle micrométrique, il est nécessaire d'utiliser, pour découper les lamelles, des appareils possédant une résolution de l'ordre du micron, non disponibles au laboratoire. Dans ce travail, l'étude de l'interface pour les lamelles micrométriques n'est donc pas présentée.

En conclusion, le but principal de ce travail est de comprendre l'étalement de particules chaudes impactant différents types de substrats à deux échelles de taille de particules, en utilisant diverses techniques de métrologie, d'imagerie et d'analyse chimique.

Chapitre I : Etude bibliographique

I-1/ Introduction

L'objectif de cette thèse est de comprendre les phénomènes ayant lieu lors de la construction de la première couche d'un dépôt de lamelles à l'aide d'une torche à plasma d'arc. En effet, la cohésion et l'adhérence d'un dépôt sont fortement liées à la forme des lamelles qui peut varier de déchiquetée à circulaire.

Cette partie est consacrée, dans un premier temps, à la présentation du contexte de l'étude : la projection thermique. Elle rappelle tout d'abord le principe de fonctionnement de la torche à plasma puis les différents paramètres pouvant influencer la construction du dépôt. D'une façon générale, elle décrit le comportement d'un liquide sur une surface et les effets chimiques se produisant à la surface d'un substrat exposé à une atmosphère polluée et oxydante.

Dans un deuxième temps, sont introduites les différentes études antérieures ayant été développées sur les impacts de gouttes métalliques et céramiques. Il s'agit alors de décrire les différents moyens utilisés pour caractériser l'impact d'une goutte sur une surface aussi bien à l'échelle micrométrique qu'à l'échelle millimétrique. Une réflexion sur la comparaison de ces deux échelles est alors menée.

Pour conclure cet état de l'art, un résumé détaillé des principaux résultats est présenté.

I-2/ L'étalement de particule sur une surface.

Dans le cadre de la projection thermique, cette étude a été réalisée en utilisant des torches à plasma : sources thermiques permettant de fondre et projeter aussi bien des particules céramiques que des particules métalliques.

I-2.1 Principe de fonctionnement de la torche à plasma.

La projection par torche à plasma thermique consiste à introduire au sein d'un écoulement à haute température (8000-14000K) des particules solides de dimensions comprises entre 5 et 100 μm afin de les chauffer et de les accélérer.

Les torches les plus utilisées pour la projection plasma sont constituées d'une cathode en forme de pointe et d'une anode concentrique (Voir Figure I-1) Les gaz, servant à générer le plasma, ou gaz plasmagènes, circulent entre ces deux composants, l'anode jouant le rôle de

tuyère [41]. La cathode permet de fournir des électrons qui sont collectés par l'anode afin de créer un arc électrique, qui permet, grâce aux collisions élastiques et inélastiques entre les électrons et les molécules du gaz, de le chauffer et de l'ioniser [41].

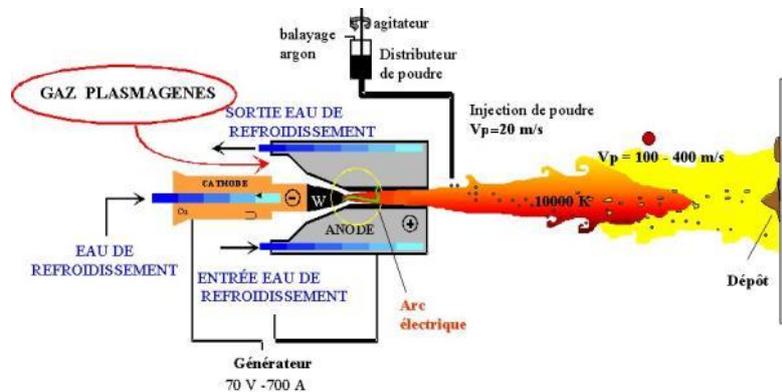


Figure I-1 : Principe de la torche à plasma [188]

Les particules solides injectées dans le jet plasma, sont fortement accélérées et fondues ou partiellement fondues. Les gouttelettes obtenues sont recueillies sur un support (ou substrat) préalablement préparé. Du fait de leur vitesse (de 100 à 400 m/s), les gouttelettes s'étalent pour former des lamelles circulaires ou déchiquetées. Du fait de la concentration en particules et de la cinétique de refroidissement des lamelles (de 1 à quelques μ s), chaque particule impacte sur une lamelle déjà solidifiée. L'impact successif des particules forme alors un dépôt lamellaire. La cohésion du dépôt est donc fortement liée à l'adhésion de la particule sur la particule précédente mais également de la particule sur le substrat. La préparation du substrat est donc primordiale pour obtenir un dépôt le plus adhérent possible [41].

I-2.2 Origines des imperfections d'un dépôt obtenu par plasma thermique.

Le dépôt formé possède une structure lamellaire avec des propriétés différentes de celle du matériau massif. Son épaisseur est généralement comprise entre 50 μ m et quelques millimètres. Les particules sont introduites au sein du plasma, en utilisant un gaz porteur. Pour obtenir une injection de particules au cœur du plasma et donc un traitement optimal de la poudre, il faut que la force d'injection des particules soit proche de celle qui leur est imposée par le plasma. Plus le diamètre de la particule est petit, plus l'accélération apportée par le gaz porteur doit être importante. Au-delà d'un débit donné, le gaz porteur perturbe le plasma. La pratique a montré que les particules en deçà de 5-10 μ m ne pouvaient pas être injectées à

l'aide d'un gaz porteur, du fait d'un trop grand débit de ce dernier perturbant très fortement le jet plasma.[42][43][44]

Lorsque l'on projette une poudre par projection plasma, sa granulométrie est souvent large (par exemple : +5 μm ; -25 μm), ce qui en masse représente un rapport de 125. Et du fait des collisions des particules entre elles et avec les parois de l'injecteur, le jet obtenu diverge en sortie de l'injecteur. Le traitement des poudres dépendant de leurs trajectoires ne peut donc pas être homogène. Par exemple, les particules en périphérie du jet plasma auront tendance à être moins bien fondues voir n'être pas fondues. Or une partie de ces infondues va tout de même se retrouver dans le dépôt et provoquer des défauts [172].

Par ailleurs, dans le cas de particules métalliques, projetées à l'air qui est entraîné dans l'écoulement plasma, une couche d'oxyde se développe en périphérie des particules lors de leur séjour au sein du plasma. La mouillabilité de la goutte à l'impact peut être fortement perturbée par les réactions chimiques sur sa surface [45]. Pour limiter ce phénomène, il est alors nécessaire de réaliser le dépôt des lamelles (ou « tir » dans la suite du manuscrit), sous atmosphère contrôlée.

Cependant, la qualité d'un dépôt ne repose pas uniquement sur le traitement thermique des particules. En effet, l'état du substrat conditionne la forme de la lamelle (déchiquetée ou circulaire) et donc l'homogénéité du dépôt. L'étude des phénomènes induits lors de l'étalement d'une particule est donc nécessaire.

I-2.3 Adhérence d'une lamelle provenant de l'étalement d'une particule fondue sur un substrat.

L'adhérence et la cohésion d'un dépôt sont des propriétés vraiment importantes : un dépôt ne protégera jamais un substrat s'il n'est pas adhérent ou s'il possède de nombreuses fractures ou délaminations. Généralement, les différents types d'adhésion rencontrés en projection plasma sont de type métallique, chimique, ou mécanique. Ces différents types d'adhésion dépendent de nombreux critères tels que la nature, la taille et la morphologie du matériau à projeter ou aussi de la morphologie du substrat [172].

I-2.3.1 Adhésion métallique

Ce type d'adhésion se rencontre pour les métaux et les alliages et ne peut avoir lieu que lorsque la température est suffisamment haute (le coefficient de diffusion variant comme

$\exp(-E_a/kT)$ où E_a est l'énergie d'activation, T la température et k le coefficient de Boltzmann) et s'il n'existe pas de couche d'oxyde à la surface du substrat ou de la particule. L'adhésion métallique ne peut donc avoir lieu que lors d'un dépôt réalisé sous atmosphère contrôlée et pour un substrat maintenu à une température suffisamment élevée (par exemple 900°C pour un superalliage), pour que la diffusion se produise.

I-2.3.2 Adhésion chimique

L'adhésion chimique requière que la particule fonde le substrat lors de l'impact (diffusivité de la particule doit donc être supérieure à celle du substrat), mais également qu'un composé chimique avec les deux liquides existe. C'est par exemple le cas lorsqu'une particule de molybdène (Mo) impacte sur un acier : la température de fusion et la diffusivité de la particule de Mo étant supérieure à celle du fer, ce dernier devient alors localement liquide et permet de former le composé MoFe_2 .

I-2.3.3 Adhésion mécanique

Ce type d'adhésion se produit lorsque le substrat est rugueux, par exemple après sablage. Cette adhésion dépend de nombreux paramètres comme l'amplitude de la rugosité, souvent caractérisée par R_a et R_t (la distance entre le pic le plus haut et la vallée la plus profonde) mais également par l'espace entre les pics et les vallées. En effet, Bahbou et Nylen ont établi qu'une corrélation existe entre l'adhésion d'un dépôt de NiAl (5% en masse) sur un substrat de $\text{Ti}_6\text{Al}_4\text{V}$ et la valeur de l'écart type $R_{\Delta q}$. Ce facteur permet de prendre en compte directement l'amplitude et l'espace des pics [148]. La corrélation n'est pas optimale lorsque seuls sont considérés les R_a , R_t , ou l'espace entre les pics.

I-2.4 Comportement d'un liquide sur une surface

Un liquide, quel qu'il soit, peut être soumis à différents phénomènes physiques dûs au fluide lui-même ou aux transferts thermiques entre le fluide et la matière sur laquelle il repose. Afin de simplifier les notions, dans un premier temps les forces présentes dans le système sont rappelées, puis, les phénomènes de mouillage et de démouillage d'une goutte sur une surface sont introduits.

I-2.4.1 Bilan des forces

L'étalement d'une goutte sur une surface est contrôlé par diverses forces qui sont d'une part, intrinsèques au matériau composant la goutte, ce sont les forces de tension

superficielle, et de viscosité, et d'autre part, les forces extérieures, pesanteurs et frottements qui jouent un rôle sur la dissipation des forces intrinsèques à la goutte.

I-2.4.2 Définition de la mouillabilité d'un liquide sur une surface

a) Description du phénomène

Lorsqu'une goutte liquide est déposée sur une surface solide, du fait des tensions interfaciales des espèces en présence, un angle Θ apparaît entre la goutte et le substrat. Cet angle est appelé angle de contact [104].

b) Influence de la rugosité

Dans les cas réels, la surface du substrat présente des défauts de nature chimique ou physique qui conduisent à l'apparition d'un hystérésis de l'angle de contact. En effet, la valeur de cet angle peut varier entre un angle d'avancée noté θ_a et un angle de reculée noté θ_r . Les premières observations de l'hystérésis sur des substrats de rugosités différentes sont dues à Dettre et Johnson (1964) [45]. Sur la Figure I-2 sont présentées les valeurs des bornes de l'angle de contact en fonction de la rugosité r du substrat. Deux comportements peuvent être distingués selon la valeur de la rugosité r .

Lorsque la rugosité est faible, θ_a augmente régulièrement avec R_a alors que θ_r diminue. Pour une valeur seuil de rugosité, les deux angles passent de façon discontinue à une valeur très élevée. Cette transition peut être due à la présence de poches d'air sous la goutte du fait de la trop grande rugosité du substrat. Au-delà, l'hystérésis diminue jusqu'à quasiment confondre les valeurs des angles de reculée et d'avancée ce qui n'est obtenu que dans le cas des surfaces très lisses. La rugosité joue donc un rôle prépondérant sur le phénomène de mouillage.

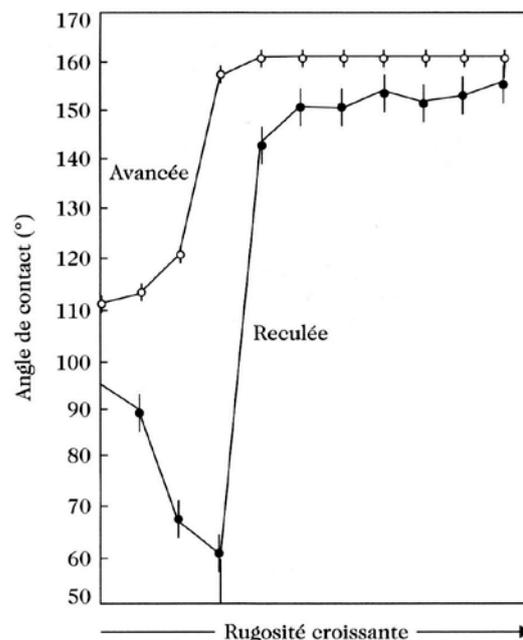


Figure I-2 : Angle de contact d'avancée et de reculée suivant la rugosité du substrat [45]

I-2.4.3 Présentation du phénomène de démouillage d'un film étalé sur une surface.

Le démouillage est le retrait spontané d'un film liquide d'une surface. Comme c'est le cas de l'eau sur une surface hydrophobe. Sur le plan fondamental, le mécanisme de démouillage se réalise avec l'apparition de zones sèches qui vont croître au cours du temps. Il existe deux grands types de démouillage :

Le premier, appelé démouillage visqueux, intervient lorsque les effets inertiels sont négligeables. La dynamique du démouillage est contrôlée par un transfert d'énergies de surface et de gravité en dissipation visqueuse.

Le deuxième type de démouillage, appelé démouillage inertiel, intervient lorsque le film recule à plus grande vitesse (10 cm/s) [152]. La dynamique est alors contrôlée par un transfert d'énergie superficielle en énergie cinétique du liquide.

Pour distinguer les deux types de démouillage, il est nécessaire de calculer le nombre de Reynolds qui permet de comparer inertie et viscosité. Ce nombre s'écrit :

$$Re = \rho V \ell / \mu \quad \text{Eqn. I-1}$$

Où ρ est la masse volumique du fluide, μ la viscosité du fluide considéré, v la vitesse de recul du bourrelet, et ℓ sa longueur

Si $Re \gg 1 \Rightarrow$ Démouillage inertiel

Si $Re \ll 1 \Rightarrow$ Démouillage visqueux

I-2.4.4 Phénomènes d'instabilités rencontrés au sein d'un liquide en phase d'étalement.

Lorsque la goutte s'étale sur la surface, les phénomènes précédemment décrits vont rentrer en jeu, ce qui va perturber le liquide [101]. Une des instabilités la plus citée est celle de Rayleigh Taylor qui se produit lors d'une perturbation aux frontières du liquide. Cette instabilité peut être contrôlée par les forces de tension de surface.

Dans le cas de l'impact d'une goutte de diamètre millimétrique, Allen [46] suggère que la décélération de l'interface de la goutte au contact avec le substrat crée une instabilité de

Rayleigh Taylor. Mundo et al [47] suggèrent que l'instabilité apparaît lorsque l'énergie de la goutte, juste avant l'impact, dépasse l'énergie qui peut être dissipée par viscosité pendant l'étalement.

I-2.4.5 Conclusion

Dans ce paragraphe, les principaux phénomènes se produisant au sein d'un liquide étalé sur un substrat ont été rappelés. Les phénomènes présentés sont donc principalement liés aux phénomènes de tension superficielle et de viscosité. Les notions de mouillage et de démouillage ont également été détaillées. Ces dernières notions sont directement liées à l'état de surface du substrat, comme la rugosité. Cependant, la surface d'un substrat peut présenter, selon l'atmosphère dans lequel il se trouve, différentes configurations. Il est donc nécessaire de présenter les phénomènes chimiques ayant lieu à sa surface car ceux-ci peuvent modifier le mouillage, qui est alors qualifié de mouillage chimique.

I-2.5 Modifications de l'état de surface d'un substrat soumis à une atmosphère polluée et oxydante.

I-2.5.1 Adsorption d'espèces en surface

L'adsorption physique ou physisorption met en jeu des liaisons faibles, du type forces de Van Der Waal, analogues à celles qui sont impliquées lors d'une liquéfaction. Elle se produit bien avant que le gaz n'atteigne une pression égale à sa pression de vapeur saturante, à des températures assez basses et voisines du point d'ébullition de la phase adsorbée. Elle est en général, réversible et comparable au dépôt de buée sur une paroi froide. L'équilibre est obtenu lorsque les vitesses d'évaporation et de condensation sont égales. L'adsorption physique est donc favorisée par une baisse de la température.

Dans d'autres cas, l'adsorption met en jeu des énergies de liaison importantes. Il s'agit alors d'adsorption chimique ou chimisorption. L'adsorption chimique s'accompagne d'une profonde modification de la répartition des charges électroniques des molécules adsorbées. Les forces mises en jeu sont du même type que celles qui sont impliquées lors de la formation des liaisons chimiques. Le phénomène d'adsorption constitue également la première étape des réactions nécessitant l'emploi d'un catalyseur solide. Ce phénomène peut alors jouer un rôle majoritaire dans la cinétique de la réaction chimique. Le phénomène inverse de l'adsorption s'appelle la désorption et est activé thermiquement.

I-2.5.2 Oxydation des surfaces

Lorsqu'un métal est introduit dans une atmosphère oxydante, il se produit une réaction d'oxydation entre le métal noté M et le gaz oxydant. Un gaz est dit oxydant lorsqu'il va capter une partie des électrons du métal suivant la réaction électrochimique suivante :



Suivant l'espèce oxydante, l'espèce ionique peut être solvatée, hydratée (cas d'un milieu aqueux) ou donner naissance à une (ou plusieurs) nouvelle(s) phase(s) solide(s) qui va (vont) se former à la surface du métal. Ce dernier cas se produira, la plupart du temps, lorsqu'un métal se trouve dans l'air ambiant.

Cependant, une fois la réaction d'oxydation démarrée, elle peut, suivant la phase solide produite, être plus ou moins ralentie. En effet, suivant le caractère protecteur de la couche (pouvoir couvrant, absence de fissures et de porosités ouvertes, adhérente ou non), le métal va être plus ou moins en contact direct avec le gaz oxydant. Et même dans le cas d'un oxyde très protecteur, la réaction d'oxydation se poursuit en étant assurée par le transport d'ions à travers l'oxyde par l'intermédiaire des défauts atomiques. Donc, suivant les caractéristiques structurales et les propriétés physiques et mécaniques de l'oxyde, la réaction d'oxydation a lieu plus ou moins rapidement. Ce phénomène est appelé cinétique de réaction.

Une fois les toutes premières couches d'oxydes formées, la diffusion est considérée comme l'étape limitante. Or les phénomènes de diffusion sont activés thermiquement, c'est-à-dire que la vitesse de réaction augmente avec la température. Pour un temps de réaction donné, l'épaisseur de la couche d'oxyde est plus importante si la température est plus élevée (loi d'Arrhenius). Il est donc nécessaire de prendre en compte la durée et la température des traitements thermiques en atmosphère oxydante pour contrôler l'épaisseur de la couche d'oxyde.

I-2.5.3 Conclusion

Un substrat en milieu pollué et oxydant est donc soumis à différents phénomènes comme l'adsorption d'espèces à sa surface et l'oxydation de sa surface privilégiée par une augmentation de la température.

Dans le cas de la projection thermique, quels sont les effets produits par de tels phénomènes sur la dynamique d'étalement des particules ? En effet, dans ce cas précis,

l'échantillon est soumis à des températures élevées, et ce, dans une atmosphère qui est, la plupart du temps oxydante.

Il faut présenter maintenant les différents travaux réalisés dans le contexte de l'impact sur un substrat de particules fondues de tailles micrométrique et millimétriques

I-3/ Les différentes études antérieures

L'étude des phénomènes existant lors de l'étalement d'une goutte impactant une surface, a depuis longtemps intéressé de nombreuses équipes de recherche. Elles ont étudié les imprimantes dite à jet d'encre, la peinture au pistolet, l'impact des gouttes de pluie sur un pare-brise, ou encore et ce qui est le plus intéressant ici, l'impact d'une goutte liquide avec phénomène de solidification. Pour ce faire, différents dispositifs ont été développés afin de comprendre au mieux les phénomènes et ainsi permettre d'améliorer l'efficacité des dépôts.

Dans une première partie, sont présentés les moyens utilisés pour caractériser l'impact de la goutte sur la surface et, dans une seconde partie, sont résumés les principaux résultats.

I-3.1 Les moyens de caractérisation de l'impact

Les différents moyens d'étude utilisés pour caractériser l'étalement des particules, en projection thermique, se sont améliorés au fur et à mesure du développement d'appareils avec des temps de réponse de plus en plus courts et des techniques d'imagerie améliorées. En effet, historiquement, afin de comprendre le mécanisme de la construction du dépôt, les études ont porté sur la forme finale de la lamelle. Elles sont tournées ensuite vers la modélisation, et il fut nécessaire d'observer l'étalement des particules afin de confirmer les résultats donnés par le calcul. C'est à ce moment-là que l'étude des gouttes millimétriques s'est développée, pour comprendre l'effet des différents phénomènes intervenant lors de l'étalement.

Tout d'abord, sont présentés les différents moyens utilisés pour caractériser l'impact de gouttes de taille micrométrique, et ensuite, les techniques d'étude de gouttes millimétriques sont abordées. Puis pour finir, la validité d'une comparaison entre les deux échelles d'étalement est discutée.

I-3.1.1 Pour des particules de taille micrométrique

Les particules qui impactent sur le substrat ont un diamètre moyen de 15 à 40 μm , et la lamelle résultante a un diamètre de 4 à 6 fois celui de la particule initiale. La plupart des

études a porté sur des particules impactant des surfaces polies miroir ($R_a=0,06\mu\text{m}$) et pour différentes températures de substrat. Les surfaces rugueuses sont peu étudiées du fait des difficultés d'obtenir des images correctes (problèmes de profondeur de champ) [172]. Cependant, du fait de la faible taille des particules, le suivi de l'étalement des particules n'est accessible qu'avec des caméras avec une vitesse d'acquisition supérieure à 10 images/ μs , or la plus rapide qui existe actuellement prend au mieux une image par μs [117]. Le suivi de l'étalement n'est alors accessible que si des images sont prises à différents moments de l'étalement de la particule pour des particules différentes mais avec les mêmes paramètres de vol. Cependant, ce genre de technique est difficile à mettre en place. Les premières études ont donc porté sur l'observation de la morphologie des lamelles après leur impact. Les études suivantes ont montré qu'il existait une relation entre la température du substrat et la forme des lamelles. En effet, pour une certaine température de substrat, dépendant d'un couple particule / substrat, les lamelles obtenues se trouvent sous la forme d'un disque parfait.

Il est successivement étudié dans cette partie, les études réalisées en l'absence de métrologie puis celles mettant en œuvre un ensemble de diagnostics. Finalement, des exemples permettent de démontrer l'intérêt de l'imagerie pour comprendre l'étalement.

a) Etudes en l'absence de métrologie à l'impact

Sans moyen sophistiqué de suivi de l'étalement, les premières études ont porté sur l'observation de la morphologie finale de la lamelle en fonction des paramètres de projection. Kudinov [48] a montré qu'il existait diverses formes de lamelles (voir Figure I-3) suivant les paramètres de fonctionnement de la torche, mais sans se préoccuper de la température du substrat. Dans un second temps, des études menées par K.A. Roberts ont montré l'importance de l'observation plus précise de la forme de la lamelle, selon les paramètres du substrat [17]. Puis finalement, il a été montré par L. Bianchi que la microstructure et la morphologie de la lamelle évoluaient en fonction des paramètres de la particule projetée et de ceux du substrat [50][51][16].

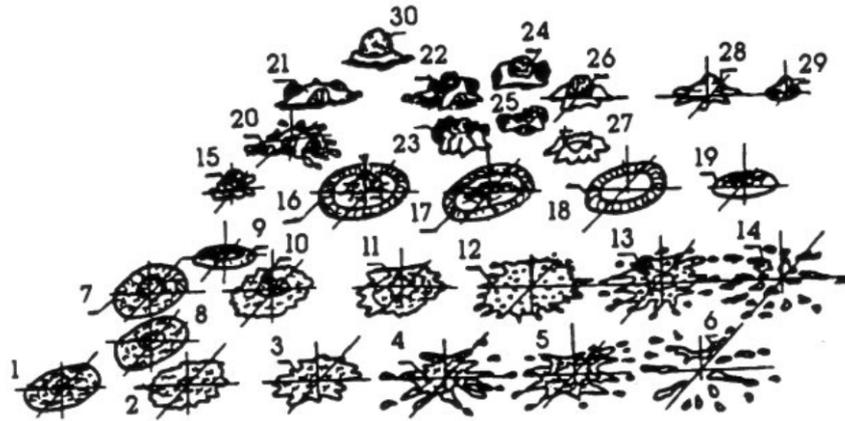


Figure I-3 : Morphologies de lamelles obtenues pour différentes conditions de projection [48]

Ces études portent sur une population de particules dont la vitesse et la température ne sont connues qu'en valeur moyenne. Connaître les paramètres d'impact d'une seule particule nécessite des dispositifs particuliers du fait de la taille de la particule (40 μm), de sa vitesse (100-300 m/s), et de la cinétique de refroidissement (10 μs).

b) Etudes associées à une métrologie de l'étalement

* Pyrométrie rapide

Le premier dispositif permettant de mesurer la température de la goutte pendant son étalement sur le substrat met en œuvre un pyromètre rapide identique à ceux utilisés pour mesurer la température « en vol » [150] [35]. La chaîne de détection possède un temps de réponse de 0,1 μs . Cela permet de remonter à l'histoire thermique de la particule avant et pendant son étalement. Un bouclier percé d'un trou situé sur le trajet des particules agit comme un diaphragme et diminue le nombre de particules impactant le substrat ainsi que les perturbations plasma au niveau de la pyrométrie. Pour connaître la vitesse des particules à l'impact, le dispositif a été amélioré en introduisant une seconde tête optique en amont du substrat permettant d'en déduire la vitesse de la particule (en calculant le retard entre les deux signaux pyrométriques) ainsi que la température de la particule en vol [99] [52] [167]. Avec l'aide de ces dispositifs, il est possible de remonter à la vitesse de trempe [49] [143] en fonction de sa vitesse et de sa température avant son impact. Les résultats obtenus ont alors permis d'en déduire des lois d'étalement [135-139] [142] [144] [147] [144]. Il est à noter que ce type de lois a été obtenu en considérant la forme finale de la lamelle, et ce, sans connaître sa formation.

* Imagerie rapide

Afin de combler la lacune du suivi de la formation de la lamelle, C. Escure et al [54-56] ont montré en 2003 qu'il était possible d'observer l'impact d'une particule micrométrique. Pour ce faire, un système d'imagerie a été couplé à un éclairage laser. Ces premières observations ont permis de mettre en évidence les phénomènes d'éclaboussures ayant lieu lors de l'impact de la particule.

Ceux-ci sont, d'après les auteurs, de deux sortes :

- Un premier type d'éjections a lieu à l'impact de la particule sur le substrat et est nommé « impact splashing ». Il correspond à des éjections quasi perpendiculaires au substrat.
- Un deuxième type d'éjections apparaît durant l'étalement de la particule, ce phénomène est appelé « flattening splashing » et semble correspondre à des éjections parallèles au substrat.

Cependant, les photographies d'Escure et al [54-56] ont été obtenues avec des temps d'exposition longs (~ ms). Les phénomènes décrits précédemment sont donc à considérer avec précaution car il est impossible de situer les événements dans le temps. En effet, la phase d'étalement d'une particule micrométrique est de l'ordre de la μs (AC Léger [52]).

Cependant, cette première étude a permis la mise en place, en 2004, de dispositif plus précis par, d'une part, Cedelle et al [37] et, d'autre part, par N.Z. Mehdizadeh et al [4]. Ces deux types de dispositifs complexes permettent de visualiser l'image de la particule à différents moments de l'étalement. Dans le cas du dispositif de Mehdizadeh [4], le système de visualisation repose sur le principe de l'ombroscopie, grâce à l'utilisation d'un laser impulsif déclenché (en parallèle avec une caméra) à différents moments de l'étalement. Il est donc nécessaire d'utiliser, ici, des substrats transparents. Ce qui n'est pas le cas du dispositif développé par Cedelle, [36] qui collecte directement le rayonnement émis par la particule. L'impact des particules peut donc être suivi sur de nombreux types de substrat mais à condition d'utiliser des matériaux projetés possédant un fort rayonnement lumineux. Mc Donald et al [57-59] ont alors repris le principe de ce dispositif en 2006, pour étudier l'impact de particules projetées par plasma sur des substrats métalliques.

En 2007, Shinoda et al [117] ont montré qu'il était possible de suivre de façon continue l'étalement d'une particule micrométrique grâce à l'utilisation d'une caméra ultra

rapide : une image/ μs et un temps d'exposition de 500 ns). Mais cette étude n'a pu être faite que pour une particule de zircone impactant un substrat froid.

c) Intérêts de l'imagerie

Dans cette partie, sont présentées les images obtenues sur différents substrats et pour différents matériaux. Le but ici n'est pas de conclure sur le processus d'étalement mais plutôt d'avoir une vue d'ensemble des études prenant en compte les images d'étalement ainsi que de présenter les propositions de mécanismes sur les phénomènes étudiés par les auteurs correspondants.

Dans un premier temps, les résultats obtenus avec des métaux (nickel et molybdène) sont présentés et dans un deuxième temps les images obtenues avec des céramiques (zircone). Ces trois matériaux sont actuellement les seuls à avoir été étudiés d'un point de vue imagerie à l'échelle de particules micrométriques.

* Cas des métaux : nickel et molybdène

Afin de mesurer l'évolution du diamètre au cours du temps, Gougeon et al [178] ont utilisé un pyromètre bichromatique rapide pour collecter l'émission lumineuse de la particule pendant l'impact. La difficulté de mesure du diamètre, avec ce type de dispositif, repose sur le fait que la particule peut refroidir pendant l'étalement diminuant l'augmentation du signal pyrométrique. Pour mesurer l'évolution de la taille de la lamelle, il est nécessaire d'éclairer la particule avec un rayonnement laser et de mesurer l'atténuation du faisceau durant l'impact de la goutte. Les résultats étaient présentés dans le cas de particules de molybdène impactant un substrat de verre à température ambiante. Il a alors été montré que la lamelle de molybdène atteint son maximum d'étalement en 2 μs . Par ailleurs, l'augmentation de diamètre était suivie d'une diminution du diamètre de la lamelle durant 2 à 3 μs [178].

Dans le but de déterminer la modification de la forme de la lamelle au cours du temps, N.Z. Mehdizadeh et al [4] ont développé un système permettant d'obtenir des images de l'étalement à différents moments (voir Figure I-4).

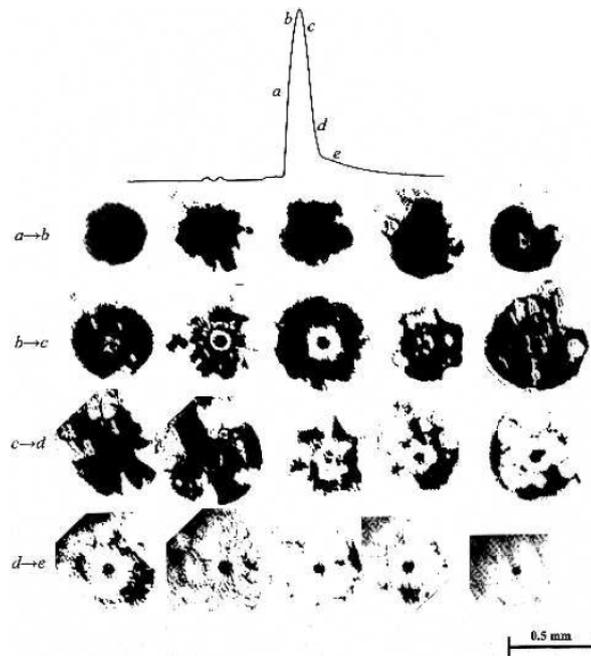


Figure I-4 : Photographie de l'étalement de particules de molybdène. Chaque ligne montre 5 photos correspondant approximativement au même temps. Les différents moments de déclenchement sont précisés par les labels de a à e [4]

Un capteur optique localisé juste avant le substrat permet de capter le rayonnement thermique de la particule de vol et ainsi de servir d'origine du temps. Un module permettant de retarder le déclenchement d'un laser impulsif (5 ns) en appliquant un délai (min 700 ns) par rapport au temps $t=0$ (détection de la particule) permet d'éclairer la particule à un moment précis de l'étalement. En faisant impacter différentes particules, il est alors possible de remonter à l'historique de l'étalement.

La Figure I-4 montre ces photos de l'étalement dans le cas d'une particule de molybdène impactant un substrat de verre à température ambiante. Le diamètre des particules est compris entre 30 et 50 μm , la vitesse d'impact entre 120 et 160 m/s et la température initiale de la goutte varie entre 3200 et 3700°C. Dans cette étude, deux types de sources ont été utilisés, une source laser pulsée (5 ns) et une source stroboscopique (8 μs).

Les photos montrent que les gouttes s'étalent de façon très rapide dans les premiers temps (environ 1 μs) pour former un film fin d'environ 0,5 μm d'épaisseur. Ce film est instable et se casse en de nombreux endroits. Une faible partie de la goutte reste attachée au substrat à l'endroit même de l'impact, alors que les autres parties se fragmentent et sortent de la zone de la lamelle. Le phénomène d'impact semble durer environ 2 μs . Le capteur optique enregistrant le rayonnement thermique de la particule indique une augmentation de l'intensité

lumineuse lors de l'expansion de la lamelle et la présence d'un maximum juste avant la rupture du film.

A la suite de cette étude, Mc Donald [57], a observé l'influence de l'oxydation sur l'étalement de la particule. Pour cela, les particules de nickel ont été projetées par torche à plasma sur des échantillons d'acier inoxydable. Ces échantillons sont préchauffés à différentes températures avant le tir et sont soit maintenus chauds, soit laissés à température ambiante pendant le tir. La vitesse moyenne des particules est de 70 m/s et la température moyenne est de 2130°C. Dans cette étude l'intérêt de l'imagerie repose sur la mesure du diamètre maximum de l'étalement. La Figure I-5 montre les images de l'impact de différentes particules sur des substrats préoxydés à différentes températures avant le tir et maintenus à température ambiante durant le tir.

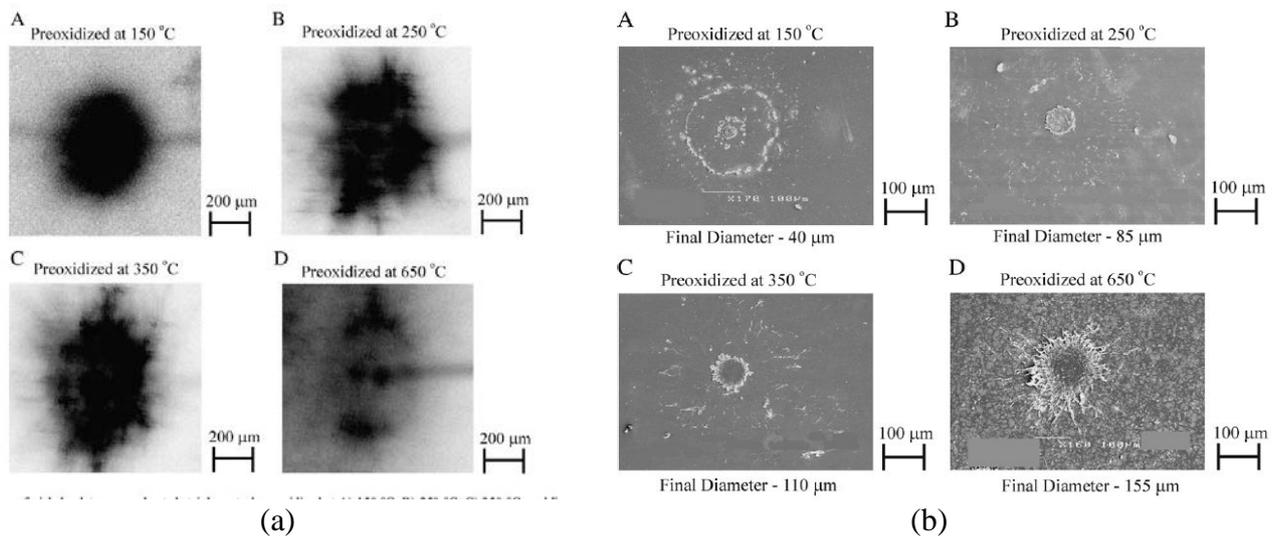


Figure I-5 : (a) Images de l'impact et (b) vues de la forme finale de la lamelle pour différentes températures de préchauffage, le tir est réalisé sur substrat froid [57]

Dans la Figure I-5 (a), la lamelle apparaît circulaire à l'étalement maximal pour une surface préoxydée à 150°C (cas A). La morphologie circulaire de cette lamelle est similaire à celle reportée dans le cas de l'impact de particules de molybdène [4]. Quand la température de préoxydation augmente, ce qui induit une augmentation de l'épaisseur de la couche d'oxyde, la morphologie de la lamelle à l'étalement maximal commence à devenir complètement désordonnée (Figure I-5 (a), cas B et D). Cela change radicalement la forme finale de la lamelle. Sur une surface préchauffée à 650 °C (cas D, Figure I-5 (a)), l'intensité de l'image de la lamelle est beaucoup plus faible indiquant un refroidissement beaucoup plus rapide que

dans les cas précédents. Cependant, il faut remarquer l'absence, ici, de lamelle en forme de disque homogène, les tirs étant réalisés à température ambiante.

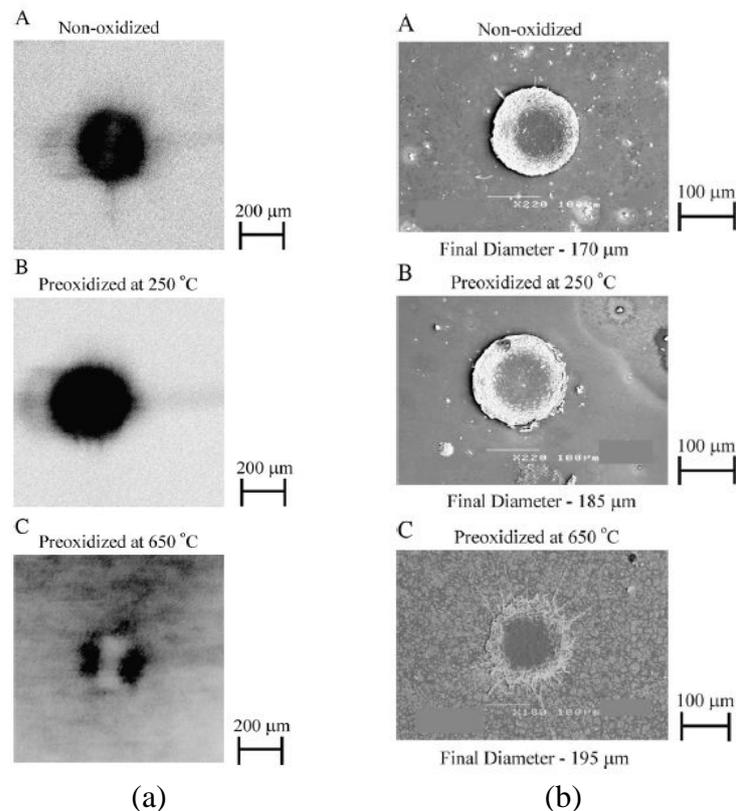


Figure I-6 : (a) Images de l'impact et (b) vues de la forme finale de la lamelle pour différentes températures de préchauffage, le tir est réalisé sur substrat chaud (350°C) [57]

La Figure I-6 montre les images de l'étalement des particules ainsi que la forme finale des lamelles obtenues sur des substrats inoxydables chauds. La Figure I-6 (cas A) montre le cas d'un substrat chauffé à 350°C, mais non préchauffé. La Figure I-6 (cas B et cas C) montre respectivement les cas d'un substrat préoxydé à 250°C et d'un autre à 650°C puis conservé à 350°C durant le tir. Les images de la Figure I-6 montrent que la morphologie des lamelles sur une surface maintenue chaude à 350°C est similaire : les lamelles sont circulaires ou assimilées à des disques avec quelques éjections en périphérie. Le degré d'oxydation d'avant tir ne paraît pas influencer de façon significative la forme de la lamelle.

* Cas des céramiques : zircon

Les études portant sur les particules céramiques et se servant de métrologie de l'étalement lors de l'impact sont très peu nombreuses.

Cedelle et al [181], en 2005, ont mené une étude afin de comprendre le phénomène de « splashing » à la suite des travaux présentés par C Escure [56]. Cette étude est réalisée sur des particules de zircone de diamètre compris entre 40 et 50 μm , et le substrat utilisé est un acier inoxydable 304 L poli miroir. Le substrat est non préchauffé.

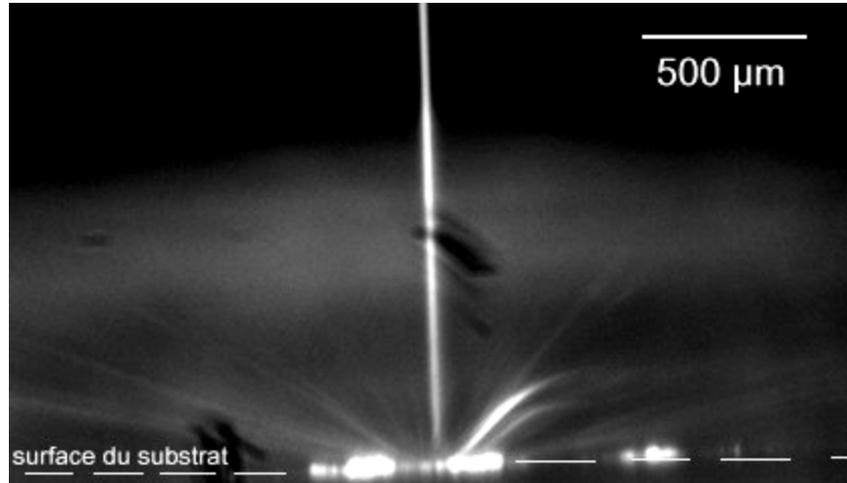


Figure I-7 : Trajectoire et impact d'une particule de zircone durant un temps d'exposition de 50 μs [181]

La Figure I-7 présente la trajectoire de la particule avant son impact, la zone d'impact et les éjections de matière dans diverses directions. Cependant, ce long temps d'exposition (50 μs) ne permet pas de réaliser une étude temporelle du phénomène, l'auteur a donc réalisé une exposition multiple du phénomène d'étalement. L'image obtenue est présentée sur la Figure I-8.

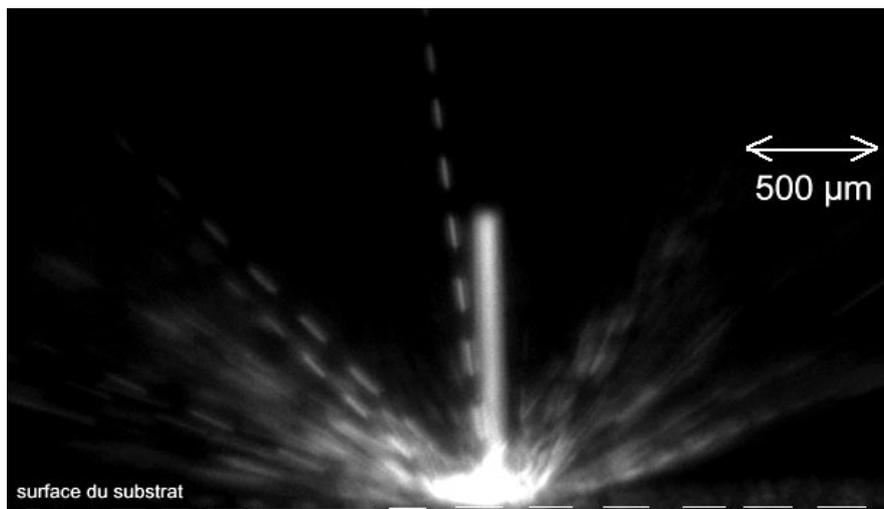


Figure I-8 : Trajectoire et impact d'une particule de zircone en configuration exposition multiple ; $t_{\text{exp}} = 50 \mu\text{s}$, (ouvert 5 μs , fermé 5 μs) [181]

Cette image, Figure I-8, est le résultat de la superposition de 10 images avec un temps d'ouverture de $5 \mu\text{s}$ et un délai de $5 \mu\text{s}$ entre chaque ouverture de caméra. L'image présente la trajectoire de la particule avant son impact (déclenchement $5 \mu\text{s}$ avant impact), la phase d'étalement et les différents types d'éjections de matière. Certaines éjections semblent provenir de la zone centrale, correspondant au point d'impact et présentent un angle de 45° par rapport à la surface du substrat. En connaissant les temps d'ouverture et de fermeture de la caméra, la vitesse moyenne de ces éjections a été estimée à 15-20 m/s pour cette particule possédant une vitesse à l'impact de 180 m/s. Les éjections de matière semblent donc beaucoup plus lentes que la particule incidente. En périphérie de la lamelle, il peut être remarqué la présence d'autres éjections, qui semblent posséder un angle proche de la surface du substrat. Ces observations ont donc amené l'auteur à différencier deux types de « splashing ».

Le premier nommé « impact splashing » apparaît dans les premiers instants de l'étalement (quelques centaines de nanosecondes) après l'impact. Et un deuxième nommé « flattening splashing » entre en jeu pendant la phase d'étalement de la lamelle.

Cependant, il est à noter que ces conclusions ont été déduites d'une visualisation unidirectionnelle. L'image de la caméra visant perpendiculairement le substrat n'a pas été présentée par l'auteur.

En 2007, Shinoda et al [117] ont étudié l'impact d'une poudre sphérique de zircone yttrée à 8 % massique (204C-NS, Sulzer Taylor) avec une répartition granulométrique comprise entre 45 et $53 \mu\text{m}$ et projetée par torche à plasma en utilisant une torche à courant continu classique. Les paramètres plasma sont les suivants : $\text{Ar/He} = 50/13$ SLM et le courant d'arc est de 800 A. Un substrat plat en quartz avec une épaisseur de 0,5 mm est utilisé. Le substrat reste à 20°C durant les expériences, le tir se fait donc sur un substrat froid. La Figure I-9 (a) montre la déformation et le refroidissement d'une particule, et ce, à l'aide d'une caméra ultra rapide. L'intervalle entre chaque image est de $1 \mu\text{s}$ et le temps d'exposition est de 500 ns.

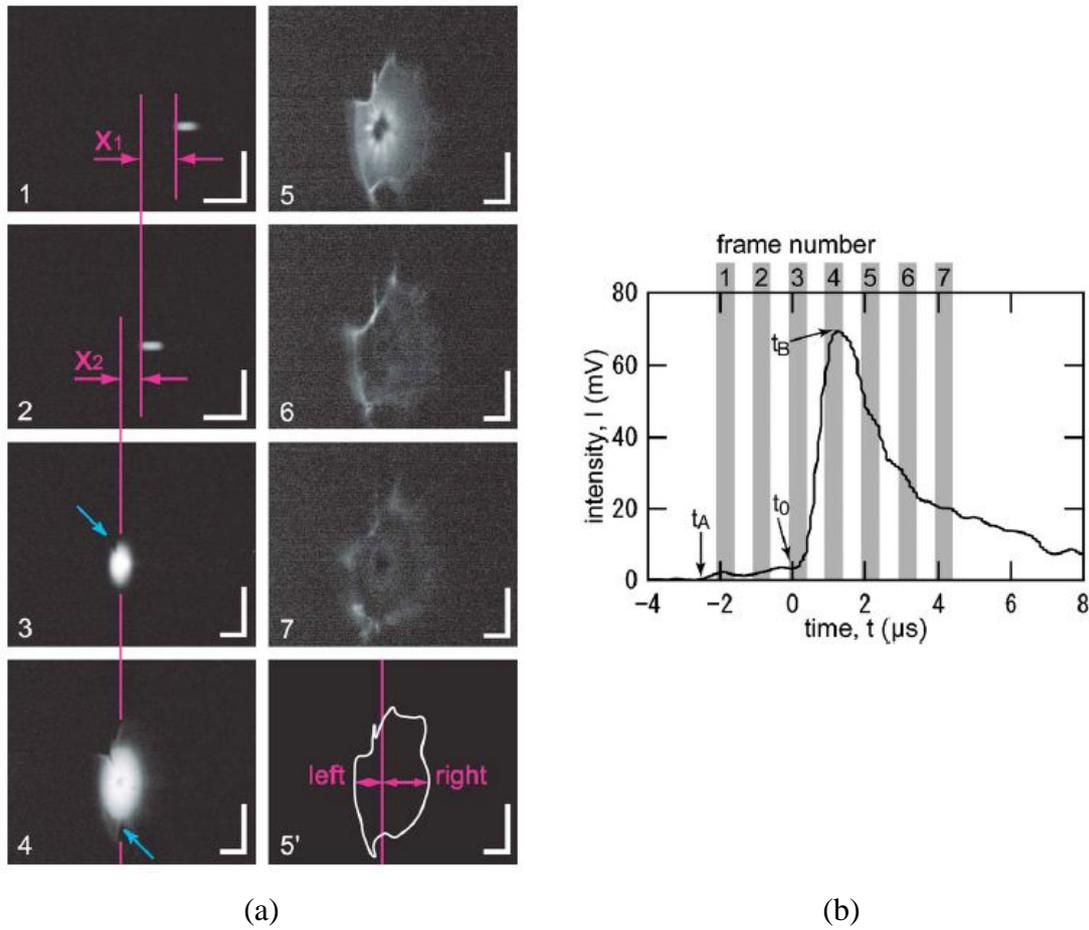


Figure I-9 : (a) Déformation et refroidissement d'une particule de zircone de taille micrométrique impactant un substrat d'acier inoxydable à température ambiante, (b) profil du rayonnement issu de la particule lors de l'étalement. [117]

Sur l'image 1 (Figure I-9), une particule entre dans le volume de mesure de la caméra par la droite et en direction de la gauche. Sur l'image 2, la goutte est encore « en vol » et impacte sur le substrat sur l'image 3. Dès que la goutte impacte, le liquide commence à s'étaler sur le substrat pour former une lamelle. A ce moment-là, la lamelle conserve sa forme de disque. Cependant une partie en périphérie commence à s'entailler, comme indiqué par la flèche sur l'image 3. Ensuite, le film étalé commence par se déformer légèrement, pendant que l'entaille continue à s'ouvrir sur l'image 4. A ce moment-là, d'autres entailles apparaissent de l'autre côté de la lamelle, comme indiqué par la flèche. Le centre de la lamelle commence alors à devenir plus sombre, ce qui indique un refroidissement plus rapide dans cette partie. Sur l'image 5, la lamelle continue à s'étaler sans se désintégrer. Afin de simplifier la compréhension, l'auteur de cette étude a tracé les bords de la lamelle de l'image 5 sur l'image 5'. D'après l'auteur, le côté droit de la lamelle est plus étalé que le côté gauche. Il souligne néanmoins que cette dissymétrie peut être induite par la position du substrat par

rapport à la caméra. Cependant, les bords de la lamelle ne sont plus en forme de disque, ce qui indique un film métastable. La zone noire dans la partie centrale montre clairement l'existence d'un gradient thermique au sein même de la lamelle. Finalement, l'auteur souligne la rupture possible du film au niveau de l'image 6. Ce qui conduit à l'obtention, sur l'image 7, d'un anneau entourant un reste de matière au centre de la lamelle.

A partir de l'image 2, le diamètre moyen de la particule est estimé à 50 μm . La vitesse de la particule calculée à partir du déplacement de la goutte entre l'image 1 et l'image 2 est égale à 170 m/s. Cependant, la température de la goutte n'étant pas accessible, l'auteur considère qu'elle se trouve à la fusion (3000K).

Sur la Figure I-9 (b) est présenté le profil du rayonnement thermique de la particule en cours d'étalement (filtré à 1000 nm). Ce profil a été enregistré en même temps que les images de la caméra, en considérant que le temps t_0 correspond au moment où la particule touche le substrat.

Dans un premier temps, l'intensité du signal augmente légèrement à t_A , quand la goutte rentre dans le champ du détecteur. L'intensité augmente ensuite très rapidement, au moment de l'impact (t_0) et durant la phase rapide d'étalement. Ensuite, la valeur maximale obtenue à t_B , est rapidement suivie d'une chute de signal, qui correspond au refroidissement de la lamelle mais également à la rupture du film. Par ailleurs, il faut souligner que l'intensité maximale ne correspond pas au moment de l'étalement maximal.

d) Conclusions

La présentation des différents moyens d'études du comportement à l'impact de particules de taille micrométrique a montré la nécessité d'avoir un dispositif particulier. Celui-ci doit permettre d'enregistrer le refroidissement de la particule avec la possibilité de déduire la résistance thermique de contact (à travers la vitesse de trempe), mais également de mesurer sa vitesse et d'observer sa dynamique d'étalement. Les mesures pyrométriques et de vitesses de particules permettent de donner des résultats quantitatifs. Mais l'imagerie, d'une façon générale, ne permet actuellement que d'avoir accès aux phénomènes globaux de l'étalement : contrôle de la présence ou non d'éjection, et estimation du temps correspondant au diamètre maximal d'étalement. Seulement une étude [117] a permis d'observer en direct la répartition de la matière sur la surface (présence d'un film et rupture de celui-ci en

périphérie). Il est donc nécessaire d'améliorer la qualité des images obtenues pour optimiser la compréhension des phénomènes.

Une des solutions actuelles, pour visualiser l'étalement, est de modéliser ces phénomènes. Cependant, il est indispensable de s'assurer que le modèle donne les résultats les plus réels possibles. Pour ce faire, l'étalement de la particule est observé à l'échelle millimétrique. Il est donc maintenant nécessaire d'étudier les dispositifs permettant de générer des particules de taille millimétrique.

I-3.1.2 Pour des particules de taille millimétrique

Les particules qui impactent sur le substrat ont un diamètre moyen de 3 mm, et la lamelle résultant à un diamètre de 15 mm. La majorité des études a porté sur des particules impactant des surfaces polies miroir ($R_a=0,06\mu\text{m}$) ou des échantillons texturés [60-65] [165][166][102][105] et pour différentes températures de substrat, afin de permettre de comprendre les phénomènes se produisant lors de l'impact de particules de taille micrométrique. En effet, grâce à l'augmentation de la taille de la particule, les phénomènes ne se produisent plus à la microseconde mais à la milliseconde. Ceci permet de se servir de caméras rapides prenant 4000 images/s. Cependant, du fait de la difficulté d'obtenir des gouttes de céramiques, la plupart des études a porté sur l'impact de particules métalliques, et le plus souvent, avec des faibles vitesses d'impact (3 à 5 ms).

Dans une première partie, sont présentés les différents systèmes pouvant être utilisés pour générer des gouttes de céramiques millimétriques. Puis, dans une seconde partie, sont décrits les systèmes générant des particules métalliques.

a) Cas des céramiques

Les dispositifs permettant l'obtention de gouttes d'alumine sont très peu nombreux et sont, la plupart du temps, utilisés pour caractériser les propriétés du matériau et non son comportement à l'impact. Ces systèmes sont les dispositifs à lévitation de goutte avec fusion par laser [134]. Un de ces dispositifs a été conçu afin de permettre d'étudier le phénomène d'impact mais malheureusement l'auteur s'est limité à étudier des faibles vitesses d'impact ($<1 \text{ m/s}$) [134].

b) Cas des métaux

Les dispositifs permettant d'obtenir des gouttes métalliques sont plus simples que dans le cas précédent. En effet, la température de fusion des métaux est beaucoup plus facilement atteinte et il est possible de transférer directement un arc électrique sur le fil métallique. De ce fait, les études portant sur ce sujet sont nombreuses [172]. L'un des premiers à avoir utilisé la métrologie pour observer l'étalement des particules métalliques suivant différentes conditions de substrat (préchauffé, rugueux (plus aucun problème de profondeur de champs) ...), afin de faire un parallèle avec la projection thermique, est Fukumoto en 2002 [145]. Il a observé l'impact de gouttes de nickel et de cuivre en ajustant la vitesse d'impact et la taille des gouttes, afin de conserver un parallèle avec l'échelle micrométrique. En effet, il a considéré qu'ajuster les nombres adimensionnels Reynolds et Peclet entre les deux échelles permettait d'obtenir les mêmes phénomènes. La vitesse d'impact est alors de 5 m/s et la taille de la goutte 3 mm. Cependant, ce type de système de chute libre arrive très vite à une vitesse maximale. En effet, la vitesse de la goutte est seulement pilotée par la distance entre sa zone de génération et sa zone d'impact ($v^2=2gh$). Or, plus la distance augmente, plus la taille de la zone d'impact de la particule est grande. Avec ce type de dispositif, il n'est donc pas possible d'obtenir la même énergie cinétique que lors de la projection plasma.

Afin de pouvoir augmenter la vitesse d'impact, il est nécessaire d'ajouter un dispositif annexe. C'est le cas pour l'étude de Dhiman et al [116] qui ont pu obtenir une vitesse d'impact variant entre 10 et 30 m/s. Pour obtenir de telles vitesses, ils ont utilisé un plateau rotatif afin de permettre d'augmenter la vitesse relative à l'impact. Leur système est ainsi composé d'un générateur automatique de gouttes d'étain fondues (0,6 mm de diamètre) et d'un capteur permettant de détecter la position du substrat en mouvement, et ainsi, par l'intermédiaire d'une unité de déclenchement, de synchroniser l'arrivée du substrat et de la goutte.

c) Conclusions

Dans ce paragraphe, les différents dispositifs utilisés pour générer des gouttes millimétriques métalliques et céramiques ont été présentés. Dans la plupart des cas, l'impact de la goutte sur le substrat a lieu à basse vitesse (entre 1 à 5 m/s). Un seul dispositif permet d'étudier l'impact sur une plage de vitesse plus importante (de 10 à 30 m/s). Mais dans ce dernier cas, le matériau utilisé est l'étain. Or, ce matériau est impossible à projeter par torche à plasma (température de fusion trop basse). Comparer les images obtenues aux deux échelles

n'est donc pas possible. Cela amène à s'interroger sur les possibilités de comparaison des impacts aux deux échelles d'étalement. Cette interrogation fait l'objet du paragraphe suivant.

I-3.1.3 Comparaison entre l'étalement à l'échelle micrométrique et à l'échelle millimétrique

a) Du point de vue hydrodynamique

Les nombres adimensionnels utilisés par Fukumoto pour caractériser l'impact sont le Reynolds et le Peclet. Or, le Reynolds, noté *Taylor*, représente de par sa définition même la prédominance du terme diffusif ou du terme convectif. Il caractérise donc deux types d'écoulement :

- l'écoulement laminaire, où les lignes de courant glissent les unes sur les autres en restant parallèles correspond à un nombre de Reynolds faible ($Re < 500$), et où la diffusion prédomine.

- l'écoulement turbulent, caractérisé entre autre par l'apparition de tourbillons, correspond à un nombre de Reynolds élevé ($Re > 2000$), et où la convection prédomine.

$$Re = \frac{\rho \cdot vD}{\mu} \quad \text{Eqn. I-2}$$

avec :

v : Vitesse ($m.s^{-1}$)

D : Dimension caractéristique (m)

ρ : Masse volumique ($kg.m^{-3}$)

μ : Viscosité (Pa.s)

Or, les paramètres pris en compte dans le calcul du nombre de Reynolds pour la comparaison millimétrique / micrométrique concernent la goutte « en vol » et non sur le substrat. Pour calculer le nombre de Reynolds de l'écoulement, il est donc nécessaire de connaître la vitesse du liquide sur la surface et l'épaisseur de la veine de fluide. Cela s'avère très difficile car s'il est possible d'avoir une idée de l'épaisseur de la lamelle à posteriori et de la vitesse durant la phase d'étalement en prenant en considération le temps pour obtenir l'étalement maximal, il n'est pas possible de connaître précisément l'épaisseur de matière qui se solidifie au contact du substrat. Par ailleurs, il est nécessaire de souligner le fait qu'à l'échelle micrométrique l'épaisseur de la couche limite entre la lamelle et le substrat est de l'ordre de l'épaisseur de la lamelle, alors qu'à l'échelle millimétrique, cette couche limite est négligeable par rapport à l'épaisseur de la lamelle.

Un autre nombre adimensionnel pouvant être utilisé pour caractériser l'impact est le nombre de Weber. Ce nombre caractérise la différence entre les forces inertielles et de capillarité et il est défini par l'expression suivante :

$$We = \frac{\rho \cdot v^2 D}{\sigma} \quad \text{Eqn. I-3}$$

avec :

v : Vitesse (m s⁻¹)

ρ : Masse volumique (kg m⁻³)

D : Dimension caractéristique (m)

σ : Tension superficielle (N m⁻¹)

Ce nombre prend en compte la vitesse au carré et peut donc être ainsi un moyen de comparaison, en termes d'énergie cinétique, à l'impact. Ce nombre est donc utilisé pour qualifier le processus d'éclaboussure selon l'expression :

$$K = We_o^{0,5} Re_o^{0,25} \quad \text{Eqn. I-4}$$

Le nombre K est appelé paramètre de Sommerfeld et si K > 57,7 (pour des gouttes d'eau, d'alcool...) le processus d'éclaboussure peut se produire [47]. Cependant, la valeur de transition de ce nombre, définie dans le cas de l'impact de gouttes d'eau sur un disque mobile à grande vitesse, n'est pas forcément transposable à une particule de céramique se solidifiant. De plus, ce nombre ne prend pas en compte l'état de surface, il est donc à considérer avec prudence.

Néanmoins, Fukumoto, conscient de la limite de la comparaison millimétrique / micrométrique en utilisant uniquement le nombre de Reynolds, a introduit un autre moyen de comparaison entre les deux échelles. Cette expression fondée sur une comparaison à iso Reynolds entre l'échelle millimétrique et micrométrique a permis de modifier l'expression de Sommerfeld en prenant en compte l'état du substrat à travers la vitesse d'étalement sur le substrat [100]. La nouvelle relation notée K_f est la suivante :

$$K_f = 0,5^{1,25} Re_o^{-0,3} K \quad \text{Eqn. I-5}$$

Où K est le paramètre de Sommerfeld

a est le rapport de la vitesse maximale d'étalement sur la vitesse d'impact

Re_o est le Reynolds de la particule avant impact

Ainsi, il peut être possible de comparer les phénomènes hydrodynamiques mais qu'en est-il des phénomènes thermiques entre les deux échelles ?

b) Phénomènes thermiques

Le nombre de Peclet permet de caractériser le transfert par convection par rapport au transfert par conduction. Il est équivalent au produit du nombre de Reynolds et du nombre de Prandtl dans le cas du transfert thermique. La conclusion est donc la même que pour le nombre de Reynolds, il est inutile de caractériser l'impact en utilisant les paramètres d'avant impact, s'il faut étudier l'influence de l'état de surface.

Le nombre de Prandtl (Pr) représente le rapport entre la diffusivité de quantité de mouvement ν (ou viscosité cinématique) et la diffusivité thermique (α). Il est défini de la manière suivante :

$$\text{Pr} = \frac{\mu C_p}{\lambda} = \frac{\nu}{\alpha} \quad \text{Eqn. I-6}$$

Il permet de savoir si un écoulement est plutôt régi par les forces hydrodynamiques (fort Prandtl) ou plutôt par les gradients de température au sein du liquide (faible Prandtl).

Par contre, il existe un nombre adimensionnel pouvant comparer les gouttes avant impact : c'est le nombre de Biot. Le nombre de Biot (Bi) est un nombre sans dimension utilisé dans les calculs de transfert thermique en phase transitoire. Il compare les transferts thermiques à l'intérieur et à la surface d'un corps. Il est défini de la manière suivante :

$$\text{Bi} = \frac{hD}{\lambda} \quad \text{Eqn. I-7}$$

Avec : h : Coefficient global de transfert thermique ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$)

D : Dimension caractéristique (m)

λ : Conductivité thermique du matériau ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

La dimension caractéristique du nombre de Biot est habituellement définie par le rapport du volume du corps et de sa surface.

Des valeurs du nombre de Biot supérieures à 1 signifient que la conduction de la chaleur à l'intérieur du corps est plus lente qu'à sa surface, et que les gradients de température sont non négligeables au sein du corps. Si le nombre de Biot d'un système est petit devant 1 ($\text{Bi} < 0,1$), cela signifie que la résistance interne est négligeable, et donc que la température peut être considérée comme uniforme à l'intérieur du corps. Ce nombre peut servir à comparer, entre les deux échelles de taille de particule, l'épaisseur de la couche solidifiée en

périphérie de la goutte. Mais il est alors nécessaire de calculer le coefficient de transfert de chaleur (h).

I-3.1.4 Conclusions

Faire un parallèle entre l'échelle millimétrique et l'échelle micrométrique peut être intéressant afin de comprendre les phénomènes, mais il ne faut pas perdre de vue les différences pouvant exister entre les deux échelles. Dans le cadre des études précédentes, la comparaison entre les deux échelles d'étalement n'a pas été réalisée entièrement (aucune comparaison entre les images d'étalement). La seule hypothèse permettant de lier les deux échelles est de conserver les mêmes nombres adimensionnels (Re_o et Pe_o). Il apparaît nécessaire de réaliser une étude sur la validité d'une telle comparaison. Pour cela, il est nécessaire de développer un procédé permettant d'étudier l'impact de divers matériaux sur une plage de vitesse étendue.

Dans la partie suivante, est présenté le résumé des principaux résultats bibliographiques obtenus en considérant une seule échelle d'étalement ou les deux. Les résultats sont regroupés par thème et non par méthode d'étude.

I-3.2 Résumés des principaux résultats.

Lorsqu'une particule impacte sur un substrat, un nombre important de paramètres va modifier son étalement.[66-76] [169-172] [158-163] [126] [118] [120] [128] [149]. Ces différents paramètres sont résumés sur la Figure I-10.

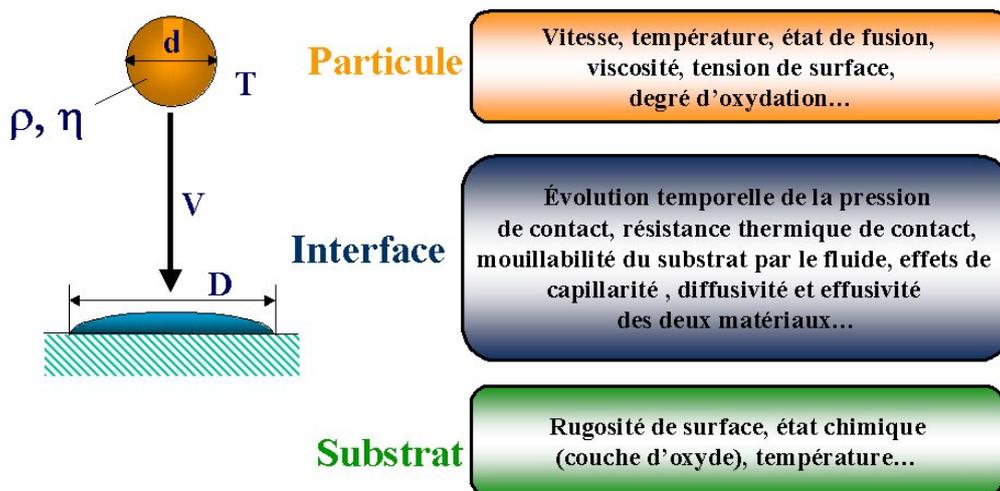


Figure I-10 : Principaux paramètres influençant l'étalement d'une goutte sur un substrat [181]

Dans une première partie sont présentés les phénomènes physiques, puis dans une seconde, les phénomènes chimiques. Cela sert à décrire les différentes situations rencontrées dans le cas de l'impact d'une particule sur une surface.

I-3.2.1 Phénomènes physiques

Dans cette partie, il est question de décrire les phénomènes physiques (thermique et hydrodynamique) intervenant lors de l'impact de la goutte. Il est exposé l'influence de la résistance thermique de contact et de l'oxydation de surface sur l'étalement de la particule.

a) Désorption des espèces présentes en surface

De nombreuses études concernent l'influence des adsorbats et des condensats à la surface du substrat sur la morphologie de la lamelle [77-81]. Pour étudier l'effet des adsorbats sur la morphologie des lamelles, une fine couche de composés organiques (xylène, glycol, et glycérol) a été déposée sur des échantillons d'acier inoxydable polis [78]. Le substrat a été préchauffé puis les auteurs ont projeté des particules d'aluminium, de nickel, d'alumine et de cuivre. Li et al [78] ont obtenu des lamelles, sous forme de disque, lorsque le substrat était préchauffé 50°C au-dessus de la température d'ébullition du composé déposé préalablement. A l'opposé, des lamelles déchiquetées étaient obtenues pour une température de préchauffage en dessous de la température d'ébullition des composés déposés à la surface du substrat. Ainsi Li et al concluent en indiquant que l'évaporation de la couche organique durant l'étalement de la particule sur le substrat induit le phénomène d'éjection de matière. Le chauffage induit la désorption des adsorbats et des condensats à la surface du substrat, limitant le contact entre la goutte et le substrat. Durant l'étalement de la goutte, les vapeurs des espèces adsorbées passent à travers la couche liquide et entraînent la fragmentation de la lamelle [78]. Les traitements thermiques avant le tir peuvent enlever les adsorbats et condensats. Cela permet une augmentation du contact entre le substrat et la lamelle et une amélioration de la formation de la lamelle en forme de disque [29]. Cependant, la plupart des substrats ne sont pas contaminés par du xylène, glycol ou du glycérol. Les questions sont donc : Quels sont les types d'adsorbats et de condensats se trouvant à la surface du substrat ? Et à quelle température le processus de désorption se produit-il ?

Jiang et al en 2001 [77] ont alors fait varier le taux d'adsorbats à la surface du substrat en conservant tous les autres paramètres identiques. Leurs résultats ont montré la dépendance entre le taux d'adsorbats à la surface et la forme de la lamelle.

b) Effet de la rugosité de surface du substrat

La rugosité de surface peut être évaluée selon deux paramètres : la moyenne arithmétique de la rugosité (R_a) et le skewness (S_k). R_a représente la distance entre la surface et la ligne moyenne de rugosité, mais ne permet pas de discriminer vraiment bien la répartition des pics et des vallées. Le skewness est utilisé pour mesurer le degré d'asymétrie de la surface.

Il a été trouvé, dans de nombreux cas, qu'une augmentation dans la rugosité de surface des substrats améliore l'adhésion à travers la liaison mécanique lamelle / pics [82]. Mais l'augmentation de la rugosité de surface par sablage n'est pas l'unique façon de contrôler la formation de la lamelle. Le préchauffage du substrat va lui aussi modifier la topographie de surface. Dans le cas de substrat sablé et préchauffé, Christoulis et al [149] ont montré, en étudiant la structure colonnaire due au refroidissement de la matière, que l'épaisseur moyenne des colonnes augmentait avec la rugosité, impliquant une diminution de la vitesse de refroidissement.

De nombreux débats subsistent au sujet de l'effet de la rugosité de surface induite par le traitement thermique du substrat sur la formation de la lamelle et sa morphologie. Cedelle et al [37] ont confirmé que la formation de lamelles de cuivre, nickel et zircon sur des substrats d'acier inoxydable (304L) était améliorée par le traitement thermique des substrats. Il a été montré que la valeur du skewness de la rugosité de surface passait du négatif au positif avec le préchauffage. Ainsi, Cedelle et al [37] en ont déduit que la modification du skewness influençait la forme de la lamelle. Ces conclusions ont été confirmées par Fukumoto et al qui ont étudiés la formation de lamelle de cuivre sur des substrats en acier inoxydable (304L) [170]. Fukumoto et al [86] proposent que l'augmentation de la rugosité à l'échelle nanométrique par traitement thermique améliore la mouillabilité de la lamelle sur le substrat, et donc permet d'obtenir des lamelles en forme de disque. Dans cette même étude, aucun changement dans la composition chimique n'a été détecté, confirmant l'influence importante de la rugosité de surface, plus que la chimie de surface, sur la morphologie de la lamelle.

Pourtant, les études suivantes [86][120] suggèrent que la rugosité nanométrique n'est pas un facteur majoritaire. En effet, le préchauffage d'un substrat d'or a permis de modifier sa rugosité, mais la forme des lamelles est restée inchangée. De plus, Mc Donald et al [57] ont préchauffé à différentes températures des substrats d'acier inoxydable et déposé dessus des particules de nickel. Le premier lot d'échantillons a été préchauffé à différentes températures

(250°C ou 650°C) et ensuite refroidi par air jusqu'à la température ambiante avant le tir. L'autre lot a également été chauffé à 250°C et 650°C, refroidi par air, mais il a été réchauffé et maintenu à 350°C durant le tir. Ils ont montré qu'il n'y avait pas de changement radical dans la rugosité de surface entre les deux lots d'échantillons. Et cependant, la morphologie des lamelles a radicalement changé, de déchiquetées pour les échantillons à température ambiante, à circulaires pour le substrat maintenu à 350 °C. Ainsi, ils en ont déduit que la rugosité de surface n'était pas, dans ce cas, un paramètre majoritaire sur la formation de la lamelle, et ont plutôt insisté sur l'effet induit par les adsorbats et condensats présents en surface de l'échantillon.

c) Résistance thermique de contact

La résistance thermique de contact est un phénomène physique limitant le transfert de l'énergie thermique de la particule en direction du substrat.

Dhiman [132] a introduit une relation afin de prédire la forme de la lamelle en fonction des conditions intrinsèques du matériau projeté, ainsi que celles du substrat, mais aussi en fonction du contact entre la lamelle et le substrat, en considérant la résistance thermique de contact. Cette relation est bien plus performante que le paramètre de Sommerfeld, permettant de prédire la présence ou non de « splashing » à l'impact mais qui ne prend en compte que les caractéristiques de la goutte incidente et non celles du substrat. La faiblesse de la relation de Dhiman repose sur la résistance thermique de contact. En effet, cette résistance est quasiment impossible à mesurer à l'échelle de la lamelle. Il faudrait, pour cela, déposer une sonde de température dans les toutes premières couches du substrat exactement à l'endroit où la particule impacte. Cette sonde devrait avoir un taux de réponse inférieure à 0,1µs ! Donc actuellement la seule méthode efficace est de modéliser le transfert thermique entre la goutte et le substrat afin d'en déduire la valeur de la résistance thermique de contact [83-85] [106] [127] [151] [173-180]. Cependant, la résistance thermique de contact devrait être considérée comme dépendante du temps et variable le long du rayon de la lamelle.

I-3.2.2 Phénomènes chimiques

a) Phénomènes chimiques liés au substrat

Tous les métaux sont recouverts d'une couche d'oxyde de composition et d'épaisseur différente, dépendant fortement de l'environnement, des prétraitements et d'une variété

d'autres paramètres. Le chauffage du substrat produit des changements dans la composition de cet oxyde mais entraîne également la suppression des gaz provenant du substrat [86-88]. L'énergie thermique peut aussi induire une ségrégation en surface d'autres éléments du fait des différences de mobilité des espèces dans le matériau et à travers la couche d'oxyde [124]. Ainsi, la notion de température de transition, au-delà de laquelle la lamelle tend à devenir circulaire, serait liée à la chimie de surface dépendant du dégazage, de l'épaisseur de la couche d'oxyde et des propriétés de mouillage de la phase liquide sur la phase solide.

Cependant, en complément du dégazage, les traitements thermiques induisent également des changements dans la composition de la couche d'oxyde et son épaisseur. McDonald et al [57] ont montré que les lamelles déchiquetées ont été trouvées sur des aciers inoxydables qui ont été préchauffés à 650°C, alors que les lamelles en forme de disque ont été trouvées sur des substrats préchauffés à 350°C. Les traitements thermiques sur l'acier inoxydable permettent la création d'une bicouche d'oxyde à la surface du substrat : oxyde de fer (Fe_2O_3) à la surface de la couche d'oxyde et un oxyde de chrome (Cr_2O_3) dans la couche intercalaire. L'épaisseur de la couche d'oxyde de fer et de chrome sur la surface préchauffée à 350°C est respectivement de 56 nm et 124 nm, alors que celle sur un substrat préchauffé à 650°C est de 84 nm et 204 nm. De plus, il a été reporté qu'il n'y avait aucun changement dans la rugosité de surface du fait de l'oxydation entre les différents substrats [57]. Ainsi, McDonald et al proposent que la différence dans la morphologie de la lamelle provient de l'effet d'épaisseur et de composition de la couche d'oxyde.

Fukumoto et al [60] ont mesuré la fraction de lamelles circulaires par rapport à l'ensemble des lamelles obtenues lors de l'impact de particules de cuivre sur la surface d'un acier inoxydable 304L. Le substrat a été préchauffé à 450°C, refroidi et exposé à l'air ambiant pendant différentes durées. Le résultat montre que la fraction de disque est inchangée durant les 24 premières heures d'exposition, mais pour un temps plus long la fraction diminue de plus en plus. En considérant que la rugosité de surface est stable au cours du temps, l'auteur propose que le changement de la fraction en disque est lié à l'accumulation d'adsorbat et de condensats à la surface du substrat. Cependant, le dépôt de lamelle sur un substrat en or change très peu avec et sans préchauffage. Dans ce cas-là, l'effet de la chimie de surface est faible, car l'or est un matériau noble qui ne peut être oxydé sous les conditions de projection utilisées.

Selon Tran [124] [123], l'influence du préchauffage sur la morphologie de lamelle se traduit plus en termes de chimie de surface qu'en modification de la rugosité. Quand des substrats d'aluminium ou d'acier inoxydable sont préchauffés, la ségrégation de Mg/Cr et la déshydratation des hydroxydes intervient. Ces changements ont été corrélés avec le nombre de lamelles déposées et leur morphologie. Le relâchement de l'eau du à la conversion des hydroxydes de surface quand une particule chaude impacte le substrat, génère une couche de vapeur d'eau qui empêche l'adhésion de la lamelle sur le substrat. Le préchauffage du substrat permettant de diminuer la proportion des hydroxydes va limiter le dégazage lors de l'étalement de la particule. De plus, la ségrégation du magnésium et du chrome améliore la mouillabilité du substrat, ce qui a comme effet d'augmenter le contact entre la lamelle et le substrat favorisant la formation de lamelle en forme de disque.

b) Phénomènes chimiques liés aux particules « en vol »

L'influence de l'oxydation « en vol » de la particule sur la phase d'étalement est encore plus complexe que l'effet produit par la chimie de surface. En effet, les particules métalliques projetées par plasma, à la pression atmosphérique, vont, au contact de l'air s'oxyder. Par ailleurs, suivant la température de la particule et les turbulences du jet plasma, l'oxyde en surface peut être modifié [89] [108]. Or, la température de fusion d'un oxyde est généralement plus élevée que celle du métal pur. Cela favorise l'apparition d'une couche liquide ou solide entourant la particule, mais du fait des mouvements de convection certaines parties oxydées vont alors se retrouver au sein de la particule, modifiant sa mouillabilité lors de son impact sur la surface [54] [90-93]. De nombreux auteurs ont mis en évidence la formation de cette couche pour d'autres matériaux comme le nickel, les alliages métalliques, le fer ou les MCrAlY [94] [95] [155] [154]. De plus, du fait de la température élevée environnante les lamelles déposées continuent à s'oxyder, augmentant ainsi la quantité d'oxydes dans le dépôt [95] [97] [153] [146].

c) Caractérisation de l'interface

Un point non actuellement résolu est l'influence de la coquille solide d'oxyde qui peut se former lorsque la particule « en vol » se refroidit (en particulier lorsque que la conductivité thermique du matériau est faible) et de l'effet de sa fragmentation au moment de l'impact sur la phase d'étalement et l'adhésion de la lamelle sur la surface. Afin de pouvoir répondre à cette question, il est nécessaire d'étudier l'interface. Pour ce faire, différentes méthodes peuvent être utilisées. La première est de couper la lamelle en deux parties à l'aide d'une scie

fil et ensuite de polir la tranche. La seconde méthode utilise un faisceau d'électrons pour creuser un trou dans un substrat, pour ensuite, incliner l'échantillon et ainsi observer l'interface de la lamelle. Cette dernière méthode utilise un appareil appelé FIB (Focused Ion Beam). Mais, cette méthode est souvent mise en défaut par le temps, et la difficulté de mise en œuvre. De plus, il est possible que l'interaction du faisceau modifie la structure de la lamelle. Cependant, c'est la méthode la plus précise actuellement et elle permet la mise en évidence d'un nombre important de phénomènes se produisant à l'interface.

En effet, en 2007, Wu et al [119] ont montré l'utilité du FIB pour la caractérisation précise d'une lamelle sur un substrat. Cela permet ainsi d'accéder à la structure des grains, à la présence d'oxyde à l'interface et à la liaison entre la lamelle et le substrat.

D'autres études menées par Uta Klement [125], ont montré que dans le cas de l'impact de particules de NiAl sur des substrats de Ti-Al-V, qu'il existait deux micro-constituants : des grains de pro-eutectique de Nickel, et une structure eutectique comprenant du Ni et du Ni₃Al lorsqu'un phénomène de délamination se produisait. Dans le cas d'une bonne liaison avec le substrat, la structure consistait en une solution solide de nickel et d'une autre couche d'épaisseur variable. Les études MET ont montré que la couche interfacielle était nanocristalline et que la taille des grains se situait dans une gamme de 10 à 100 nm. Les analyses EDS ont montré qu'une inter diffusion se produisait à l'interface de la lamelle. Cette inter diffusion se propage sur une distance de 1 à 2 μm et cette distance est plus importante que l'épaisseur de la couche interfacielle. Cette dernière est constituée principalement de Ni et de Ti, la présence d'une phase métastable ou d'une phase intermétallique n'étant pas confirmée mais fortement probable selon l'auteur.

En 2010, Brossard et al [121] [122] ont utilisé de nombreuses techniques de caractérisation (FIB, TEM, AFM, SEM) pour observer l'interface entre des lamelles de NiCr et différents substrats : aluminium, acier inoxydable ayant subi différents modes de préparation. Ces études très fines ont permis de mettre en évidence la présence d'une fusion de certaines zones du substrat avec écoulement de la partie fondue au sein de la lamelle dans le sens de l'écoulement. Elles révèlent également la présence de trous à l'interface, pouvant correspondre au piégeage de gaz à l'interface, mais également d'inter diffusion entre la lamelle et le substrat, ainsi qu'à la présence de nombreux oxydes pouvant résulter d'oxydes formés « en vol », mais également de ceux formés durant l'étalement du fait de la présence de gaz à l'interface.

I-4/ Conclusions de la partie bibliographique

En conclusion à cette partie, il apparaît que l'étude de l'impact d'une particule dans un état liquide suivi d'une phase de refroidissement pendant l'étalement est difficile du fait du nombre important de paramètres entrant en jeu. Ces paramètres sont l'état de la goutte avant son impact (vitesse, diamètre, température, état d'oxydation), et l'état de surface du substrat (lisse, rugueux, froid, chaud, oxydé ou non). En sachant que la modification d'un des paramètres entraîne celle d'un autre. Par exemple, dans le cas du préchauffage du substrat, l'évolution d'une lamelle déchiquetée vers une forme cylindrique, est-elle due principalement à la température du substrat ou à son état physico-chimique ? Par ailleurs, les principales conclusions des travaux actuels portent sur des particules métalliques, le cas des céramiques étant abordé seulement sur la forme finale de la lamelle. Il apparaît que pour mieux comprendre les phénomènes se déroulant à l'impact, il est nécessaire d'étudier les matériaux métalliques et céramiques.

Or comme il a été vu précédemment, visualiser l'étalement de particules de céramique millimétriques, n'est pas facilement accessible par les dispositifs existants, il est donc nécessaire dans cette étude de développer un nouveau procédé permettant de générer des gouttes millimétriques de céramique et de métaux. Le but est de comprendre l'étalement de la particule sur la surface dans le cas de la projection thermique. Il faut donc que le nouveau système puisse avoir une plage de variation de vitesse plus étendue qu'un système de chute libre classique, afin de connaître à partir de quelle vitesse d'impact les phénomènes peuvent devenir comparables entre l'échelle millimétrique et micrométrique.

Concernant l'impact de particules micrométriques, les points à améliorer se situent dans l'imagerie et dans la procédure de déclenchement de l'acquisition. En effet, la qualité des images doit permettre de visualiser la répartition de la matière sur la surface du substrat et le déclenchement doit être suffisamment précis pour permettre de localiser la prise de vue dans le processus d'étalement et ainsi réaliser un séquençage du processus d'éjection.

Par ailleurs, il est nécessaire de caractériser l'état de surface de l'échantillon aussi bien du côté physique que chimique. Afin de s'affranchir de trop grandes variations, il a été décidé de considérer des substrats proches de par leurs propriétés physiques et leur résistance à l'oxydation. C'est la raison pour laquelle les substrats choisis sont l'acier inoxydable (304L)

et un alliage de titane (Ti 6-2-4-2) très utilisé dans l'aviation pour sa résistance à l'oxydation jusqu'à 600°C.

De plus, il est nécessaire d'observer l'effet induit par la couche d'oxyde développée en périphérie de la goutte. Pour ceci, il a été décidé d'étudier un matériau sous une forme d'oxyde stable : l'alumine Al_2O_3 et un matériau pouvant développer la couche d'oxyde : le NiAl 5%.

Chapitre II : Dispositifs expérimentaux

II-1/ Introduction

Le but de cette étude est de comprendre au mieux l'impact des particules en projection plasma afin d'améliorer la liaison entre les premières lamelles et le substrat. Pour ce faire, l'étude doit porter sur une seule particule. Afin de simplifier cette étude et comprendre au mieux les phénomènes se déroulant lors de l'impact de la particule de taille micrométrique, il est important d'examiner, en parallèle, l'impact de gouttes de taille millimétrique. Cependant, comme il a été vu précédemment, la corrélation entre les deux échelles est compliquée du fait des différences de vitesse d'impact. Seule une étude antérieure [116] a permis de mettre en évidence l'influence de la vitesse d'impact sur la cinétique d'étalement de la particule millimétrique. Il est donc nécessaire d'avoir un système millimétrique permettant d'obtenir une plage de vitesses d'impact plus large que les précédents travaux et également de travailler avec des particules métalliques ou céramiques.

Dans un premier temps, le dispositif permettant d'étudier l'impact de particules micrométriques est présenté. Il a comme composant majeur des techniques d'imagerie et de caractérisation « en vol » et à l'impact de la vitesse et de la température des particules. Pour fondre et accélérer la particule de taille micrométrique, une torche plasma à courant continu est utilisée.

Dans un deuxième temps, est présenté le dispositif permettant d'étudier l'impact à différentes vitesses de gouttes millimétriques aussi bien céramiques que métalliques. Ce système, fondé sur la chute libre d'une goutte, est constitué d'un arc électrique et d'un piston permettant un mouvement vertical du substrat à haute vitesse. Les gouttes de taille micrométrique et millimétrique ont ainsi un nombre de Weber sensiblement proche.

II-2/ Dispositif de caractérisation à l'impact de gouttes de taille micrométrique

Dans cette partie est présenté le système permettant d'étudier l'impact d'une seule particule de taille micrométrique sur la surface d'un substrat froid, chaud ou préchauffé. Du fait des cinétiques d'étalement et de refroidissement des particules à cette échelle, il est nécessaire d'avoir des appareils de mesure avec un temps de réponse très court ($<1\mu\text{s}$). Le choix des caméras s'est porté sur des caméras CCD à ouverture rapide (l'une visant

tangentiellement le substrat et l'autre perpendiculairement). Les dispositifs de métrologie, vitesse et température, sont ceux développés et utilisés au laboratoire depuis de nombreuses années, ce qui permet de les améliorer et de les adapter facilement à l'application voulue.

L'avantage d'un tel banc d'étude est de corréler les images de l'étalement avec les signaux pyrométriques de la particule, mais aussi de connaître au mieux l'état de la particule avant impact. En effet, la difficulté majeure d'un tel procédé est d'assurer une reproductibilité de l'impact de plusieurs particules. Dans les conditions de projection conventionnelle, 10^6 à 10^8 particules/seconde impactent au même endroit et du fait de la granulométrie de la poudre, chaque particule ne possède pas la même force d'impact que sa voisine et n'est pas traitée thermiquement de la même façon. Il est donc nécessaire de mettre en place des dispositifs annexes afin de sélectionner uniquement les particules avec les mêmes caractéristiques de vol.

II-2.1 Dispositif de projection thermique

Cette étude étant centrée sur les phénomènes à l'impact, il est nécessaire de fondre et d'accélérer suffisamment les particules. Afin de simplifier l'étude, les paramètres de projection sont ceux utilisés de façon standard en projection plasma.

II-2.1.1 Les gaz utilisés

Afin de chauffer et d'accélérer au mieux les particules, il est nécessaire d'utiliser un mélange binaire de gaz. Le gaz majoritaire, l'argon, permet de fournir une quantité de mouvement suffisante à la particule afin de l'accélérer. Le gaz secondaire, l'hydrogène, favorise le transfert thermique plasma / particule.

II-2.1.2 La torche utilisée

Le dispositif de projection plasma est constitué d'une torche à plasma à courant continu (DC) dite à arc soufflé (profil PTF4). La tuyère est cylindrique et son diamètre interne est de 6 mm. L'injecteur de poudre est positionné radialement juste au niveau de la sortie de tuyère. Les paramètres de fonctionnement sont résumés dans le Tableau II-1.

Dans les conditions optimales de tir plasma, la trajectoire des particules en sortie de torche présente un écart d'environ 4° par rapport à celui de la torche [44]. Il est donc nécessaire de réajuster la trajectoire des particules afin que celle-ci soit parallèle au plan de travail horizontal, appelé marbre dans la suite du manuscrit. Pour cela, la torche peut être inclinée suivant l'axe vertical.

Tableau II-1 : Paramètres de fonctionnement de la torche

Intensité du courant (A)	650
Tension (V)	47
Diamètre interne de la tuyère (mm)	6
Débit d'Argon (L/min)	33
Débit d'Hydrogène (L/min)	10
Distance de projection (mm)	110

II-2.1.3 Les poudres

Dans cette étude, deux types de poudres ont été utilisés afin de permettre de comparer le comportement d'une particule métallique par rapport à une particule céramique. A la suite des travaux précédents portant sur la zircone [181], le choix du matériau à étudier s'est porté sur l'alumine (Al_2O_3), plus facile à obtenir sous forme de poudre ou de baguettes. Pour le côté métallique, du fait du nombre d'études portant sur le nickel, le choix fut celui d'une base nickel, afin d'observer l'effet de l'ajout d'un autre composé. Le NiAl (5% massique d'Al) a été préféré au NiCr du fait des nombreux travaux réalisés sur ce dernier par les autres laboratoires. Par ailleurs, le NiAl permettait de travailler en collaboration avec le laboratoire de Göteborg en Suède et ainsi que l'unité de recherche à Trollhättan travaillant en partenariat avec Volvo Aero.

Les poudres utilisées sont les suivantes :

- Al_2O_3 : Amperit n° 740.1 de H.C. Starck, granulométrie : -45 +22,5 μm
- NiAl(5%) : Metco n° 450NS de Sulzer Metco, granulométrie : -90 +45 μm

Ces deux types de poudres possèdent une granulométrie large et différente. Il a donc été décidé, afin d'augmenter la reproductibilité des essais de tamiser la poudre à l'aide d'une tamiseuse MINOR de 20 cm de diamètre. La gamme des tamis utilisés est la suivante : 50 μm , 40 μm . Dans cette tamiseuse, les tamis sont disposés du plus petit au plus grand sur une base vibrante, permettant d'obtenir une granulométrie de poudre comprise entre 40 et 50 μm (Voir Figure II-1), peu éloignée entre les deux poudres.

Cependant, il peut être remarqué une différence de forme entre les deux poudres, provenant du procédé de fabrication. En effet, dans le cas des particules de céramique, elles

sont le plus souvent produites par un procédé de fusion broyage ce qui permet d'obtenir des grains denses avec une forte tenue mécanique mais avec un aspect anguleux.

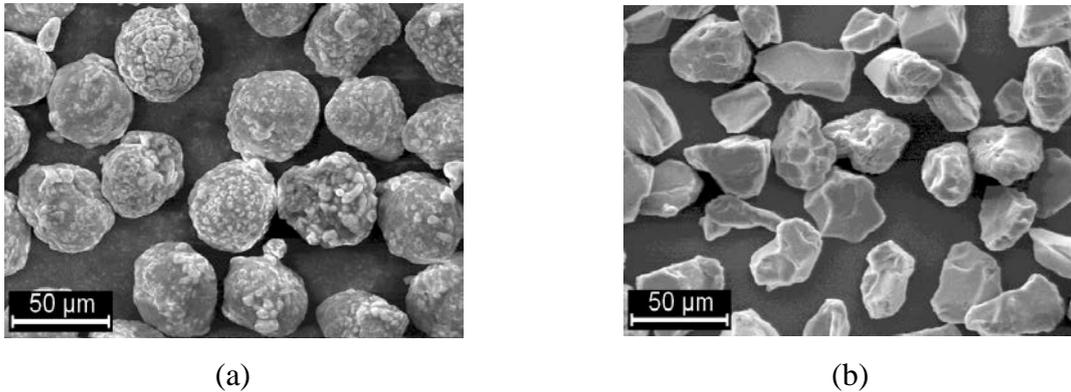


Figure II-1 : Micrographies des poudres après tamisage : (a) NiAl (5%), (b) Al₂O₃

Les particules sont alors moins bien tamisées que dans le cas de particules sphériques comme celles de NiAl. Ce léger désagrément a peu d'influence dans la suite de l'étude car les particules sont fondues entièrement lors du passage dans le jet plasma, les particules sont donc parfaitement sphériques à l'impact.

II-2.2 Métrologie sur particules « en vol » et à l'impact.

La compréhension des phénomènes ayant lieu à l'impact impose de connaître l'état « en vol » de la particule (fondue ou semi-fondue), ainsi que sa vitesse juste avant impact. En effet, l'étalement est fortement lié à la vitesse d'impact et à la température [172]. Il est également nécessaire de connaître les phénomènes se produisant lors de l'étalement (refroidissement, présence d'éjections de matière, forme de l'étalement...). Cependant, cela nécessite des installations particulières et complexes (Voir I-3.1.1). Le but de ce paragraphe est de présenter la métrologie et la technique d'imagerie utilisées dans le dispositif étudiant l'impact des particules de taille micrométrique. Ce dispositif (voir Figure II-2) est composé :

- D'un diaphragme à particules : Pour la sélection spatiale des particules les mieux traitées
- D'une lunette « vitesse » : Mesure de la vitesse « en vol » et déclenchement des appareils de mesure
- D'une lunette pyrométrique : Mesure de la température « en vol » et à l'impact
- De caméras à exposition rapide (100 ns – 1000 ms) photographiant l'impact suivant deux directions

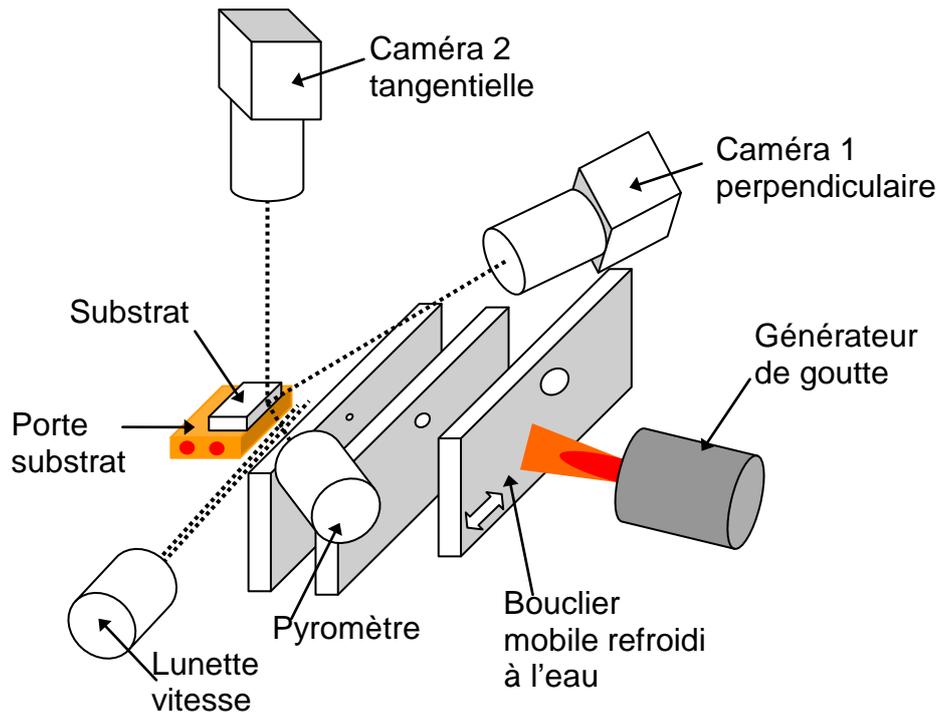


Figure II-2 : Schéma du dispositif permettant l'étude de l'étalement de particules de taille micrométrique.

II-2.2.1 Sélection spatiale des particules en vol.

Le cas idéal serait d'injecter une seule particule dans le jet plasma et de la suivre en différents points de sa trajectoire. Mais cette particule, soumise aux aléas des fluctuations du jet, serait plus ou moins déviée d'une trajectoire idéale obtenue si l'écoulement était stationnaire. L'écoulement agit comme agent fortement dispersif des trajectoires. Les plus petites quantités de poudre introduites dans le plasma reviennent à injecter plusieurs milliers de particules dans l'écoulement, conduisant à de nombreux impacts dispersés sur le substrat. Il devient alors impossible d'associer a posteriori une particule particulière avec les paramètres de « vol » mesurés (taille, vitesse trajectoire).

Pour résoudre ce problème, un ensemble de boucliers agissant comme un diaphragme de particules a été mis en place. Un premier bouclier, refroidi par circulation d'eau sous une pression de 1 MPa, est muni d'un vérin qui assure son déplacement. Dans ce bouclier, un trou de diamètre 5 mm sert à sélectionner le jet de particules, tout en éliminant la majorité de l'écoulement plasma. Un deuxième bouclier non mobile, refroidi par eau sous une pression de 0,4 MPa, est percé d'un trou de 1,5 mm permettant de sélectionner une trajectoire donnée. Finalement un dernier bouclier en titane, percé d'un trou de diamètre 600 μm , permet d'affiner et de sélectionner très peu de particules.

L'alignement des boucliers permet de sélectionner uniquement les particules dont les trajectoires se distribuent sur un cône d'angle au sommet de $0,4^\circ$ par rapport à la sortie de la torche (Voir Figure II-3). Les particules étudiées sont donc principalement les plus chaudes du jet. Par ailleurs, le débit de poudre est de 10 g/h afin de réduire considérablement la densité du jet de particules, et ainsi de diminuer le nombre d'impacts dans une zone donnée.

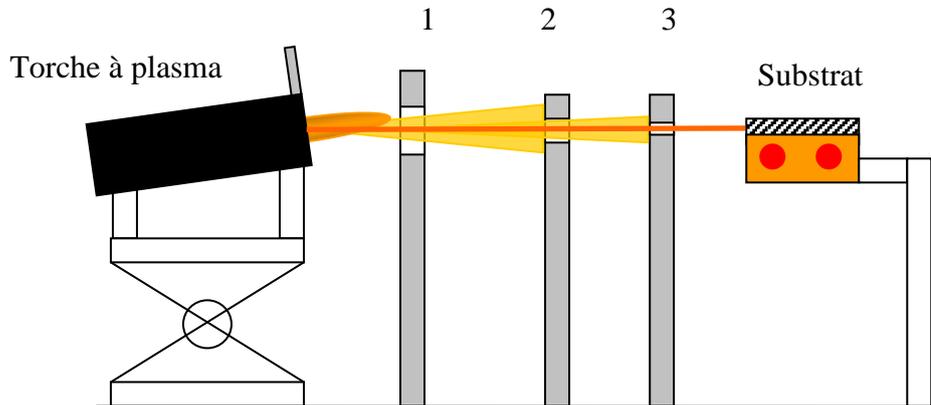


Figure II-3 : Schéma du dispositif, vue de côté et parallèle au marbre

II-2.2.2 Mesure de la vitesse

a) Acquisition du signal vitesse

La mesure de la vitesse de la particule « en vol » repose sur le principe de la mesure en deux points. Pour cela, une lunette optique, composée d'une lentille de focale 100 mm et d'une fibre de diamètre à cœur de 1 mm, est utilisée. La lunette vélocimétrique focalisée à une distance de 200 mm, permet d'obtenir un grandissement de 2,5. Un cache de diamètre 600 μm occultant le centre de la fibre, permet d'obtenir dans le volume de mesure deux portions de disques séparées de 1,5 mm (voir Figure II-4 (a)). Lorsque la tête optique est en position de mesure, ces fentes sont perpendiculaires à l'axe de la trajectoire de la particule et se trouvent à 5 mm de la sortie du dernier bouclier. Un filtre interférométrique, positionné devant l'entrée de la fibre, permet de s'affranchir des perturbations provenant du rayonnement plasma. Le passage d'une particule dans le volume de mesure crée deux illuminations successives transformées en impulsion électrique par un photomultiplicateur (temps de réponse de 50 ns). Ce signal est ensuite transmis à un amplificateur - filtreur permettant d'obtenir le signal présenté en Figure II-4 (b). La mesure du temps entre les deux impulsions électriques permet de déterminer la vitesse de la particule.

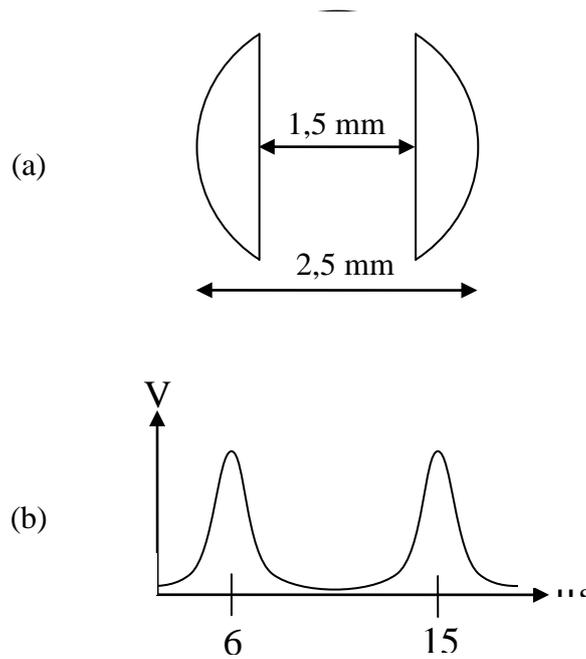


Figure II-4 : (a) Portions de disques situées sur la trajectoire des particules et (b) signal théorique recueilli en sortie de l'amplificateur –filtreur.

b) Mesure de la vitesse « en vol » des particules et déclenchement synchronisé des appareils de mesure

La distance séparant la zone vélocimétrique du substrat étant de 5 mm, une particule allant à une vitesse de 200 m/s va parcourir cette distance en 20 μ s. De plus, la phase d'étalement dure moins de 10 μ s. Il est donc nécessaire d'avoir un signal analogique qui permet un calcul instantané (de l'ordre de 100 ns) de la vitesse de la particule, ainsi que le déclenchement de l'imagerie et de la pyrométrie avec une précision de l'ordre de 1 μ s

L'idée retenue est de calculer le retard à affecter à une impulsion TTL (0-5V) qui sert au déclenchement des appareils de mesure. Ce retard dépend de la position du substrat ainsi que de la vitesse de la particule.

Afin de s'affranchir de la différence d'amplitude des signaux vélocimétriques d'une particule à l'autre, la première étape est de transformer les impulsions électriques en impulsions TTL. Pour cela, un générateur de pulse ORTEC génère une impulsion à mi-hauteur du front descendant de chaque impulsion électrique du signal vitesse (Voir Figure II-5). L'erreur commise sur l'écart temporel entre les deux impulsions TTL, lors de la

génération, est de $0,1 \mu\text{s}$. Ce qui induit une erreur de 5 m/s pour une particule ayant une vitesse de 200 m/s .

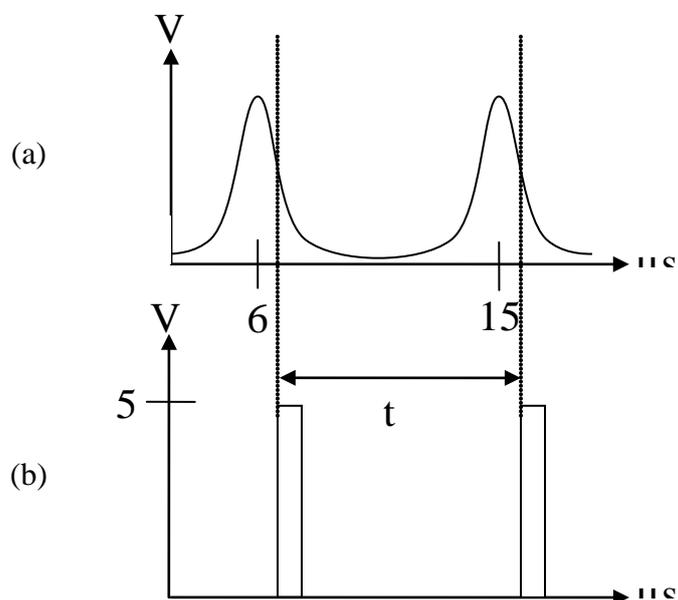


Figure II-5 : Position des impulsions TTL par rapport aux impulsions lumineuses provenant du passage de la particule dans le volume de mesure et permettant la mesure de la vitesse de la particule.

Pour réaliser l'acquisition de ces impulsions TTL dans un temps très court (quelques μs), l'utilisation d'une carte d'acquisition National Instrument de type FPGA NI PXI -7831R qui ne digitalise pas le signal, est nécessaire. Cette carte, pilotée par un logiciel développé sous LabVIEW, calcule la vitesse et génère un pulse TTL permettant de déclencher les appareils de mesure. La précision temporelle avec le type de programme utilisé correspond à un créneau d'horloge ($25 \text{ ns} / 40 \text{ MHz}$).

Le calcul de la vitesse est fondé sur la mesure du temps séparant la détection de deux fronts montants successifs espacés au minimum de $4 \mu\text{s}$. Cela permet de s'affranchir des particules parasites (deux particules se suivant de près par exemple). La distance entre les deux volumes de mesure vélocimétriques ainsi que la position de la cible étant connues, la vitesse est alors calculée instantanément, ainsi que le retard à donner à l'impulsion TTL (Voir Figure II-6)

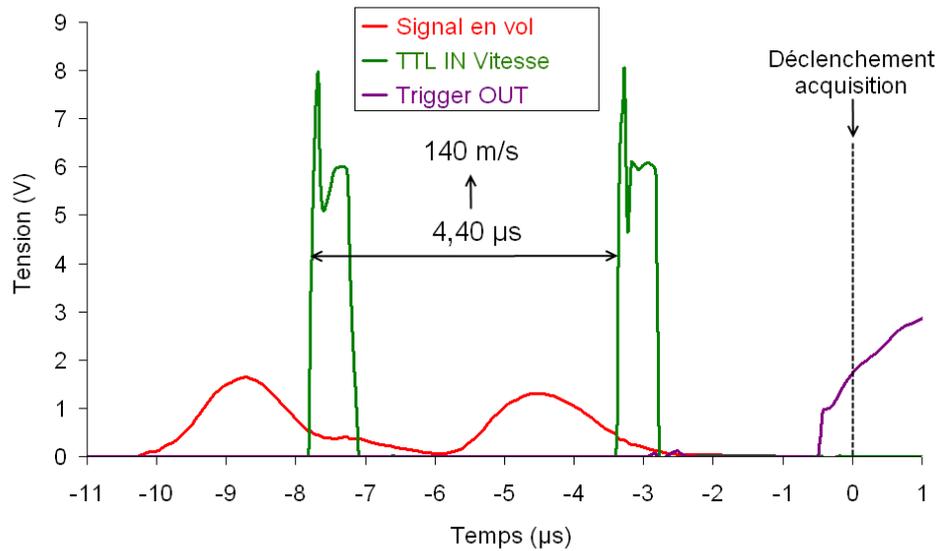


Figure II-6 : Exemple de signal recueilli dans le cas d'une particule de diamètre 40 µm et de vitesse égale à 140 m/s.

II-2.2.3 Mesure de la température « en vol » et à l'impact

a) Principe de la mesure

La méconnaissance des émissivités à température élevée et des surfaces (section apparente des particules) étant importante, la détermination de la température d'une particule est effectuée par pyrométrie bi-chromatique. Le principe de la bi-chromatie est fondé sur l'analyse du rayonnement thermique émis par la particule sur deux longueurs d'onde. Le signal détecté sur chacune de ces longueurs d'ondes est fonction de la puissance lumineuse émise par la particule en fusion [99]:

$$\Psi(\lambda, T, \Sigma) = \Sigma \cdot K \cdot C_1 \cdot \varepsilon(\lambda, T) \cdot \lambda^{-5} \cdot (\exp(\frac{C_2}{\lambda \cdot T}) - 1)^{-1} \quad \text{Eqn. II-1}$$

Avec

Ψ : Puissance lumineuse émise (W)
 T : Température (K)
 K : Constante optique et électrique
 $C_1 = 3,741 \cdot 10^{-16}$ (W.m²)

λ : Longueur d'onde (m)
 Σ : Surface émissive (m²)
 ε : Emissivité de la surface
 $C_2 = 1,4388 \cdot 10^{-2}$ (m.K)

Le rapport de deux signaux à deux longueurs d'ondes permet de s'affranchir de la détermination de la surface émissive et des constantes optiques et électriques qui sont identiques pour les deux signaux. De plus, les températures mesurées ne dépassant pas les

7500 K, il est possible d'utiliser l'approximation de Wien, permettant de simplifier l'expression : $\exp(C_2.(\lambda T)^{-1}) \gg 1$. Enfin, si l'hypothèse que l'émissivité du matériau varie peu entre les deux longueurs d'onde de travail (hypothèse du corps gris) est faite, le rapport R des puissances lumineuses n'est plus fonction que de la température de la particule. Cela conduit à dire que la température de la particule est fonction du rapport des deux signaux émis par la particule sur chaque longueur d'onde :

$$T = C_2 \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_1 \cdot \lambda_2} \cdot \frac{1}{\ln(R(T)) + 5 \cdot \ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} \quad \text{Eqn. II-2}$$

Ce qui conduit à une loi de type :

$$T = \frac{C}{\ln(R) + D} \quad \text{Eqn. II-3}$$

Où C et D sont des constantes à déterminer par étalonnage et R le rapport des puissances

b) Acquisition des signaux pyrométriques

La pyrométrie bi-chromatique repose sur l'acquisition du signal thermique provenant de la particule. Une tête optique, placée à 15 cm de la surface du substrat, permet de recueillir le rayonnement thermique émis par la particule. La tête optique est composée d'une lentille achromatique de focale 80 mm et d'une fibre de diamètre à cœur de 1000 μm . La zone de mesure est un cylindre de diamètre 1000 μm et de longueur 5 mm, centré sur le point de focalisation. L'angle de visée étant de 10° par rapport à la perpendiculaire du substrat, la configuration présentée sur la Figure II-7 est obtenue. Il est ainsi possible de capter le rayonnement émis par la particule en fusion, avant son impact et pendant son étalement.

Pour effectuer le filtrage optique en longueur d'onde du signal, le choix s'est porté sur un monochromateur H10IR de Jobin Yvon possédant 600 traits/mm et de résolution 16 nm/mm. Afin de sélectionner de façon simple les plages de longueur d'onde, deux fibres optiques de diamètre à cœur 1 mm, espacées de 8 mm, sont positionnées en sortie du monochromateur. Cela permet d'obtenir des plages de longueur d'onde de 16 nm espacées de 128 nm. Le monochromateur possédant un indicateur de position, il est donc possible de connaître les longueurs d'ondes recueillies par les fibres. Le signal pyrométrique théorique présenté en Figure II-7 peut alors être obtenu.

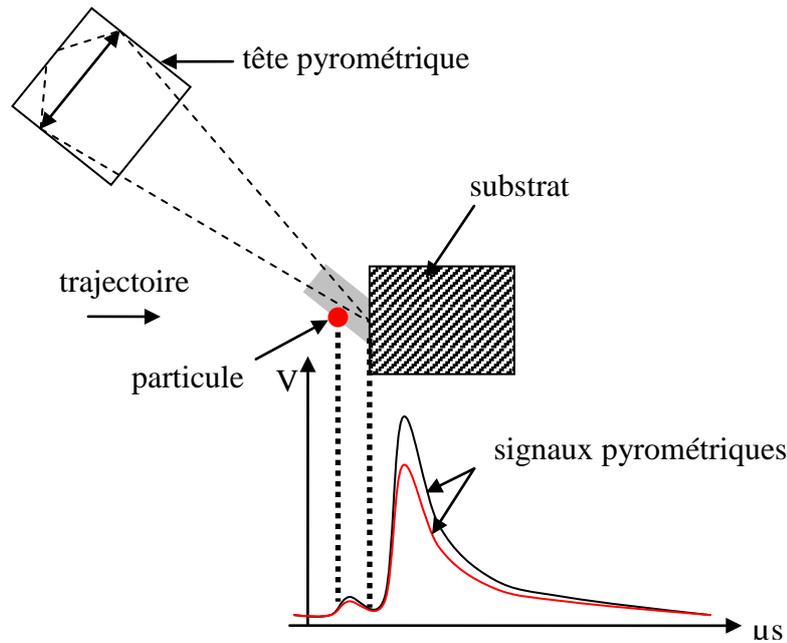


Figure II-7 : Schéma du système d'acquisition pyrométrique et profils théoriques des signaux recueillis.

Les temps d'étalement et de solidification étant très courts, il est nécessaire d'avoir une chaîne de détection qui ne dégrade pas le signal lumineux lors de la transformation en signal électrique. Pour ce faire, le choix du détecteur s'est porté sur un photomultiplicateur (PM) de type R928 possédant un temps de réponse intrinsèque de 22 ns et une possibilité d'amplification du signal en jouant sur la tension d'alimentation du PM en fonction de la quantité de lumière reçue. Cependant, ce type de détecteur se comporte comme un générateur de courant, il est donc nécessaire d'utiliser un dispositif annexe afin d'obtenir une tension pouvant être mesurée grâce à une carte d'acquisition National Instrument de type PXI-5122 (100MHz, 14 bit). Ce dispositif annexe est, soit une résistance, soit un amplificateur commercial de type C7247-01. L'amplificateur a un taux de conversion de $0,3V/\mu A$ et une bande passante du continu à plusieurs mégahertz. La Figure II-8 présente les différences entre les deux solutions, dans le cas de l'impact d'une particule de céramique ($\Phi=40\mu m$) sur un acier inoxydable. La résistance est disposée sur la chaîne de mesure de la longueur d'onde 1 et l'amplificateur est disposé sur la chaîne de la longueur d'onde 2.

Il peut être remarqué que l'amplificateur possède un temps de montée et de descente beaucoup plus court que dans le cas de la résistance (constante de temps élevée). Cependant, l'amplificateur donne un signal plus bruité que celui de la résistance. Le temps de montée plus lent de la chaîne avec résistance provient du fait de l'existence d'un temps de réponse du

circuit. En effet, le schéma équivalent d'un PM est une source de courant en parallèle avec une résistance R_o ($>10^{12}\Omega$) et une capacité C_o (<10 pF). Le temps de réponse du circuit chargé par une résistance R_L et une capacité C_L est donc $\tau=RC$ où $R=(R_oR_L).(R_o+R_L)^{-1}$ et $C= C_o+C_L$.

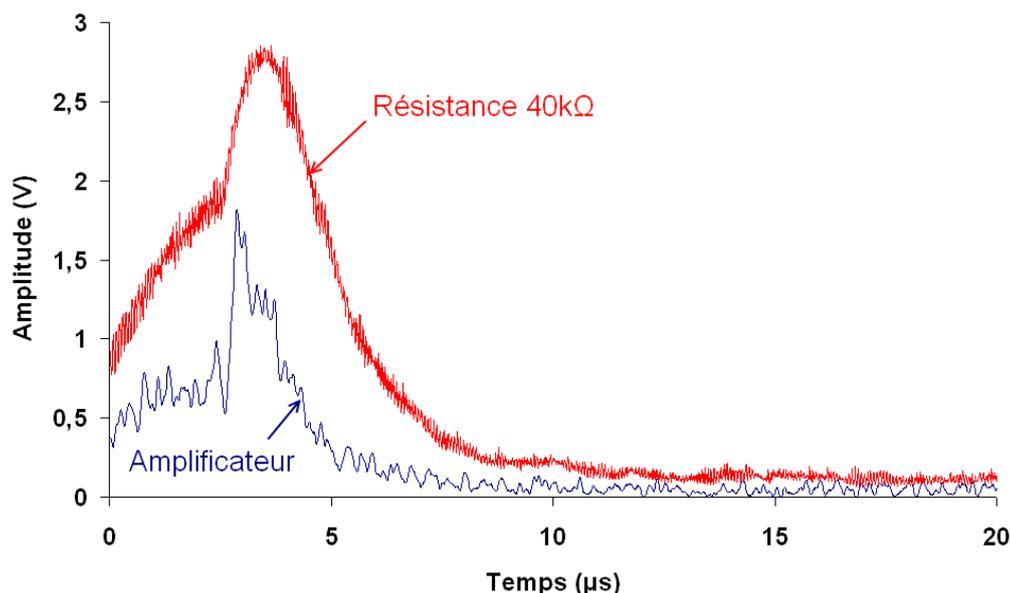


Figure II-8: Comparaison entre les signaux fournis d'une part par un PM et une résistance ($40k\Omega$), et d'autre part, par un PM et un amplificateur (C7247-01), le signal provient de la même particule, les dispositifs étant placés respectivement sur la longueur d'onde 1 et 2.

Dans le cas présenté $R_L=40k\Omega$ et $C_L=0F$, d'où $\tau=0,4\mu s$, ce qui à l'échelle du temps de montée est vraiment préjudiciable. Cependant, pourquoi ne pas utiliser l'amplificateur ? En fait, celui-ci ne répond qu'entre 0 et 5 MHz et possède donc un temps de réponse de $0,2 \mu s$. Il est alors nécessaire de diminuer la valeur de la résistance afin d'augmenter le temps de réponse de la chaîne. Cependant, en diminuant la valeur de la résistance, le signal mesuré est d'autant plus faible. Or, la carte d'acquisition possède différentes plages de mesure de tension, la minimale étant de -100 mV à 100 mV avec une sensibilité de $12,2 \mu V$, et la maximale étant $-10V$ à $10V$ avec une sensibilité de $1,22$ mV. Si la plage minimale est choisie, la tension maximale mesurable est donc de 100 mV. Or, le courant d'anode maximal que peut fournir le PM est de $0,1$ mA. En choisissant une résistance de $1k\Omega$, il est possible de bénéficier de toute la plage de mesure de la carte d'acquisition et d'obtenir un temps de réponse de $0,01\mu s$. De plus, la carte d'acquisition a une fréquence d'acquisition de $100MHz$ ($0,01\mu s$), il n'est donc pas nécessaire d'essayer de diminuer encore le temps de réponse de la chaîne.

En conclusion, pour la suite des expériences, la méthode retenue est celle d'une résistance de $1k\Omega$ sur chacune des deux voies. Et la plage de tension mesurable est de -100 mV à 100 mV avec une fréquence d'acquisition de 100MHz.

Le déclenchement de l'acquisition est réalisé sur le front montant du signal TTL (0-5V) généré par le système vélocimétrique précédemment décrit (Voir paragraphe II-2.2.2). Après l'acquisition, le traitement du signal est activé afin de connaître :

- La température de la particule « en vol » quelques instants avant son impact (environ 3 μ s)
- L'évolution de la température de la lamelle lors de son étalement
- L'évolution temporelle de la température de la lamelle au cours du refroidissement

Cependant, les signaux pyrométriques sont fortement perturbés par la présence de bruit pouvant être de plusieurs types :

- Photonique : Plasma, vapeurs du matériau projeté, mouvement de matière
- Electrique : Effets électromagnétiques, perturbations par le circuit électrique, bruit intrinsèque aux photomultiplicateurs.

Les bruits photoniques peuvent être diminués en choisissant convenablement les plages de longueur d'onde, tout en prenant garde à rester dans la zone de réponse des photomultiplicateurs. L'adaptation des plages de longueur d'onde est décrite dans le paragraphe suivant.

Pour les autres sources de perturbation, cela se traduit par une ondulation qui se rajoute sous la forme de signaux sinusoïdaux sur le signal pyrométrique. La meilleure façon de s'affranchir de ceci est donc de réaliser un lissage du signal avant le calcul de la température.

c) Optimisation du système

Avant de pouvoir étalonner le système, il est nécessaire d'éviter de sélectionner des plages de longueur d'onde correspondant à des émissions du plasma ou d'éléments métalliques comme l'aluminium, provenant de l'évaporation de particules d'alumine. Or le PM a une réponse en longueur d'onde limitée (200-850 nm). Il est donc nécessaire de se placer dans cette zone.

En focalisant la lunette pyrométrique sur une lampe à vapeur d'aluminium, il est possible de recueillir le signal lumineux en fonction de la longueur d'onde (Figure II-9). Et ainsi de trouver les longueurs d'onde les moins perturbées par la raie de l'aluminium. En effet, sur la Figure II-9, il est remarqué la présence de minima aux longueurs d'onde suivantes : 560 nm, 690 nm et 820 nm. Or l'écart entre les deux plages de longueurs d'onde est fixé à 128 nm.

Deux plages de longueurs d'onde sont alors possibles :

- Soit 560 et 688
- Soit 690 et 818

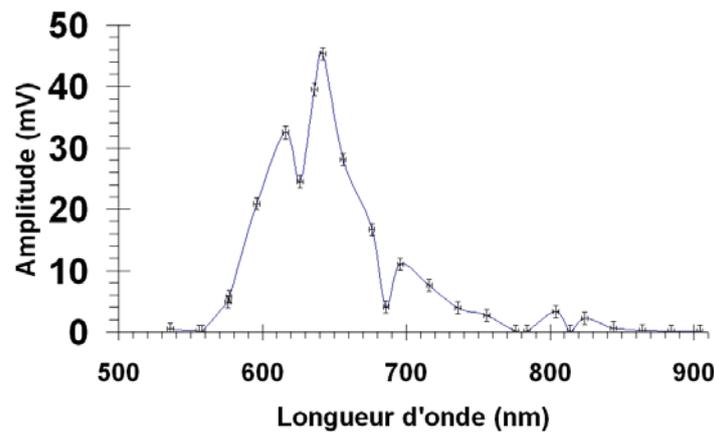


Figure II-9 : Intensité lumineuse de la lampe à vapeur d'Al mesurée sur chacune des voies en fonction de la position du réseau (a) et de la longueur d'onde (b)

Du fait du mélange binaire de gaz utilisé, il est nécessaire de s'intéresser aux raies d'émissions de l'hydrogène et de l'argon. Cependant, en raison de la présence des boucliers et de la distance de tir, la perturbation induite est négligeable par rapport à celle produite par les vapeurs d'aluminium. Pour déterminer le bon choix entre les deux plages de longueur d'onde, le plus simple est de comparer directement le signal recueilli dans le cas d'un impact. Sur la Figure II-10 (a) et (b) sont tracées les courbes brutes obtenues dans le cas de l'impact d'une particule de céramique sur un acier inoxydable à température ambiante.

Celles obtenues pour les plages de longueurs d'onde 560 / 688 sont non seulement plus faibles, mais également plus bruitées que pour la plage 690 / 818 (voir fond continu, Figure II-10 (a) et (b)). La diminution de l'amplitude du signal est due au fait que, plus les longueurs d'ondes sont faibles plus le maximum du rayonnement est éloigné ($\lambda.T=3000$).

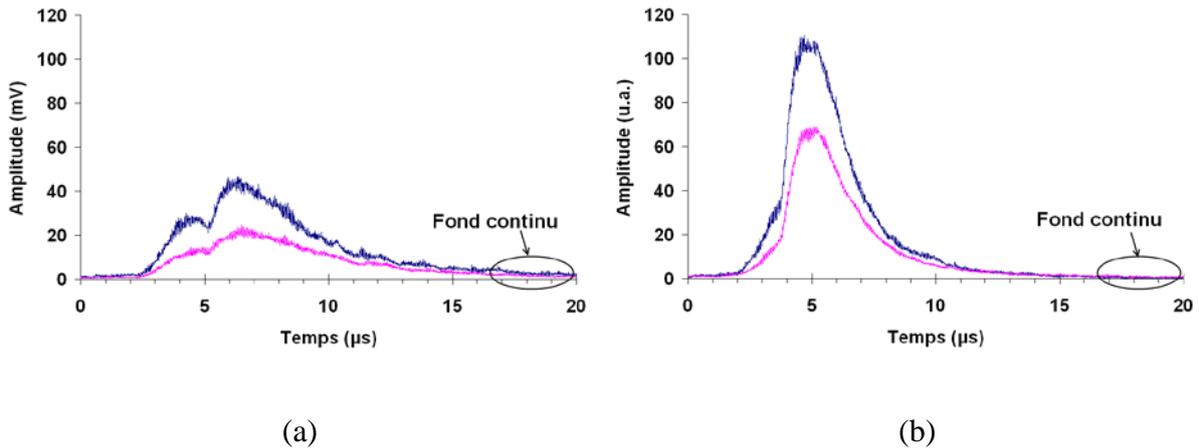


Figure II-10 : Exemples de signaux pyrométriques pour différentes positions de réseau (a) 560 / 688 et (b) 690 / 818

Les longueurs d'ondes utilisées pour mesurer la température par pyrométrie bichromatique sont finalement les suivantes : 690 et 818 nm.

d) Etalonnage du système

Le matériel nécessaire pour la calibration du système est un pyromètre bi-chromatique commercial Modline 5 et une lampe à filament plat. Le pyromètre à calibrer est focalisé sur la lampe à ruban de tungstène. Afin d'éviter la saturation des PM, une fente de 1 mm est disposée à 1 cm de la lampe, sur le trajet optique du pyromètre, et le pyromètre Modline est focalisé sur l'autre côté du filament. Le pyromètre Modline a la possibilité, en mode bi-chromatique, d'être corrigé suivant le matériau étudié en introduisant un paramètre nommé E-Slope correspondant à la variation de l'émissivité entre les plages de longueur d'onde. Dans le cas du tungstène, l'E-Slope est de 1,02 (sans unité).

Comme il a été vu précédemment (paragraphe II-2.2.3a), p. 51), l'expression de la température bi-chromatique est la suivante : $T=C.(\ln(R)+D)^{-1}$, où T est la température en Kelvin, C et D des constantes à déterminer et R le rapport des deux signaux.

Afin de déterminer ces constantes, il est nécessaire de tracer la courbe $1/T=(1/C).\ln(R)+D/C$ en faisant varier la tension de la lampe mais en conservant les tensions des PM fixées respectivement à 500V et 450V. Ceci permet d'obtenir la Figure II-11.

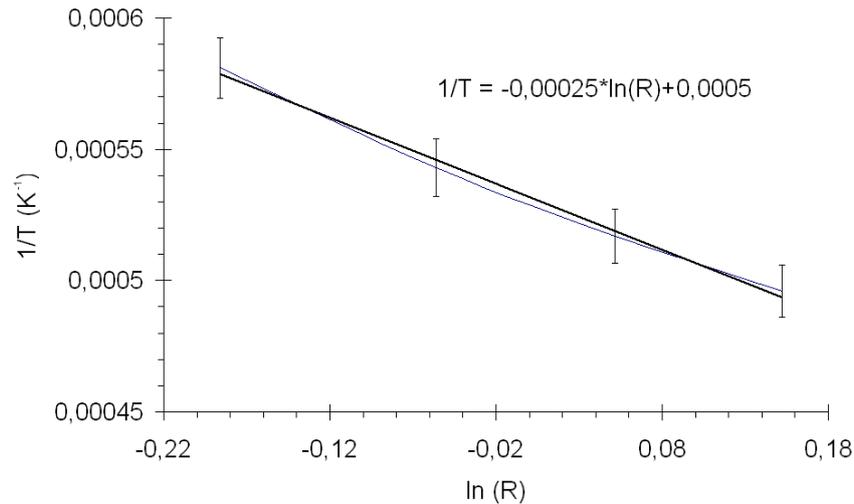


Figure II-11 : Courbe d'étalonnage du pyromètre bi-chromatique, où R est le rapport des intensités de chaque voie pour une température donnée.

Il est alors possible de calculer les coefficients $C = -3967$ et $D = -2,11$. L'expression de la variation de la température en fonction des rapports des signaux est donc la suivante :

$$T = \frac{-3967}{\ln(R) - 2.11} \quad \text{Eqn. II-4}$$

où T est en Kelvin et R le rapport des signaux aux longueurs d'onde 696 nm et 824 nm, et pour des tensions de PM égales à 500V et 450V.

e) Traitements des signaux pyrométriques

* Allure théorique des signaux pyrométriques

Du fait de l'orientation de la tête de détection, le signal présente l'évolution décrite sur la Figure II-12. Il peut alors être décomposé en trois grandes parties :

Zone 1 : Le signal pyrométrique, dans cette zone, est celui de la particule « en vol » juste avant l'impact sur la surface. Il permet de calculer la température de la particule juste avant l'impact. Le point minimum entre 1 et 2 peut ne pas exister, il dépend surtout du positionnement de la particule entrant dans le volume de mesure.

Zone 2 : Cette partie correspond à la phase d'étalement de la matière et permet de calculer la vitesse d'étalement de la particule sur la surface, ainsi que l'évolution de la température au cours de l'étalement.

Zone 3 : Dans cette zone la chute de signal est dûe en grande partie au refroidissement de la lamelle. Mais il peut également s'agir d'une évolution de surface de la lamelle, soit par recul du film vers le centre, soit par déchirement de ce film à la surface.

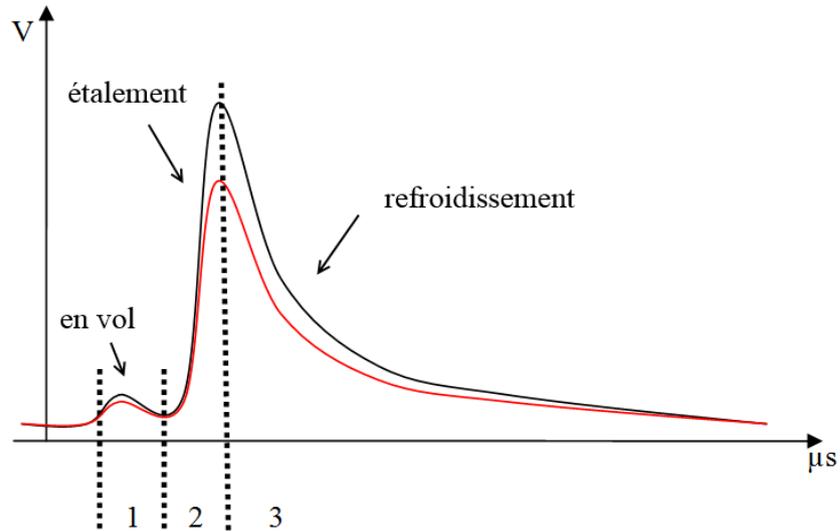


Figure II-12 : Allure théorique d'un signal pyrométrique avec description des différentes phases de l'impact.

* Lissage des courbes

Du fait de la forme du signal, il est nécessaire de lisser le signal de manière sélective, suivant les zones considérées, pour ne pas modifier la pente de la courbe lors du lissage et éviter ainsi d'obtenir une mesure de la vitesse de refroidissement erronée. Le lissage effectué est un lissage par moyenne mobile : plus le nombre de points de lissage est grand et plus le lissage est important. Après le traitement, la Figure II-13 est obtenue. Les calculs de températures peuvent alors être réalisés.

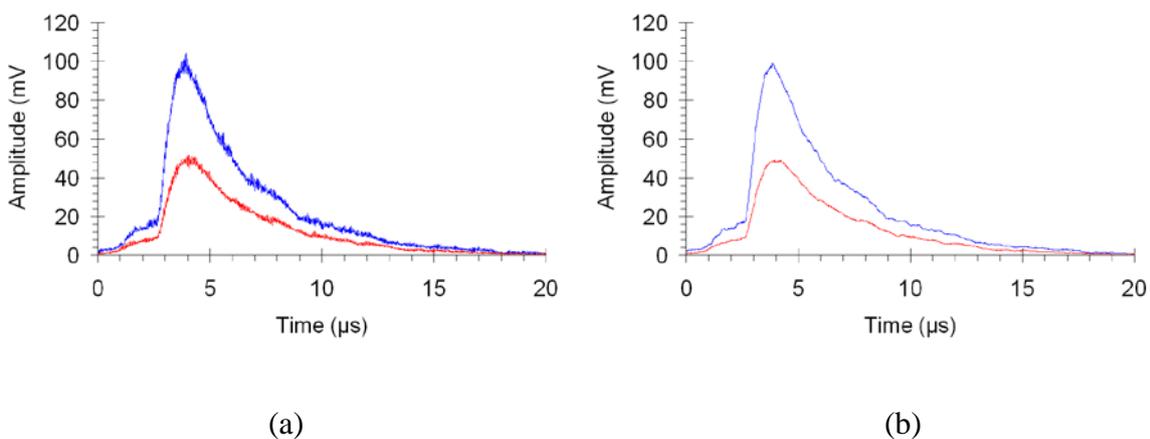


Figure II-13 : Exemple de signaux pyrométriques (a) avant et (b) après lissage.

* Méthodes de calcul de l'évolution de la température

Le calcul de l'évolution de la température de la particule avant, pendant et après son étalement est effectué à l'aide d'un programme développé sous LabVIEW®.

Lors d'une évolution non mesurable de la surface de la source de rayonnement (ici particule ou lamelle), la seule pyrométrie possible est la pyrométrie bichromatique décrite dans le paragraphe II-3.2.2. Cependant, la perturbation due au rayonnement plasma ne peut pas être supprimée totalement. Il s'avère qu'une voie peut être plus perturbée que l'autre. Le rapport des deux signaux est alors entaché d'erreur. Tant que le signal est suffisamment important devant la perturbation cela ne pose pas de problèmes. Cependant, cette pyrométrie peut être mise en défaut lorsque les signaux deviennent faibles. Il est alors judicieux de réaliser uniquement le rapport des signaux qui sont plus importants de 10 fois le bruit plasma. L'erreur relative commise est alors de moins de 200°C. Pour les signaux plus faibles, le calcul de la température se fait par pyrométrie monochromatique. En effet, même si une perturbation plasma existe, le fait de connaître la température de la lamelle en un point précis du thermogramme, permet de caler la température monochromatique en présence des perturbations et donc de s'en affranchir. Le calcul de la température monochromatique est alors réalisé en utilisant le signal le plus élevé et en considérant l'expression suivante déduite de la relation Eqn. II-1 p 51. Avec à cette technique, il est possible d'obtenir une précision absolue de 400°C sur la valeur de la température. Mais en relatif, l'erreur commise n'est plus que de ±100°C.

$$T_{mono(i)} = \frac{-C_2 / \lambda_2}{\ln \left\{ \frac{A_{T_{max}}}{A_{T_{mono(i)}}} \right\} + \ln \left\{ \frac{\varepsilon(T_{mono(i-1)})}{\varepsilon(T_{max})} \right\}} - \frac{C_2}{\lambda_2 \cdot T_{max}}$$

Avec : $C_2 = 1.4388 \cdot 10^{-2} \text{ m.K}$

$\lambda_2 = 812 \text{ nm}$

T_{max} = température mesurée lors du changement de méthode de calcul

$A_{T_{max}}$ = amplitude du signal à T_{max}

$A_{T_{mono(i)}}$ = amplitude du signal au point considéré

$\varepsilon(T_{max})$ = émissivité du matériau calculée à T_{max}

$\varepsilon(T_{mono(i-1)})$ = émissivité du matériau calculée à $T_{mono(i-1)}$

II-2.2.4 Techniques d'imagerie de l'impact des gouttes

Le système d'imagerie est fondé sur l'utilisation de deux caméras CCD rapides pointant selon deux directions. L'axe de la caméra 1 est disposé suivant un angle de 15° par rapport à la normale au substrat, permettant d'observer l'allure globale du phénomène

d'étalement (diamètre, localisation des éjections). L'axe de la caméra 2 est disposé tangentiellement au substrat afin d'observer les phénomènes d'éjections (angle et vitesse). Cependant, sur chacune des caméras doivent être disposées des lentilles additionnelles afin de permettre d'observer des objets de l'ordre de quelques microns, dans un milieu riche en poussière et en gaz chauds (2000-3000K). La solution retenue, précédemment à cette étude, est d'utiliser des microscopes longue distance (QUESTAR) positionnés à 55 cm du substrat. Afin d'améliorer la technique d'imagerie, il a été décidé d'utiliser des objectifs macros permettant de se rapprocher de la cible.

a) Caractéristiques du matériel utilisé

* Caractéristiques des caméras PCO CCD Sensicam 370

Les caméras utilisées peuvent fonctionner suivant différents modes, soit en exposition simple, soit en exposition multiple, avec des temps d'intégration de 100 ns à 1 ms. En mode « exposition multiple », il est possible de prendre un maximum de dix expositions avec des temps d'exposition et un retard spécifique entre chaque prise. Le début de l'acquisition sur chaque caméra est programmable en introduisant un délai au déclenchement. Il faut également prendre en compte les temps de réponse intrinsèques aux caméras et ceux dus à la longueur du câble. Le détail de ces temps est donné sur la Figure II-14. Les caractéristiques du capteur de marque SONY sont résumés dans le Tableau II-2.

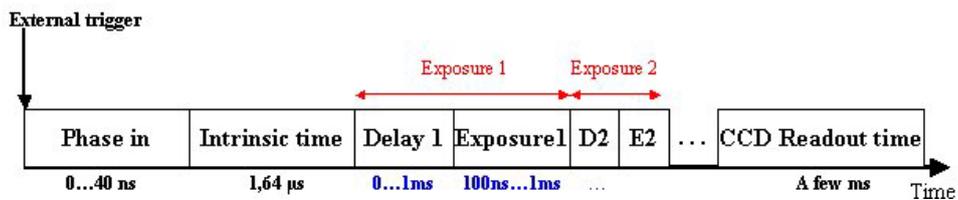


Figure II-14 : Détails des temps de la caméra PCO Sensicam

Tableau II-2 : Caractéristiques du capteur de la caméra PCO

Type de capteur	CCD - scan progressif
Nombre de pixels	1280 (H) x 1024 (V)
Taille du pixel	6,7 µm x 6,7 µm
Taille du capteur	8,6 mm x 6,9 mm
Type de refroidissement	Peltier double étage – air forcé
Température du capteur	-12°C
Fréquence de scan	12,5 MHz
Réponse spectrale	280 ... 1000 nm

* Caractéristiques du microscope longue distance QUESTAR QM1

Un microscope longue distance permet d'observer un champ de 3 mm^2 à une distance de 55 cm (Voir Figure II-15). En ajoutant une lentille entre le QUESTAR et la caméra, il est possible de jouer sur la taille du champ observé et donc de permettre d'avoir une meilleure résolution lors de l'observation d'objet de petite taille. Cependant, il n'est pas possible de descendre en dessous d'un champ de $1,2 \text{ mm}^2$. Plus la taille du champ est réduite, plus le signal lumineux est atténué. Cela est préjudiciable à une bonne observation. Par ailleurs, le diamètre d'entrée est de 85 mm.

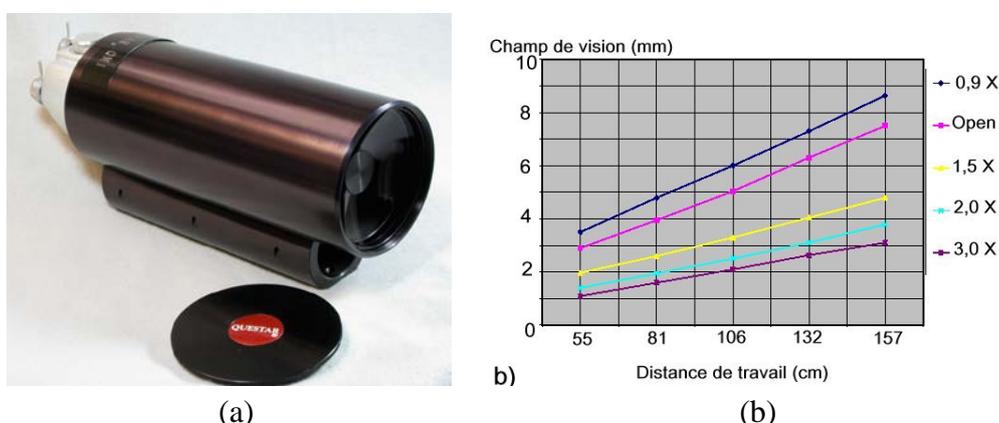


Figure II-15 : (a) Photographie du microscope longue distance QUESTAR et (b) champ de vision en fonction des lentilles utilisées et de la distance de travail.

* Caractéristiques de l'objectif Sigma 180 mm 1:3.5 APO Macro DG

Le choix de l'objectif s'est porté sur un objectif macro de la marque Sigma (monture Nikon) dont les caractéristiques sont reportées dans le Tableau II-3

Tableau II-3 : Caractéristiques de l'objectif Sigma

Construction optique	10-13
Diaphragme	9 lames
Ouverture minimale	32
Diamètre d'entrée	72 mm
Distance minimale de mise au point	25 cm



Figure II-16 : Photographie de l'objectif Sigma

Cet objectif peut recevoir des télé convertisseurs EX DG APO 2x Sigma permettant de diminuer par deux le champ observé, sans modification de la mise au point minimale, mais avec une perte de lumière équivalente à deux crans de diaphragme. Les télé convertisseurs peuvent être empilés pour conjuguer leurs effets. En utilisant deux télé convertisseurs par caméra, cela permet d'obtenir l'image présentée sur la Figure II-17 (a). Cependant, dans la majorité des cas, il n'est pas nécessaire d'avoir une taille d'image aussi importante. C'est la raison pour laquelle dans la suite des expériences, toutes les images sont recadrées afin de ne considérer qu'une zone de 776 x 655 pixels (Voir Figure II-17 (b)). La calibration de l'image permet de trouver une résolution de 0,5 pixels/ μm .

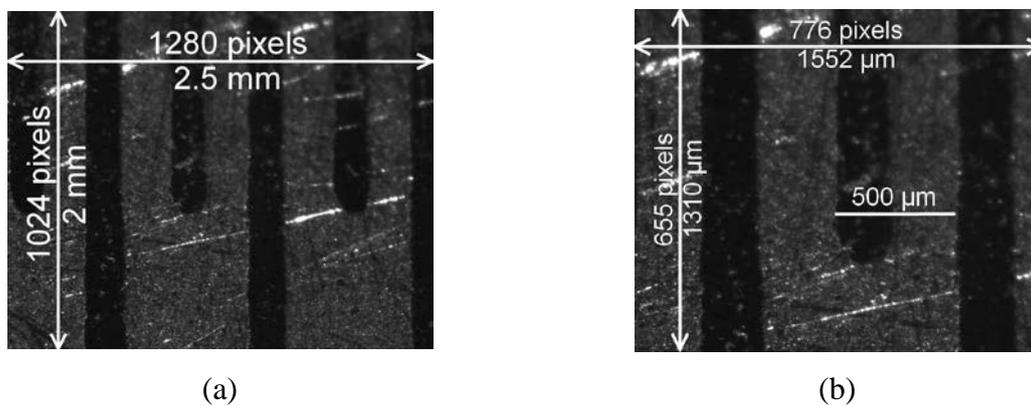


Figure II-17 : (a) Taille du champ vu par les caméras munies de l'objectif Sigma et de deux télé-convertisseurs, (b) taille de l'image après recadrage.

Il est nécessaire de bien connaître la profondeur de champ afin de mieux appréhender le matériel utilisé. Pour cela, il est utilisé un substrat sur lequel une lamelle d'alumine est déjà présente (lamelle obtenue sur substrat froid), la caméra est focalisée dessus et le substrat est translaté selon les X croissants, jusqu'à perdre la focalisation.

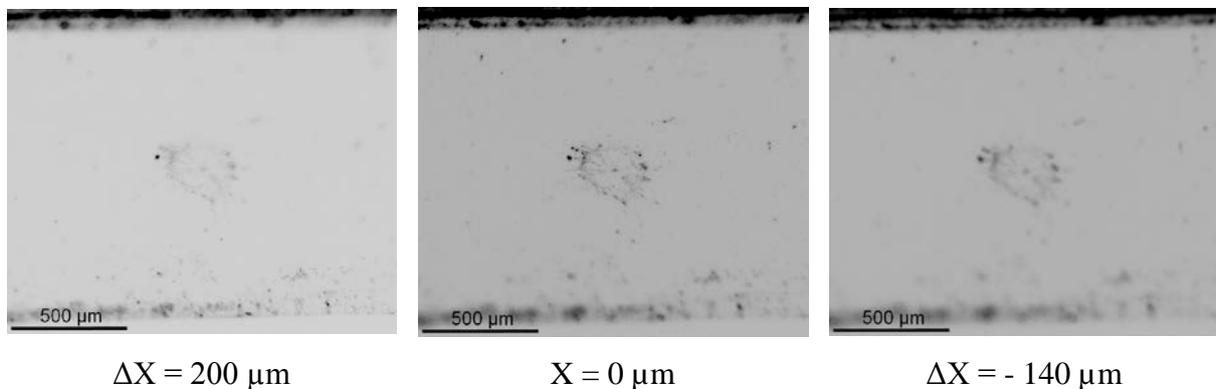


Figure II-18 : Photographies d'une lamelle déposée sur une surface pour différentes positions en X du substrat, la position $X=0$ correspond au point de focalisation.

Cette opération est recommencée dans l'autre sens, afin de faire une moyenne. Les photographies présentées sur la Figure II-18 sont alors obtenues. La profondeur de champs peut donc être estimée à $170 \mu\text{m} \pm 30\mu\text{m}$.

b) QUESTAR ou objectif macro ?

Les études précédentes mettaient en œuvre des microscopes longue distance afin de s'éloigner de la torche plasma générant des gaz chauds. Cependant, en s'éloignant, une diminution de la lumière captée par le QUESTAR est induite. Par ailleurs, le QUESTAR est volumineux et lourd, induisant des réglages difficiles. L'étude précédente a montré que l'ensemble Caméra Questar présentait une profondeur de champs de $500 \mu\text{m}$.

L'objectif Sigma, du fait de sa taille et sa distance focale, peut être facilement disposé sur le marbre et réglé grâce à la bague de mise au point.

L'angle d'ouverture est de $4,4^\circ$ dans le cas du QUESTAR focalisé à 55 mm (ouverture de 85 mm) et de $8,2^\circ$ pour l'objectif focalisé à 25 mm (ouverture de 72 mm). Ce qui donne un avantage à l'objectif en terme d'angle solide et donc en intensité lumineuse collectée. Cela impose de se rapprocher de la zone des gaz chauds, il est donc nécessaire de placer des barrières d'air pour protéger les objectifs.

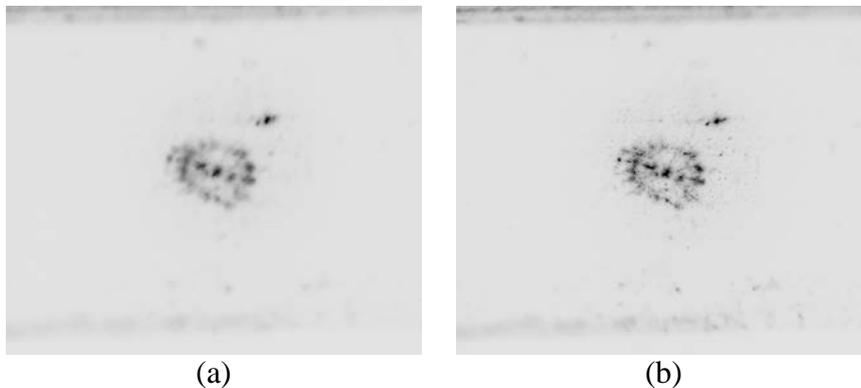


Figure II-19 : Netteté de l'image (focalisée à froid) obtenue torche plasma allumée, (a) sans, (b) avec barrière d'air

Or, le trajet optique des deux caméras traverse juste dans la zone d'air chaud provenant de la torche plasma. Il ne suffit donc pas de protéger l'objectif, mais il est également nécessaire de conserver la même température d'air tout le long de la trajectoire des rayons lumineux, afin d'éviter une modification de l'indice de réfraction qui induirait une modification du point de focalisation. Pour ceci, un bouclier refroidi a été ajouté, pour gagner

l'écoulement des gaz plasma, mais également supprimer les rayonnements parasites. Juste au-dessus de ce bouclier, est ajouté un courant d'air comprimé, afin d'imposer une température d'air sur le dessus du système. La Figure II-19 présente le cas de l'image d'une lamelle déposée par un tir précédent et éclairée par le rayonnement plasma (bouclier en position travail) avec et sans barrière d'air.

c) Conclusions

La technique d'imagerie retenue est donc l'utilisation sur chaque caméra d'un objectif macro Sigma 180 mm avec deux téles convertisseurs X2. Cela permet, après recadrage, d'obtenir une image de 1,5mm x 1,3 mm, avec une résolution de 0,5 pixels/ μm et une profondeur de champ de 170 μm . Sur le trajet optique des caméras, la température de l'air est maintenue constante. Avec ces caméras, il est donc possible de mesurer le diamètre d'étalement maximal, mais également le diamètre de la particule incidente.

II-2.2.5 Automatisation du dispositif

a) Commande du bouclier

Dans le but de faciliter le repérage de la particule ayant impacté sur la surface il est nécessaire de fermer le plus rapidement possible le bouclier pour éviter l'impact d'une autre goutte. Pour ceci, la vanne commandant le piston doit être à double action. Une position repos, correspondant au bouclier fermé, et une position travail pour laquelle le piston est en position ouverte, permettant le passage des particules. Une action de type manuelle sur cette vanne n'est pas souhaitable car pendant le temps de réaction, les particules continuent à s'accumuler. Une vanne électronique est un bien meilleur choix car cela permet de la contrôler, par l'intermédiaire d'un programme informatique, avec un temps de fermeture court (1 ms). La vanne choisie est de type monostable. En l'absence de courant traversant la bobine de la vanne, le bouclier est en mode repos et dès que la vanne est alimentée, le bouclier se place en mode travail.

b) Commande de l'injection de poudre

Il est judicieux de déclencher l'injection de la poudre à distance, afin de ne pas entraîner l'obstruction des trous aménagés dans les différents boucliers. Pour ce faire, l'alimentation électrique du distributeur est également commandée.

c) Commande de la barrière d'air imagerie

La barrière d'air imagerie étant située non loin du substrat, elle peut entraîner, du fait des turbulences, un refroidissement non souhaité. Or, comme elle n'est utile que lorsque les caméras prennent une image, elle est également pilotée à distance par l'intermédiaire d'une électrovanne. Les autres barrières d'air servant de protection pour les objectifs ne sont pas synchronisées et sont commutées en même temps que la torche à plasma.

d) Procédure

L'électrovanne et le distributeur de poudre sont des appareils électriques nécessitant une puissance électrique de plusieurs Watts au démarrage. Une commande directe par une carte LabVIEW n'est donc pas possible. La solution retenue est de passer par l'intermédiaire d'un relais statique de type NPN nécessitant peu de courant (2 mA) et commandé à partir d'une tension de 3V, mais permettant de commuter de fortes charges (220V, 3A) en un temps bref (1 ms). Pour commuter ces relais, les sorties 5V de la carte LabVIEW sont utilisées.

La procédure de synchronisation est entièrement gérée par un programme développé au laboratoire, spécialement pour cette application. La seule action de l'utilisateur est de lancer l'application. Cela permet de s'affranchir des multiples impacts sur la surface du substrat. Mais également de soumettre le substrat au jet plasma pendant un temps déterminé et reproductible d'une expérience sur l'autre, et éviter les désagréments d'un tir trop long (déréglage du fait de la dilatation des parties métalliques).

e) Validité du déclenchement

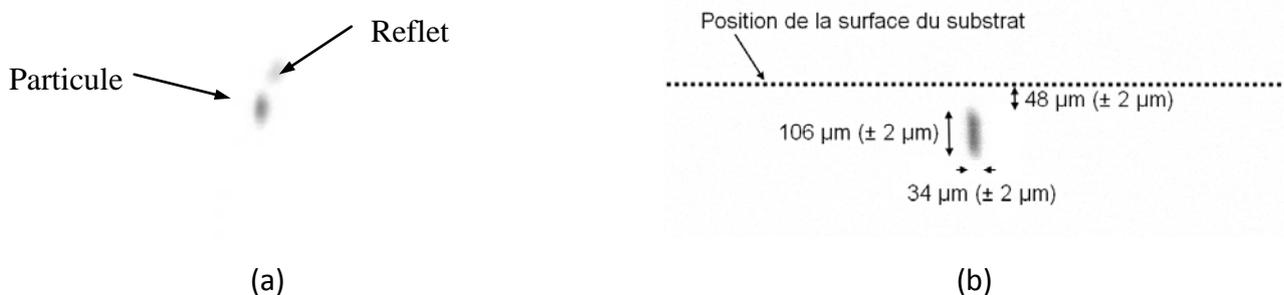


Figure II-20 : Visualisation de la trajectoire ($t_{\text{exp}}=1\mu\text{s}$) d'une particule d'alumine juste avant l'impact sur le substrat (a) vue de la caméra 1 (b) vue de la caméra 2

Une mesure de la trace de la particule, sur les images obtenues par les différentes caméras (Figure II-20), permet de trouver un déplacement effectif de $106 \mu\text{m}$ et donc une vitesse de $106 \text{ m/s} \pm 2 \text{ m/s}$ ($t_{\text{exp}}=1\mu\text{s}$). D'après la position du substrat, la particule doit encore parcourir $48 \mu\text{m}$ avant d'impacter le substrat ce qui correspond à un temps « de vol » de $0,46\mu\text{s} \pm 0,03\mu\text{s}$. La position du substrat est obtenue grâce au reflet produit par la particule à la surface du substrat poli miroir.

En prenant en compte la vitesse de la particule calculée par le système de mesure en deux points et égale à 110 m/s , il est possible de remarquer que les mesures réalisées sur la trace de la particule sont valides.

Il s'agit maintenant de localiser, sur les signaux pyrométriques, le moment de l'impact. Le temps $t=0$, sur la Figure II-21, correspond à la génération de l'impulsion de déclenchement. L'imprécision sur ce point correspond à la fréquence d'acquisition de la carte, soit $0,01 \mu\text{s}$. Pour localiser le moment de l'impact, le point d'inflexion, correspondant à l'impact de la particule suivi de l'étalement, sert de référence. Afin d'éviter une éventuelle erreur sur la détermination de ce point, il est déterminé sur les signaux bruts (croisement des deux droites, Figure II-21).

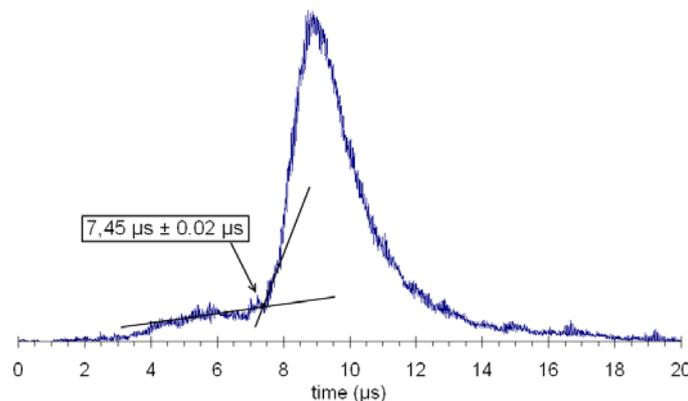


Figure II-21 : Signal pyrométrique brut recueilli en sortie du pyromètre, le temps $t=0$ correspond à la génération de l'impulsion de déclenchement. Le croisement des deux droites permet d'en déduire le moment de l'impact.

Le déclenchement de la caméra va dépendre du temps de réponse intrinsèque de la caméra donné à $1,64 \mu\text{s}$ pour un fil de 1 m et du délai à l'acquisition spécifié par l'utilisateur. Dans le cas précédent, ce délai est de $4 \mu\text{s}$ et le temps d'exposition est de $1 \mu\text{s}$. Théoriquement, l'enregistrement caméra doit donc démarrer à $t = 5,64\mu\text{s}$ et s'arrêter à $t =$

6,64 μ s. Or, d'après les calculs précédents, l'enregistrement caméra s'est terminé 0,46 μ s \pm 0,03 μ s avant l'impact, ce qui correspond à environ $t = 7\mu$ s. D'après les caractéristiques caméras, la précision sur le temps d'exposition est de 0,1 μ s. L'erreur provient donc du retard au déclenchement, qui n'est pas de 1,64 μ s mais plutôt de 2 μ s \pm 0,03 μ s. Cette différence provient de la longueur du câble, différente de celle spécifiée par le constructeur.

Dans la suite du manuscrit, le temps $t=0$ correspond au moment de l'impact et le retard intrinsèque des deux caméras est de 2 μ s.

II-2.3 Le porte substrat

Le porte substrat doit pouvoir remplir deux fonctions : chauffer et refroidir le substrat. Pour ceci, du fait de la conductivité thermique, le choix s'est porté sur un bloc de cuivre, dans lequel se trouvent des crayons chauffants et un circuit d'eau sous pression de 1 MPa.

Les crayons chauffants sont reliés à une unité de contrôle permettant de donner une température de consigne à ne pas dépasser. Cette unité de contrôle est composée d'un pyromètre visant la surface et permettant de mesurer la température servant de repère pour la consigne. Pour chaque température de consigne, la puissance de chauffe est différente, ce qui permet de chauffer le substrat plus ou moins rapidement.

Dans la suite des études, afin de connaître au mieux l'histoire thermique d'un substrat, sont précisés la température maximale atteinte et le temps de chauffe total.

Une fois, le substrat chauffé et la lamelle déposée, le problème principal provient de la vitesse de refroidissement du système, qui peut mettre jusqu'à 20 min pour revenir à température ambiante. Pendant ce temps, le substrat et/ou la lamelle, dans le cas du NiAl, peuvent continuer à s'oxyder. C'est pour cette raison qu'un système de refroidissement d'eau sous pression est inséré dans le porte substrat. Ce système est déclenché après l'impact d'une particule sur le substrat, en même temps que l'arrêt du chauffage. Ceci permet de revenir à la température ambiante en moins de 2 min.

Dans ce dispositif, la taille standard des substrats est de 15 mm x 5 mm x 1,5 mm, la zone d'impact étant la surface 5 mm x 1,5 mm.

II-3/ Dispositif millimétrique

Dans cette partie est présenté le système permettant d'étudier l'impact d'une particule de taille millimétrique (5 mm) sur la surface d'un substrat froid, chaud, ou préchauffé. Ici, le temps de réponse des différents appareils de mesure n'est plus un problème du fait de l'augmentation de taille de la particule. Les phénomènes n'ont plus lieu à la microseconde mais se produisent à l'échelle de la milliseconde. Cela permet d'utiliser des caméras dites rapides (4000 im/s). La mesure de la température se fait par la méthode de la pyrométrie bichromatique. L'avantage d'un tel banc d'étude est de pouvoir suivre la dynamique de l'étalement de la particule, afin de comprendre au mieux les phénomènes se produisant à l'échelle de la particule de taille micrométrique. Il permet de plus d'étudier l'influence de l'état de surface du substrat et de la particule (oxydes, état de fusion...) sur le processus d'étalement. Cependant, il est nécessaire de connaître dans quelle mesure les résultats sont comparables entre les deux échelles d'impact. Pour ce faire, il a fallu développer un système permettant, par l'intermédiaire d'un piston pneumatique, de déplacer verticalement le substrat.

II-3.1 Caractéristique du dispositif de projection

II-3.1.1 Le générateur de goutte

Le système de production des gouttes céramiques ou métalliques, à partir de fil ou baguette, est composé d'une cathode en forme de pointe et d'une anode plate. L'avantage de cette configuration est d'améliorer la stabilité de la goutte en fusion, en équilibrant les forces du jet cathodique avec celles du jet anodique. Le mouvement de la baguette ou du fil est assuré par une crémaillère motorisée. Le contrôle du moteur se fait manuellement, ce qui permet d'obtenir une goutte parfaitement fondue. Une fois que les forces de pesanteur dépassent celles de la tension superficielle, la goutte se détache. Elle passe alors à travers un collecteur en nitrure de bore, qui permet d'améliorer la localisation de l'impact sur le substrat. Afin d'éviter l'oxydation des électrodes, le système est entouré d'une enceinte sous atmosphère d'argon. Cette chambre permet le passage du barreau ou du fil à fondre ainsi que du système de centrage.

II-3.1.2 Les matériaux fondus

Avec le type de système développé, il suffit de trouver sous forme de fil ou de barreau le matériau dont l'étalement doit être étudié. Afin de conserver une cohérence avec le système micrométrique, deux matériaux sont étudiés :

- Al_2O_3 , DEGUSIT Al23 de Umicore, baguette $\Phi = 3 \text{ mm}$, pur à 99,7%

- NiAl (5%), SM 8400 de Sulzer substrat, fil $\Phi = 1,5 \text{ mm}$, l'aluminium est situé au centre du fil

II-3.2 Métrologie

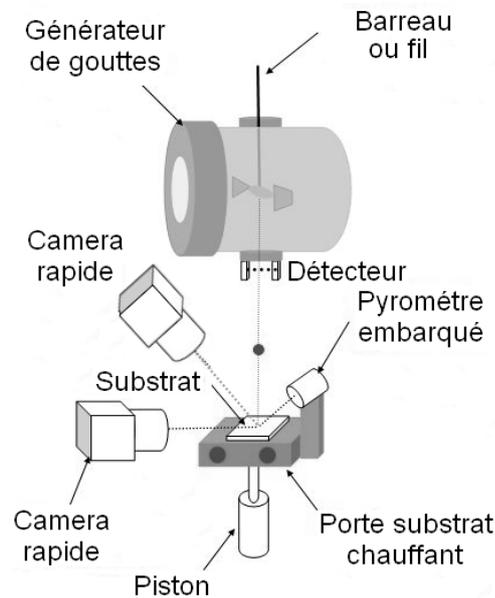


Figure II-22 : Schéma du dispositif de caractérisation de l'impact de goutte de taille millimétrique

La compréhension des phénomènes ayant lieu à l'impact impose de connaître l'état « en vol » de la particule (fondue ou semi-fondue), ainsi que sa vitesse juste avant impact. Il est également nécessaire de connaître les phénomènes se produisant lors de l'étalement (refroidissement, présence d'éjections de matière, forme de l'étalement...).

Le but de ce paragraphe est de présenter la métrologie et la technique d'imagerie utilisées dans le dispositif de suivi de l'impact des particules de taille millimétrique. En effet, dans ce dispositif (voir Figure II-22), divers systèmes de mesure sont utilisés :

- Substrat mobile permettant une augmentation de la vitesse d'impact.
- Pyrométrie pour la mesure de la température « en vol » et à l'impact.
- Caméra rapide (4000 im/s) pour la mesure de la vitesse d'impact et le suivi de l'étalement.

II-3.2.1 Modification de la vitesse d'impact de la goutte

L'inconvénient principal de l'étude millimétrique repose sur la vitesse d'impact de la goutte. En effet, les vitesses d'impacts obtenues par les autres auteurs permettent seulement d'égaliser les nombres de Reynolds. Les seuls travaux étudiant l'impact à haute vitesse ont été réalisés avec l'utilisation d'un plateau rotatif introduisant une force centrifuge pouvant modifier l'écoulement à la surface du substrat. Ce système ne peut pas être utilisé pour le dispositif développé ici, car la chute de la goutte ne peut être déclenchée de façon automatique. Il est donc nécessaire d'utiliser un système pouvant entrer en action lors de la détection de la chute de la goutte.

Le dispositif retenu repose sur l'utilisation d'un vérin pneumatique, nommé piston dans la suite du texte, pouvant atteindre une vitesse maximale de 6 m/s. Pour atteindre cette vitesse, la sortie de l'air est directe. Le débit d'air fourni au piston est contrôlé par une électrovanne à deux positions : fermée (piston immobile) / ouverte (piston en mouvement).

Le substrat est alors fixé au bout du piston qui se met en mouvement vertical ascensionnel en direction de la goutte tombant sous l'action de son propre poids avec une vitesse initiale nulle. La vitesse de la goutte en chute libre est calculée par l'équation suivante : $v^2=2gh$, où v est la vitesse de la particule, g l'accélération de la pesanteur et h la distance entre la zone d'impact et le générateur de goutte. Lors de l'impact, la vitesse relative de la goutte par rapport au substrat peut aller jusqu'à 10 m/s, ce qui permet d'approcher les nombres de Weber obtenus en projection thermique ($We_0=2300$). Le problème principal de ce dispositif est l'arrêt brutal du piston en fin de course, qui perturbe complètement l'écoulement de matière. Il est donc nécessaire de prévoir une course suffisante pour permettre d'observer complètement la phase d'étalement, la phase de refroidissement de la lamelle ne pouvant être étudiée à haute vitesse.

II-3.2.2 Mesure de la température « en vol » et à l'impact

La mesure de la température se fait selon le même principe que celui décrit dans le paragraphe II-2.2.3 (p.51). Dans le cas de l'impact millimétrique, du fait de la quantité de matière à refroidir, les vitesses de refroidissement sont beaucoup plus lentes. Cependant, il est nécessaire de mesurer l'évolution de la température durant les tous premiers instants de l'étalement. Ainsi, pour faciliter l'étude, deux pyromètres sont utilisés : un rapide (50 ns) et un lent (10 ms). Le pyromètre rapide est fixé sur le support du substrat afin de permettre de mesurer l'évolution de la température lors de l'impact à grande vitesse (Voir Figure II-23 (a)). Il emploie les mêmes composants que le pyromètre utilisé dans le cas du système micrométrique. Les seules différences proviennent du fait que, dans ce cas, la résistance en sortie du détecteur est de 10 k Ω et qu'aucune optique n'est utilisée. Le signal est recueilli en utilisant directement une fibre optique de diamètre 1 mm positionnée à 20 mm du substrat, ce qui donne une zone de mesure de 10 mm X 5 mm (voir Figure II-23 (b))

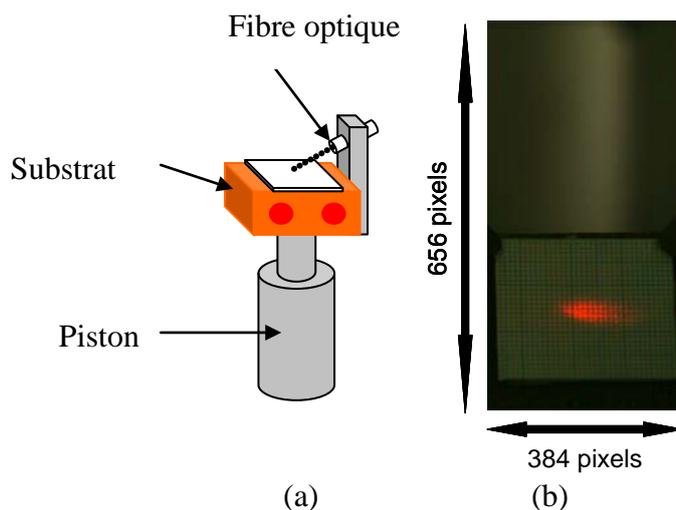


Figure II-23 : (a) Schéma du dispositif de pyrométrie rapide embarqué, (b) champ vu par la caméra et par le pyromètre (tache laser rouge)

Le pyromètre à réponse (ms) lente (modline 5) est fixe et son spot de visée est ajusté à la zone vue par la fibre optique. Il n'est pas utilisé dans le cas de l'impact à haute vitesse.

II-3.3 Techniques d'imagerie

Les phénomènes se déroulant à l'échelle millimétrique sont beaucoup plus lents qu'à l'échelle micrométrique, ce qui permet d'utiliser des caméras rapides avec des cadences de 4000 im/s. La caméra utilisée est une photron FASTCAM 1024 PCI. L'objectif utilisé est identique à celui utilisé pour le dispositif micrométrique, c'est-à-dire, un sigma 180 mm

macro $f/2,8$. Cependant, ici aucun télé-convertisseur n'est utilisé. Suivant les conditions d'impact, la caméra est placée tangentiellement ou à 45 degrés du substrat.

La caméra rapide peut être synchronisée par l'intermédiaire d'un signal TTL (+5V; 5 μ s; front montant) ou fonctionner en manuel par l'intermédiaire d'un bouton poussoir, suivant le mode de déclenchement choisi. Le délai intrinsèque de la caméra au déclenchement est d'environ 1,65 μ s en mode TTL, et de 26 μ s en mode manuel. La caméra possédant une mémoire « tournante », différents types de déclenchement existent : début, milieu, fin. Les caractéristiques de la caméra sont données dans le Tableau II-4.

Tableau II-4 : Caractéristiques de la caméra rapide FastCam PCI

Résolution maximale	1024 x 1024, 10 bits
Taux d'image maximal (pleine résolution)	1000 Images/s (1024 x 1024)
Maximum du taux d'image	109 500 Images/s (128 x 16)
Mémoire caméra	2GB ; 1,54 s (1024 x 1024)
Taille du capteur	17,4 mm x 17,4 mm
Taille du pixel	17 μ m x 17 μ m
Type de capteur	Couleur (Bayer)

Dans la suite des expériences, comme la taille de l'image varie en fonction de la fréquence d'acquisition des images, les paramètres d'acquisition sont donc précisés sur chaque série d'images.

II-3.4 Déclenchement des appareils de mesure

Un détecteur de type barrage, positionné en sortie de la chambre et couplé à un relais statique, permet de générer un pulse de tension (5V) lors du passage d'une goutte dans le volume de mesure. Cela permet de déclencher la caméra rapide et la carte d'acquisition pyrométrique. Les caractéristiques du détecteur sont données dans le Tableau II-5.

Un programme fonctionnant sous l'interface LabView permet d'introduire un délai au déclenchement des pyromètres et du piston pneumatique afin de ne commencer la mesure que lorsque la particule rencontre le substrat.

Tableau II-5 : Caractéristiques du détecteur utilisé pour déclencher les divers appareils

Référence	Télémécanique XUD A2PSML2
Vitesse de commutation	5 kHz
Retard au déclenchement	0,1 ms

Pour connaître précisément le délai à appliquer lors du mouvement du substrat, il faut, tout d'abord, positionner le substrat à l'endroit où il doit rencontrer la goutte. Puis une goutte est générée, piston fixe, est alors obtenu, grâce à l'enregistrement caméra rapide (démarré au moment du passage de la goutte devant le détecteur), le moment où la particule entre dans la zone d'impact. Il suffit ensuite de faire varier le délai de déclenchement du piston pour que le substrat entre au même moment dans la zone d'impact. Un exemple de synchronisation est donné sur la Figure II-24.

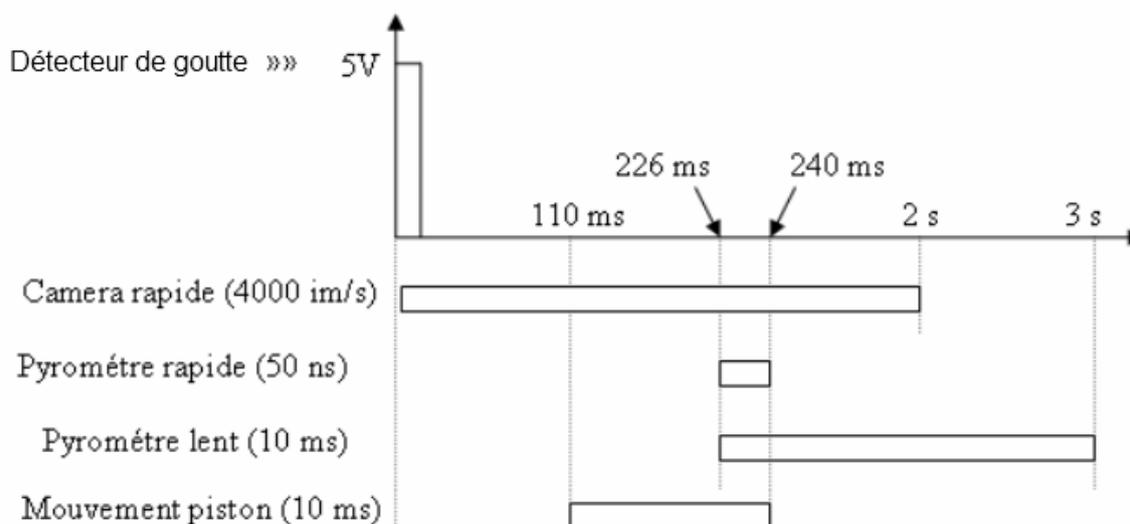


Figure II-24 : Procédure de déclenchement des différents systèmes composant le dispositif millimétrique

II-3.5 Le porte substrat

Dans le cas du dispositif millimétrique le porte-substrat ne sert qu'à chauffer le substrat. En effet, du fait du mouvement du substrat, il est nécessaire d'avoir un porte-substrat le plus léger possible. L'ajout d'un système de refroidissement par eau empêcherait le mouvement vertical. Dans le cas de ce système, il est nécessaire d'enlever le substrat le plus vite possible et de le disposer, pour le refroidir, sur un morceau de cuivre à température ambiante. Le processus de chauffage est contrôlé par un pyromètre monochromatique. Et le chauffage est assuré par deux crayons chauffants de 250W chacun. Ce qui permet d'obtenir une température de substrat jusqu'à 400°C.

Dans ce dispositif, la taille standard du substrat est de 30 mm x 25 mm et l'épaisseur de 3 mm.

II-3.6 Travail en atmosphère peu oxydante.

Dans certains cas, il peut être intéressant de travailler en atmosphère neutre. Pour cela un tube en inox, disposé le long de la trajectoire de la goutte, permet de l'isoler par rapport à l'air ambiant. Et une chambre en plexiglas permet d'isoler le substrat de l'air extérieur, tout en conservant la possibilité de déplacement de la cible.

Cependant, le système n'est pas hermétiquement clos (fuite au niveau de l'entrée du barreau par exemple). Afin d'éviter l'entrée d'oxygène, une surpression en argon est maintenue dans le dispositif. L'entrée de l'argon se fait du bas vers le haut du dispositif, avec une entrée d'argon à mi-parcours. Le balayage d'argon dure 10 min avant chaque expérience en atmosphère non oxydante. Lors de l'allumage de l'arc électrique, la présence d'oxygène peut être détectée sur le comportement des électrodes en tungstène (vapeur verte aux électrodes en présence d'oxygène).

II-4/ Les substrats utilisés

Les substrats utilisés sont de deux types, afin de pouvoir observer les modifications qu'entraîne le changement du substrat sur l'étalement de la goutte, son refroidissement, et le phénomène d'éjection. Il a été choisi des substrats avec des conductivités thermiques différentes, pour étudier les effets thermiques, et une résistance à l'oxydation améliorée, pour éviter la croissance d'une couche d'oxyde trop épaisse lors du chauffage. Le premier substrat sélectionné est un acier inoxydable de type 304L, du fait de ses nombreuses utilisations en projection thermique, le deuxième est un substrat d'alliage de titane de type Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo, du fait de son utilisation dans le milieu aéronautique (moteurs d'avions) et sa résistance à l'oxydation jusqu'à 540°C.

Les substrats sont polis miroir, en utilisant du papier SiC jusqu'au grain 4000.

La composition chimique ainsi que les propriétés physiques des deux matériaux sont résumées dans l'Annexe 1

II-5/ Les moyens d'analyses

Dans cette partie sont présentées les techniques de caractérisations (optiques, morphologiques, et chimiques) qui ont été utilisées dans cette étude.

II-5.1 Caractérisation microscopique

Les micrographies optiques ont été réalisées avec un microscope NIKON ECLIPSE LV100 permettant des grossissements allant de 50 à 1000. Elles sont numérisées par une caméra NIKON DS-Fi1, reliée à un ordinateur via l'unité de contrôle NIKON DS-U2. Un logiciel de traitement d'images (NIKON NIS-Elements BR 3.0) permet de régler les paramètres d'acquisition de la micrographie et de l'exporter au format image.

Les observations en microscopie électronique à balayage ont été réalisées sur un appareil XL30, équipé d'un dispositif EDS, avec un détecteur silicium-lithium, permettant d'identifier de façon semi quantitative tout élément dont la masse molaire est supérieure à celle du carbone.

Les observations en microscopie avec sonde à effet de champs ont été réalisées à l'Université de Chalmers en Suède sous la direction du Pr Uta Klement et du Dr Manjusha Mattaya sur un appareil haute résolution Leo Gemini FEG, équipé également avec une sonde EDS.

Pour les analyses de topographie de surface, un microscope AFM picoscan de Molecular Imaging a été utilisé, ainsi qu'un microscope interférométrique.

II-5.2 Caractérisation par spectroscopie de photoélectrons (XPS)

La spectroscopie de photoélectrons de rayons X permet d'analyser l'énergie cinétique des électrons émis par un atome à la suite d'une irradiation de rayons X monochromatiques. La profondeur d'analyse est fonction de l'énergie cinétique, ainsi, seuls les électrons provenant d'une épaisseur inférieure à trois fois la longueur d'atténuation peuvent être caractérisés. Dans le cas du fer, du nickel et du chrome, la profondeur d'analyse correspond aux trois premiers nanomètres de la surface. Or, l'énergie cinétique des électrons émis est directement reliée à l'énergie de liaison d'où ces électrons proviennent. Il est donc possible d'obtenir l'énergie de liaison des espèces en présence. Les photoélectrons sont décrits suivant

les nombres quantiques n (couche électronique ou niveau d'énergie), l (moment angulaire orbital de l'électron) et j (moment angulaire total : somme de l et du spin s). Par exemple, lorsque $n=2$, $l=1$ et $j=3/2$, la notation utilisée en XPS pour décrire cet état spectroscopique est $2p_{3/2}$.

A partir de l'énergie des électrons émis, des informations sur la composition du matériau peuvent être accessibles. Un spectre global est alors obtenu, avec en abscisse, l'énergie de liaison (0 à 1100 eV) et, en ordonnée, le nombre de coups. Cela permet d'avoir une idée générale des espèces présentes dans la zone d'analyse, mais ne permet pas une analyse fine des états spectroscopiques du fait de sa faible résolution en énergie.

Afin d'avoir une idée précise des éléments et de leur environnement, il est nécessaire d'augmenter la résolution en énergie. Des spectres haute résolution sont alors obtenus. Leur analyse, par déconvolution des profils, impose de soustraire le fond continu (chocs inélastiques). Pour cela, la soustraction utilisée est de type Shirley [182].

Les spectres haute résolution sont obtenus avec l'aide d'un spectromètre Kratos Axis Ultra, utilisant une source monochromatique Al $K\alpha$ (1486,6 eV), obtenue avec une tension d'accélération de 15 kV et un courant de 12 mA. L'aire d'analyse est de $300 \times 700 \mu\text{m}^2$. Afin de s'affranchir des perturbations induisant un décalage de tous les pics, le spectre est corrigé en utilisant le carbone, toujours présent en surface quel que soit l'échantillon. La raie spectroscopique prise comme référence est la $1s$, d'énergie égale à 285 eV.

II-6/ Conclusions sur les dispositifs expérimentaux

L'état de l'art a montré qu'il existait des lacunes dans la compréhension de l'impact de particules métalliques et céramiques et qu'il était nécessaire de suivre l'étalement des particules à l'échelle micrométrique et millimétrique. Grâce aux dispositifs expérimentaux développés dans cette étude, il est maintenant possible d'étudier l'étalement aux deux échelles, et pour différents types de matériaux (céramiques ou métalliques).

A l'échelle micrométrique, il est possible de :

- Sélectionner une seule particule sur la trajectoire moyenne des particules.
- Mesurer la vitesse (± 5 m/s), la température ($\pm 100^\circ\text{C}$) et le diamètre ($\pm 4\mu\text{m}$) de la particule « en vol ».

- Mesurer la vitesse de trempe et la vitesse d'étalement grâce aux signaux pyrométriques (procédure décrite par la suite).

- Observer la chronologie de l'étalement et le processus d'éjection (procédure décrite par la suite).

A l'échelle millimétrique, il est possible de :

- Suivre l'étalement de la particule pour des plages de vitesse de 1 m/s à 10 m/s, et donc de se rapprocher des nombres de Weber obtenus à l'échelle micrométrique.

- Suivre le refroidissement de la particule

Chapitre III : Phénomènes thermiques et hydrodynamiques lors de la formation de la lamelle

III-1/ Introduction

L'impact d'une goutte liquide joue un rôle important dans beaucoup de procédés. Cependant, il a été vu dans le paragraphe I-3/ que la compréhension de la formation de la lamelle est complexe du fait des temps très courts d'étalement et de solidification. Afin de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu lors de l'étalement, ce chapitre présente des résultats expérimentaux portant sur des impacts de gouttes céramiques et métalliques à deux échelles différentes, sur des substrats inoxydables de type 304L et de type Ti-6242, maintenus à différentes températures.

Le but de cette partie est d'analyser les mouvements de matière pour comprendre l'effet de la viscosité et de la tension superficielle sur la forme finale de la lamelle, mais également d'appréhender et d'expliquer l'origine de la température de transition.

Dans un premier temps, il est étudié l'impact de particules de taille micrométrique et dans un deuxième temps, l'impact de gouttes de taille millimétrique. La dernière partie consiste en une comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes.

III-2/ Echelle micrométrique

L'étude des phénomènes hydrodynamiques et thermiques ayant lieu lors de l'impact d'une particule micrométrique, sur un substrat froid ou sur un substrat préchauffé, impose de connaître au mieux les différents phénomènes. Ce paragraphe a pour but de comparer le cas de deux matériaux différents impactant deux types de substrat. Pour ce faire, la même procédure est appliquée aux deux matériaux : dans un premier temps, paragraphe III-2.1.1, est évaluée la température de transition en utilisant la pyrométrie et l'imagerie, dans un deuxième temps, paragraphe III-2.1.2, la visualisation par décalage temporel des prises de vue permet de mieux préciser le phénomène d'éjection de matière se produisant sur un substrat froid ou chaud.

III-2.1 Etude de l'impact d'une goutte céramique : Al_2O_3

Le but de ce paragraphe est d'étudier l'influence de la nature du substrat sur la dynamique d'étalement d'une particule d'alumine d'un diamètre compris entre 40 μm et 50 μm , ayant une vitesse d'environ 240 m/s, et une température à l'impact de 2500°C.

III-2.1.1 Détermination de la température de transition

Afin de pouvoir étudier la température de transition, il est nécessaire d'effectuer des impacts sur un substrat chauffé dans différentes conditions. Dans le cas du substrat en acier inoxydable (type 304L), l'influence du temps de préchauffage à température constante, est étudiée. Cela permet de définir une procédure qui est ensuite appliquée aux autres cas. Dans tous les cas, l'évolution de température de la surface du substrat est précisée, et pour simplifier la compréhension, la notation des conditions de chauffage indique la température maximale atteinte (T_{\max}) et le temps de chauffage (t_{chauffe}), la notation se faisant de la sorte : $T_{\max} / t_{\text{chauffe}}$.

a) Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable (304L)

Afin de pouvoir déterminer avec précision les conditions permettant d'obtenir des lamelles sous forme de disques, différentes expériences ont été menées en faisant varier la température du substrat et le temps de préchauffage.

Afin d'éviter de surcharger le manuscrit, lorsque le temps de préchauffage n'a plus aucune influence sur la forme de la lamelle, il n'est présenté que le cas possédant le temps de préchauffage minimal. C'est par exemple le cas d'un substrat chauffé suivant les conditions $80^\circ\text{C} / 10 \text{ min}$, où aucune amélioration dans la forme de la lamelle n'est détectée si le temps de chauffe est augmenté. Dans les cas où, pour des conditions données, des formes de lamelles différentes sont observées, seuls les cas rencontrés majoritairement sont présentés.

Par ailleurs, une fois que des lamelles dites parfaites sont obtenues (en forme de disque avec peu d'éjections périphériques), la température de transition est considérée comme dépassée et l'étude s'arrête là. Par exemple, l'effet d'un chauffage au-delà de la température de transition n'est pas étudié. Cependant, l'influence de la température du substrat sur l'étalement de la goutte est examinée afin de savoir si la forme de la lamelle est plutôt liée à la température du substrat ou aux conséquences du préchauffage. Pour ce faire, l'impact sur un substrat à température ambiante (25°C) est étudié pour différents temps (1min, 24h), après un préchauffage du substrat dans les conditions nécessaires pour obtenir des lamelles en forme de disque.

Les conditions de préchauffage sont celles résumées sur la Figure III-1. Quatre conditions de températures différentes sont étudiées :

- Substrat à température ambiante (20°C)
- Substrat chauffé à 80°C / 10 min (courbe noire)
- Substrat chauffé à 170°C / 10 min ; 14 min ; 16 min ; 25 min (courbe verte)
- Substrat chauffé à 200°C / 10 min (courbe rouge)

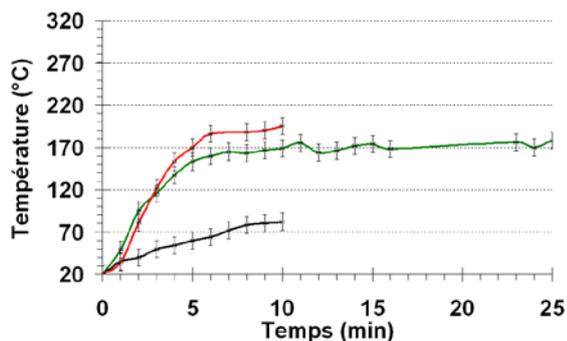


Figure III-1 : Evolution de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage.

* Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante

Dans le cas de l'impact sur un substrat froid, l'étalement de la matière sur la surface est important (voir Figure III-2) et ne se fait pas de manière uniforme. En effet, il est possible de remarquer sur la Figure III-2 (a), correspondant à l'image prise par la caméra 1 (perpendiculaire au substrat), la présence d'un point noir au centre. Or, cette prise de vue a été décalée de $1,4 \mu\text{s}$ par rapport à l'image de la caméra 2 (Figure III-2 (b)) qui, elle, a été déclenchée environ $0,7 \mu\text{s}$ avant l'impact, comme en témoigne le segment correspondant à la trajectoire de la particule incidente pendant $0,5 \mu\text{s}$. L'acquisition de la caméra 1 (Figure III-2 (a)) a donc été déclenchée $0,7 \mu\text{s}$ après l'impact. La tache noire ne peut alors être due à l'impact de la particule. Il s'agit donc vraisemblablement d'une accumulation de matière dans la partie centrale pendant le temps d'obturation de la caméra ($10 \mu\text{s}$).

Le deuxième phénomène intéressant à noter est la présence de nombreuses trajectoires provenant du centre de la lamelle (flèche 1, Figure III-2 (a)). Ces trajectoires parfaitement radiales, et semblant provenir d'un cercle de diamètre $50 \mu\text{m}$, correspondent à des éjections de matière au moment de l'impact. Cela confirme l'existence du phénomène d'« impact splashing » noté dans la littérature, c'est-à-dire d'éjection de matière juste après l'impact. Cependant, ce phénomène est plus ou moins visible selon les particules étudiées. Le cas présenté étant celui où le phénomène a été le plus marqué.

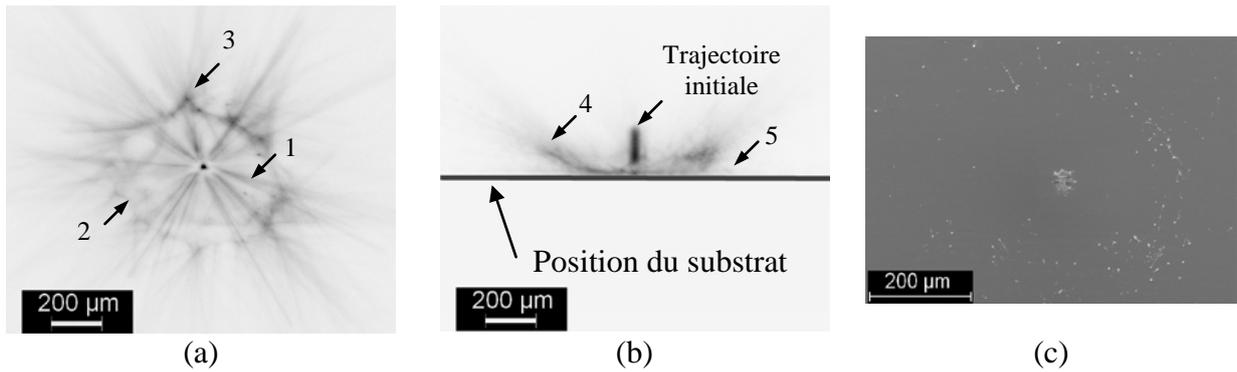


Figure III-2 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu\text{m}$) impactant à une vitesse de $210\ \text{m/s}$ sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et à température ambiante (20°C), $t_{\text{exp}}=10\ \mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle et (c) vue de la lamelle résultante.

Par ailleurs, sur la Figure III-2 (a), il est observé, en périphérie de la lamelle, un anneau plus sombre correspondant à une accumulation de matière (flèche 2, Figure III-2 (a)). Et sur cet anneau, des points privilégiés d'éjections sont présents (flèche 3, Figure III-2 (a)). L'observation de la vue provenant de la caméra 2 indique la présence d'éjections avec un angle fortement prononcé (30°) (flèche 4, Figure III-2 (b)) mais aussi la présence d'éjections parallèles au substrat qui apparaissent moins clairement (flèche 5, Figure III-2 (b)). Malgré une programmation de la caméra 2 en mode exposition multiple, il est difficile de calculer la vitesse de la matière éjectée du fait du nombre important d'éjections.

Afin de confirmer les hypothèses avancées en observant les images de l'étalement prises par les caméras, c'est-à-dire : accumulation de matière au centre, éjection de matière à l'impact, présence d'un anneau de matière en périphérie générant des éjections ; il est nécessaire d'analyser la forme de la lamelle finale (Figure III-2 (c)). Cette figure confirme bien la présence d'une accumulation de matière en partie centrale, ainsi que la présence d'un anneau de matière entourant le centre sur un rayon de $300\ \mu\text{m}$, ce qui correspond à la zone d'étalement maximal observée grâce à la caméra 1 (Figure III-2 (a))

Au niveau de la zone d'impact centrale, Figure III-3 (a) et (b), la matière est disposée d'une façon particulière. En effet, la partie centrale présente un trou en son centre et une forme en étoile. Cela peut correspondre au point de génération des éjections vues sur l'image de la caméra 1 (Figure III-2 (a)). De plus, la zone centrale n'est pas homogène en épaisseur et son diamètre correspond à celui de la particule incidente ($40\ \mu\text{m}$).

En périphérie de la lamelle (Figure III-3 (c)), le même phénomène est observé : des billes de matière avec parfois de minces filets de matière. L'anneau de matière obtenu n'est pas continu.

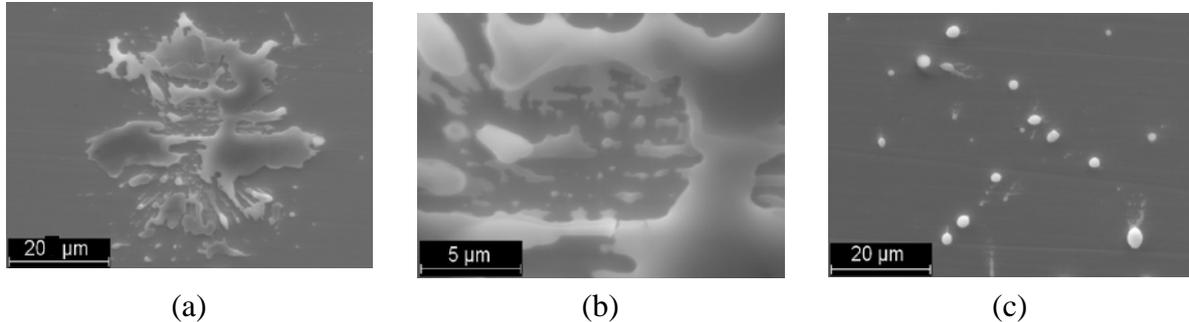


Figure III-3 : Images à différents grossissements de la forme de la lamelle finale provenant de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 210 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et à température ambiante (20°C) (a) vue de la zone centrale de la lamelle, (b) vue de la zone d'impact, (c) vue de la zone annulaire.

Pour résumer, sur un substrat à température ambiante, comme attendu, le rendement de déposition de l'alumine est très faible, et l'hypothèse de la présence lors de l'étalement d'un film liquide de matière est ici clairement montrée. Par ailleurs, une fois l'étalement maximum atteint, est constaté un phénomène de recul de la matière vers la zone centrale, mais aussi vers la périphérie de la lamelle, où, après déchirement du film liquide, la matière converge sous la forme de petites billes de taille micrométrique.

* Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à 80°C / 10 min

Dans le cas d'une température de substrat ne dépassant pas les 100°C, après 10 min de chauffage, la forme de la lamelle n'évolue plus en fonction du temps. Sur la Figure III-4 (a), il est alors possible de voir que la matière s'étale moins (610 μm => 400 μm) et le film présent entre le centre et la périphérie apparaît plus lumineux donc plus épais que dans le cas d'un substrat à température ambiante (Figure III-2 (a))

Le phénomène d'« impact splashing » n'a ici pas pu être observé. Par contre, les éjections en périphérie de la lamelle existent toujours. Il est, en effet, observé sur l'image de la caméra 2 Figure III-4 (b), quelques segments dus à l'exposition multiple de l'image, ce qui permet de calculer une vitesse d'éjection de l'ordre de 50 m/s. Les éjections sont, là encore, générées avec un angle important (30°).

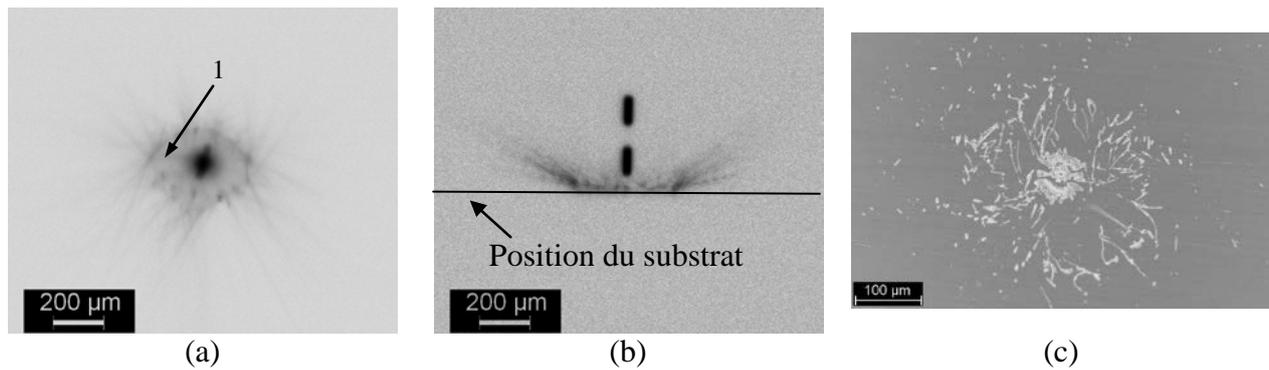


Figure III-4 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 226 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé 80°C / 10 min, $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle et (c) vue de la lamelle résultante.

Sur la forme finale de la lamelle (voir Figure III-4 (c)), des filaments de matière sont présents entre la périphérie et le centre de la lamelle. Or cette zone correspond à la zone où s'est formé un film fin (flèche 1, Figure III-4 (a)). La rupture du film s'est donc produite différemment du cas précédent, et la matière s'est regroupée plus localement. Ceci semble être provoqué par un phénomène de démouillage du film qui se regroupe en direction des zones mouillantes. Le diamètre de la zone centrale correspond toujours au diamètre initial de la particule (Figure III-5).

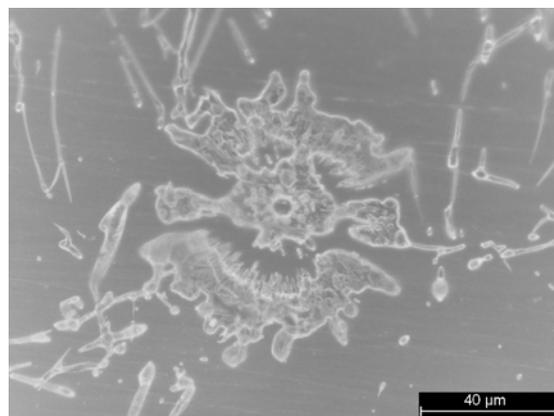


Figure III-5 : Image de la zone d'impact d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impact à une vitesse de 226 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (80°C / 10 min)

Pour un substrat chauffé à 80°C, le diamètre d'étalement diminue et la fragmentation du film s'accompagne de la création de filaments de matière entre la périphérie et le centre. Par rapport au cas précédent, cela amène à penser à l'élimination partielle des adsorbats-condensats physisorbés.

* Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à 170°C durant différents temps (10, 14, 16 et 25 min)

Dans le cas précédent, où les 100°C ne sont pas dépassés, le temps de chauffage n'a eu aucune incidence sur la forme finale de la lamelle. Au-delà, ce n'est plus le cas et l'étude doit être réalisée sur des substrats chauffés 10 min, 14 min, 16 min, 25 min. La température de surface du substrat est maintenue aux environs de 170°C .

– Substrat chauffé à 170°C / 10 min

Pour un substrat chauffé suivant les conditions 170°C / 10 min, il est observé sur la Figure III-6 (c), une zone centrale aux bords dentelés et avec des filaments radiaux de matière. Ces filaments de matière (flèche 1, Figure III-6 (c)) possèdent eux même d'autres ramifications qui leur sont le plus souvent perpendiculaires (flèche 2, Figure III-6 (c)). Les images des caméras (déclenchées $0,2 \mu\text{s}$ avant l'impact) permettent d'observer un étalement en forme de disque (flèche 3, Figure III-6 (a)) et la présence d'une éjection provenant de la zone centrale de la lamelle (flèche 4, Figure III-6 (a) et (b)). En effet, sur l'image de la caméra 2, il est possible d'observer la trace de la particule incidente durant $0,2 \mu\text{s}$ avant l'impact. La trajectoire verticale (flèche 4, Figure III-6 (a) et (b)) correspond donc à un phénomène qui s'est produit vraisemblablement au moment de l'impact.

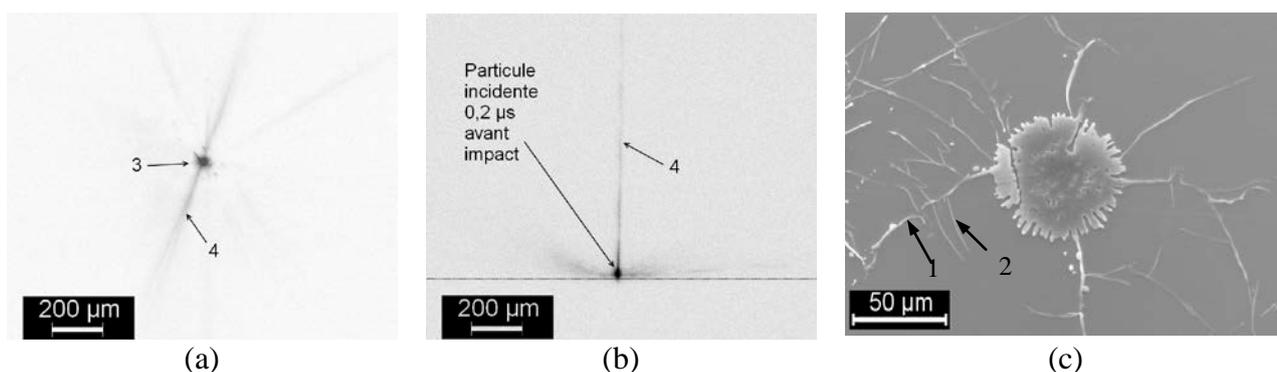


Figure III-6 : Photographie de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40 \mu\text{m}$) impactant à une vitesse de 270 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 10 min), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat et, (b) tangentielle (c) vue de la lamelle résultante.

L'image de la caméra 2 (Figure III-6, (b)), dont l'acquisition est faite en multi expositions, permet d'en déduire une vitesse d'éjection d'environ 280 m/s et un diamètre de $12 \mu\text{m} \pm 4\mu\text{m}$. Cette éjection est quasiment perpendiculaire au substrat.

Cependant, il faut se demander d'où proviennent les filaments de matière observés : s'agit-il d'éjections ou résultent-ils de la rupture d'un film comme dans le cas d'un substrat chauffé à 100°C / 10 min ? Pour répondre à cette question, il est nécessaire de zoomer les images des caméras (voir Figure III-7).

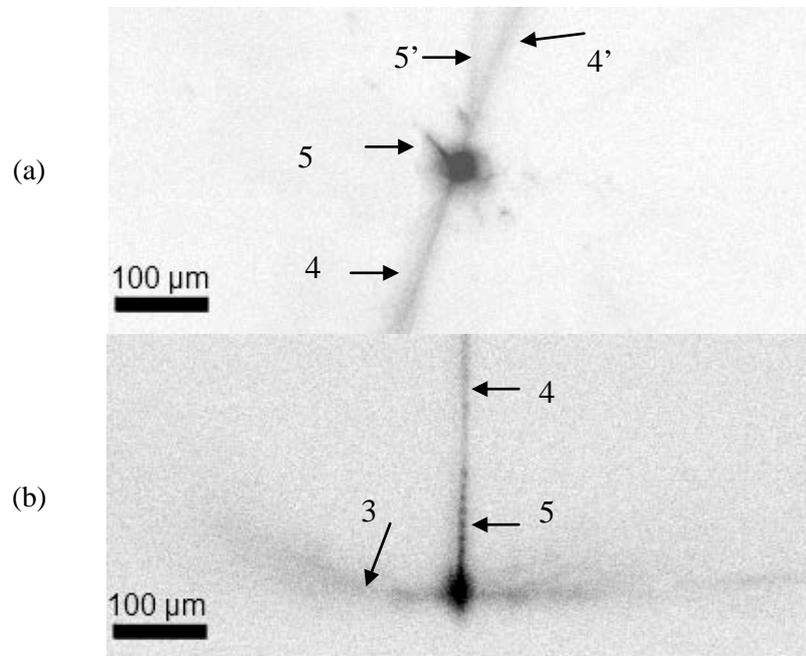


Figure III-7 : Agrandissements des images obtenues par les caméras, pour l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 270 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 10 min), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire au plan du substrat, (b) tangentielle

L'agrandissement permet de mettre en évidence la présence d'une autre éjection en zone centrale (flèche 5, Figure III-7 (a) et (b)). Sur l'image de la caméra 2 (Figure III-7 (b)), la trajectoire (5) de la matière éjectée semble perpendiculaire au substrat alors que sur l'image de la caméra 1 (Figure III-7 (a)), l'éjection n'est pas dans l'axe d'arrivée de la particule. Pour savoir si une éjection possède un angle par rapport au substrat, il est nécessaire d'observer son reflet sur le substrat poli miroir. En effet, l'éjection (4) la plus rapide (280 m/s) (flèche 4 et 4', Figure III-7 (a)) est dans l'axe de son reflet. Alors que ce n'est pas le cas de l'autre éjection (voir flèche 5 et 5', Figure III-7 (a)). Ce processus d'éjection n'est donc pas forcément perpendiculaire au substrat.

En se servant des segments présents sur l'image de la caméra 2 (Figure III-7 (b)), résultant d'une exposition multiple (ouverture 0,5 μs, fermeture 0,5 μs), il est possible de déduire que cette dernière éjection (5) a un diamètre de $8 \mu m \pm 4 \mu m$ et une vitesse d'éjection

de 10 m/s. Du fait du nombre de segments présents (7 visibles) et en extrapolant jusqu'au substrat, il en est déduit que l'éjection est localisée au point d'impact.

A l'impact, il s'est donc produit un phénomène qui a conduit à des éjections au niveau de la partie centrale. Ceci peut être provoqué par un phénomène de recul de la matière en direction de la partie centrale, mais aussi par la présence de gaz au moment de l'impact qui, du fait des conditions de pression et de température sous la goutte, se dilate fortement et traverse la lamelle en éjectant de la matière. Une autre hypothèse serait la présence d'un cœur solide dans la goutte qui rebondirait au moment du contact avec le substrat en entraînant avec lui de la matière.

Il est mis en évidence sur l'image de la caméra 2 la présence d'un phénomène d'éjection (voir flèche 3, Figure III-7 (b)) à environ 100 μm de la zone d'impact. Cela correspond au rayon de la zone concernée par la présence des filaments de matière. Ces filaments de matière ne résultent donc pas d'un phénomène d'éjection direct mais probablement de la rupture du film fin en périphérie de la zone centrale. Ce film est trop fin pour être visible sur l'image de la caméra 1 (Figure III-7 (a)).

– Substrat chauffé à 170°C / 14 min

Dans le cas d'un substrat chauffé à 170°C / 14 min, la forme de la lamelle évolue vers un disque régulier avec la présence de filaments de matière. Ces filaments de matière correspondent à un phénomène d'éjection se produisant à la périphérie de la zone centrale. En effet, sur l'image de la caméra 2 (Figure III-8 (b)), l'éjection est générée à une distance de 50 $\mu\text{m} \pm 4 \mu\text{m}$ par rapport à la zone centrale. Sur l'image de la caméra 1 (Figure III-8 (a)), le phénomène d'éjection semble être généré bien au-delà de la zone périphérique. La discontinuité entre le disque et la trace de l'éjection est due au fait que cette caméra a été déclenchée 0,7 μs après l'impact. En effet, la caméra 2 (Figure III-8 (b)) a été déclenchée 0,7 μs avant l'impact, et entre les deux caméras, un délai de 1,4 μs est appliqué afin de supprimer la trace de la particule incidente sur l'image de la caméra 1. Cela a comme incidence de déclencher l'acquisition un peu tardivement, mais la saturation de l'image lors de l'impact est évitée.

Sur l'image de la lamelle à la fin du processus de solidification (Figure III-8 (c)), est remarquée la présence du filament de matière correspondant à l'éjection, ce qui indique que malgré l'angle d'éjection visible sur la caméra 2 (Figure III-8 (b)), la matière a été éjectée en

conservant un contact avec le substrat. La vitesse de cette éjection est d'environ $220 \text{ m/s} \pm 10$ et son diamètre est $20 \text{ }\mu\text{m} \pm 6 \text{ }\mu\text{m}$. Cependant, ces valeurs sont à considérer avec prudence du fait de la mauvaise définition de l'image. Il faut noter que la vitesse d'éjection est proche de la vitesse d'impact ($250 \text{ m/s} \pm 5$)

L'observation de la lamelle après complet refroidissement (Figure III-8 (c)) indique, autour de l'éjection majoritaire (flèche 1, Figure III-8 (c)), la présence d'autres filaments le rejoignant pour former un triangle (flèches 2, Figure III-8 (c)). Ceci peut être dû à la présence d'un film en parallèle du phénomène d'éjection. Ce film peut être généré par le processus d'éjection qui étire la matière, jusqu'à ce que la force de tension superficielle devienne trop faible et provoque la rupture du film et son regroupement vers les zones mouillantes, ce qui forme alors les deux filaments périphériques (flèches 2, Figure III-8 (c)).

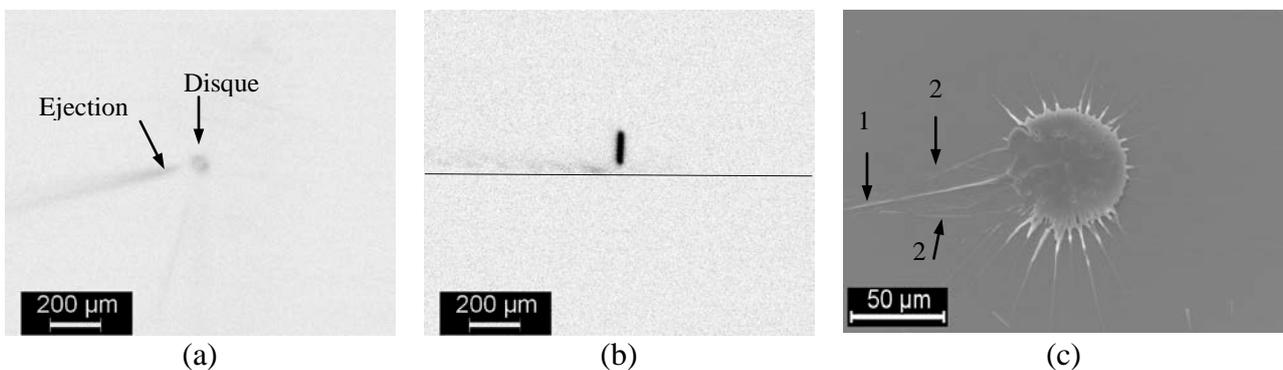


Figure III-8 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40 \text{ }\mu\text{m}$) impactant à une vitesse de 248 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^\circ\text{C} / 14 \text{ min}$), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée $0,7 \text{ }\mu\text{s}$ après l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée $0,7 \text{ }\mu\text{s}$ avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante

– Substrat chauffé à $170^\circ\text{C} / 16 \text{ min}$

Dès que le temps de chauffage augmente, les lamelles en forme de disque commencent à apparaître de façon aléatoire. Mais des lamelles présentant un phénomène d'éjections périphériques continuent à être présentes. Ceci indique que, malgré des conditions de chauffage des substrats identiques, la forme de la lamelle peut être différente. Il est donc nécessaire de connaître avec précision tous les paramètres pouvant influencer l'étalement des particules. Ces différents paramètres sont, pour la particule incidente, sa vitesse, son diamètre, et sa température à l'impact et, pour le substrat, la rugosité. Dans le cas assimilé comme parfait, la lamelle présente très peu d'éjections de matière et quasiment pas de porosité, exemple donné sur la Figure III-9. Dans ce cas-là, les images des caméras (Figure III-9 (a) et

(b)) n'indiquent rien de particulier confirmant l'absence d'éjections. Il est donc possible d'avoir un rendement de matière déposée proche de 100%. Les paramètres de la particule ainsi que la rugosité du substrat sont résumés dans le Tableau III-1.

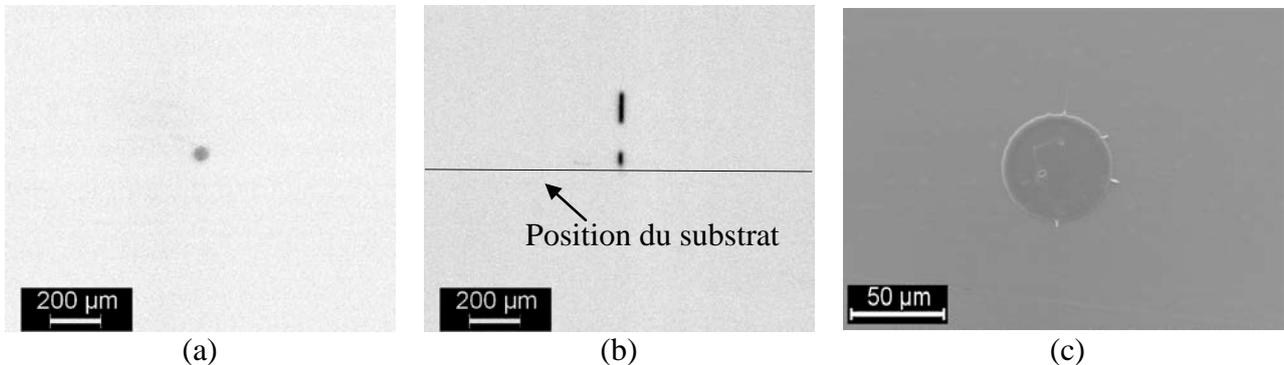


Figure III-9 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu\text{m}$) impactant à une vitesse de $242\ \text{m/s}$ sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^\circ\text{C} / 16\ \text{min}$), $t_{\text{exp}}=10\ \mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée $0,1\ \mu\text{s}$ après l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée $1,3\ \mu\text{s}$ avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante

Pour un autre substrat, préparé, conservé et chauffé dans les mêmes conditions et à quelques minutes d'intervalle, la forme de la lamelle n'est plus la même (Figure III-10(c)). En effet, la lamelle peut alors présenter des éjections périphériques avec des bases en triangle. Ces éjections se produisent avec un angle très faible avec le substrat (voir parallèle) : une seule éjection est visible sur la caméra 2 (Figure III-10 (b)) alors qu'au moins 4 phénomènes d'éjections peuvent être répertoriés sur l'image de la caméra 1 (Figure III-10 (a)).

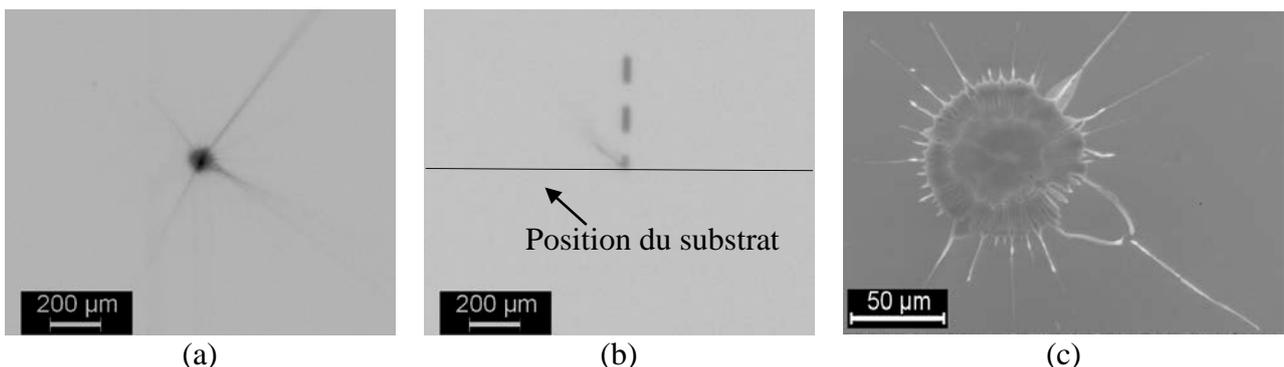


Figure III-10 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique ($40\ \mu\text{m}$) impactant à une vitesse de $245\ \text{m/s}$ sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé ($170^\circ\text{C} / 16\ \text{min}$), $t_{\text{exp}}=10\ \mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée $1\ \mu\text{s}$ avant l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée $2,4\ \mu\text{s}$ avant l'impact et (c) vue de la lamelle résultante

En zoomant l'image de la lamelle résultante de la (Figure III-10(c)), sont observés sur l'image de la Figure III-11 (a) deux filaments de matière donnant naissance à un seul, et (b) un filament de matière entouré d'un film en forme de triangle. Ces images confirment l'hypothèse précédente, c'est-à-dire que le phénomène d'éjection peut étirer localement et temporairement les bords de la lamelle dans certaines conditions. Par ailleurs, il est constaté que chaque filament de matière prend naissance sur une zone découpée et très poreuse (Figure III-11 (c)). Cette porosité pouvant correspondre à la matière qui a été éjectée.

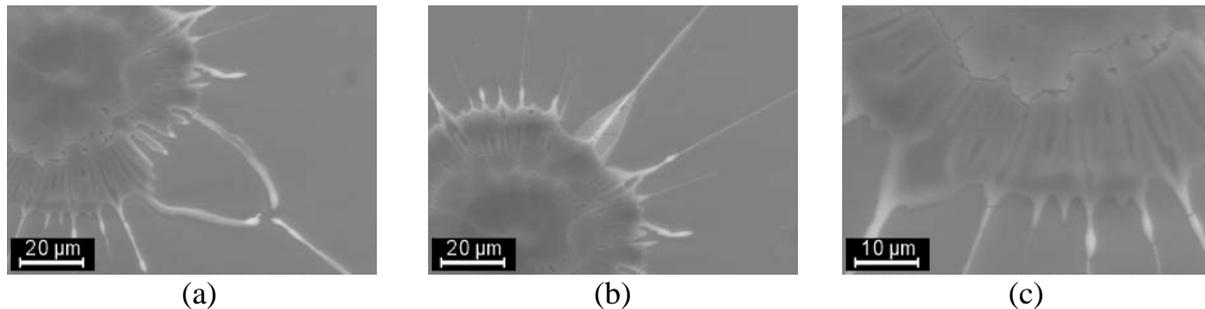


Figure III-11 : Zooms de la périphérie de la lamelle finale dans le cas de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 245 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 16min), (a) détail d'une éjection avec rupture du film, et (b) détail d'une éjection sans rupture du film et (c) détail de la périphérie.

Les paramètres de la particule ainsi que la rugosité du substrat sont résumés dans le Tableau III-1. Dans ce tableau, la rugosité est décrite par quatre grandeurs [103] qui sont :

- R_a : Ecart moyen arithmétique de la surface (nm)
- $R_{\Delta q}$: Ecart moyen quadratique (RMS) de la surface (nm)
- R_t : Profondeur totale de la surface (nm)
- S_k : Facteur d'asymétrie de la surface (sans unité)

Il peut alors être remarqué qu'il existe peu de différences entre les deux lamelles. Seule une légère variation est présente au niveau de la topographie du substrat. La forme circulaire est obtenue sur la rugosité la plus faible. Mais du fait du faible écart de rugosité entre les deux substrats, il est peu probable que cela soit la cause du phénomène d'éjection.

Tableau III-1 : Résumé des conditions d'impact et des paramètres de rugosité dans le cas de lamelles de forme différente résultant de l'impact de particules d'alumine de diamètre 40 µm sur des substrats d'acier inoxydable polis et chauffés dans les mêmes conditions.

	v_{impact} (m/s)	T_{impact} (°C)	R_a (nm)	$R_{\Delta q}$ (nm)	R_t (nm)	S_k
Lamelle parfaite	240 ± 5	2600 ± 100	8	10	70	-0,13
Lamelle avec éjections	245 ± 5	2600 ± 100	10	13	84	-0,18

– Substrat chauffé à 170°C / 25 min

Pour obtenir majoritairement des lamelles en forme de disque, il est nécessaire de chauffer le substrat à 170°C / 25 min. Dans ce cas-là, les lamelles parfaites alternent avec des lamelles dont la forme est proche de celle présentée sur la Figure III-12 (c); c'est-à-dire celle d'un disque troué en son centre avec la présence d'un anneau de matière périphérique.

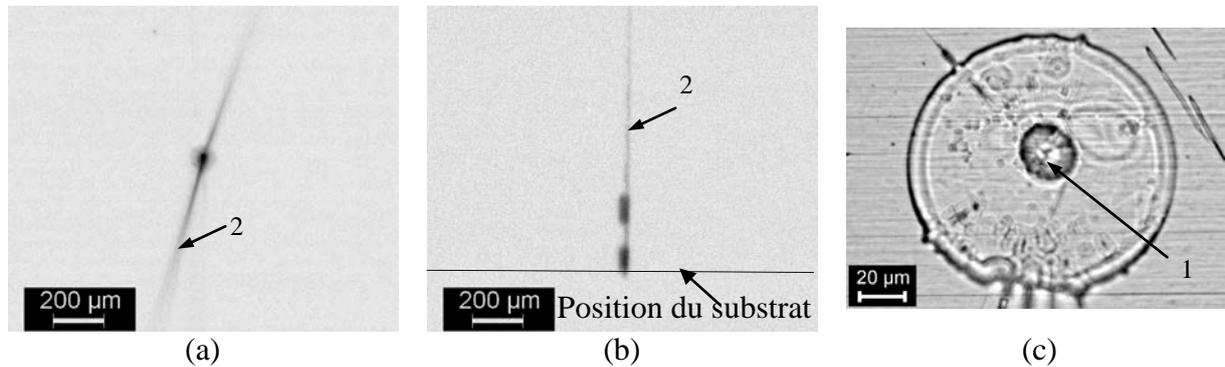


Figure III-12 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 223 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (170°C / 25 min), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire, déclenchée 0,2 μs avant l'impact, et (b) tangentielle, déclenchée 1,6 μs avant l'impact et (c) lamelle résultante

Le trou du centre (flèche 1, Figure III-12 (c)) est assimilé à une perte de matière par éjection directe à l'impact : lorsqu'un trou est présent dans la partie centrale de la lamelle, les images des caméras montrent une éjection dans l'axe d'arrivée de la particule (flèche 2 Figure III-12 (a) et (b)). Le diamètre de ce projectile est d'environ de $20\mu\text{m} \pm 4\mu\text{m}$ et sa vitesse de l'ordre de 200 m/s. Ces mesures sont réalisées grâce à l'image de la caméra 2 (mode exposition multiple). Il n'est donc pas interdit de penser que ceci correspond à un cœur incomplètement fondu qui est éjecté.

A 170°C, les lamelles circulaires commencent à apparaître à partir d'un temps de chauffage de 16 min, mais il faut chauffer jusqu'à 25 min pour les obtenir de façon majoritaire.

* Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à 200°C / 10 min

Pour obtenir des lamelles en forme de disque avec un temps de préchauffage le plus court possible, il faut préchauffer le substrat selon les conditions 200°C / 10 min. Dans ce cas, des lamelles avec une porosité centrale (Figure III-13 (b)) sont présentes et alternent avec des

lamelles de forme régulière (Figure III-13 (a)) dont les bords présentent quelques éjections (Figure III-13 (c)). Ce phénomène d'alternance entre les différentes formes de lamelle a déjà été rencontré précédemment dans le cas d'un substrat chauffé à 170 °C / 25 min et semble là encore, se faire de manière aléatoire.

Il est intéressant de voir que lorsqu'une lamelle impacte à côté d'une autre lamelle (Figure III-13 (b)) la forme de la lamelle au point de jonction (flèche 1, Figure III-13 (b)) ne semble pas être influencée. Alors que de l'autre côté, la lamelle présente une zone chaotique (flèche 2, Figure III-13 (b)). Cette zone chaotique semble être générée depuis la porosité centrale (flèche 3, Figure III-13 (b)), résultant toujours d'un phénomène d'éjection à l'impact. Cette éjection se produit ici encore majoritairement selon l'axe d'arrivée de la particule (flèche 4, Figure III-13 (b)), mais également, en plus faible proportion, légèrement désaxée (flèche 5, Figure III-13 (b)). Le panache foncé entre les deux éjections (flèche 6, Figure III-13 (b)) correspond à un artefact optique dû au fort rayonnement des deux parties éjectées.

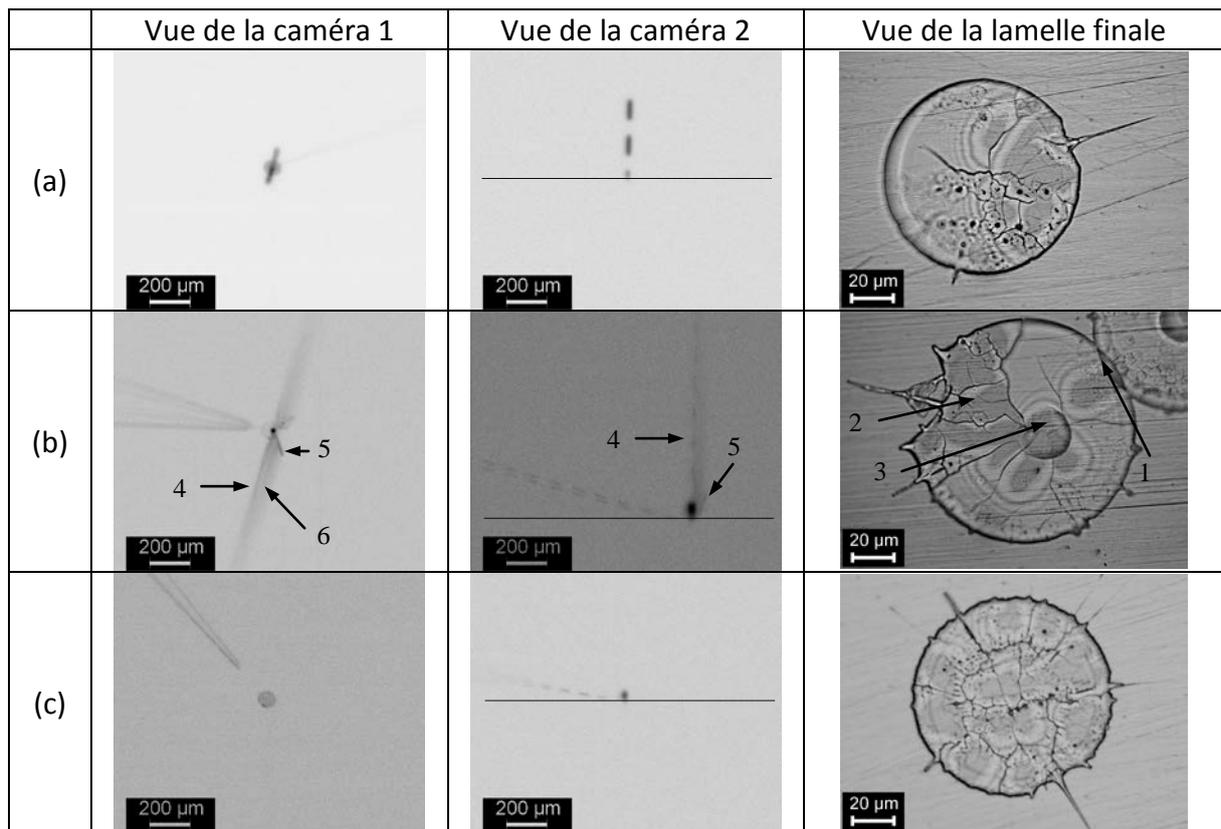


Figure III-13 : Photographies de l'étalement de particules d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 180 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et lamelle résultante (dernière colonne). Les cas (a), (b) et (c) sont des exemples de forme de lamelles.

A 200°C, pour obtenir des lamelles circulaires, il est possible de réduire le temps de chauffe à 10 min.

* Impact d'une particule d'Al₂O₃ sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à 200°C / 10 min puis refroidi à température ambiante.

Lorsqu'une particule impacte sur un substrat préchauffé selon les conditions 200 °C / 10 min et refroidi à 20°C juste avant le tir, la lamelle résultante est sous la forme d'un disque, avec dans certains cas, la présence d'un défaut en partie centrale (flèche 1, Figure III-14 (c)). Ce défaut correspond à un phénomène d'éjection lors de l'impact de la particule sur le substrat (flèche 2, Figure III-14 (a) et (b)), comme celui rencontré pour d'autres conditions de chauffage. Ceci indique que, dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable (304L), la forme de la lamelle n'est pas influencée directement par la température du substrat mais plutôt par son influence sur la qualité de l'état de surface, les adsorbats et condensats n'ayant pas eu le temps de se reformer.

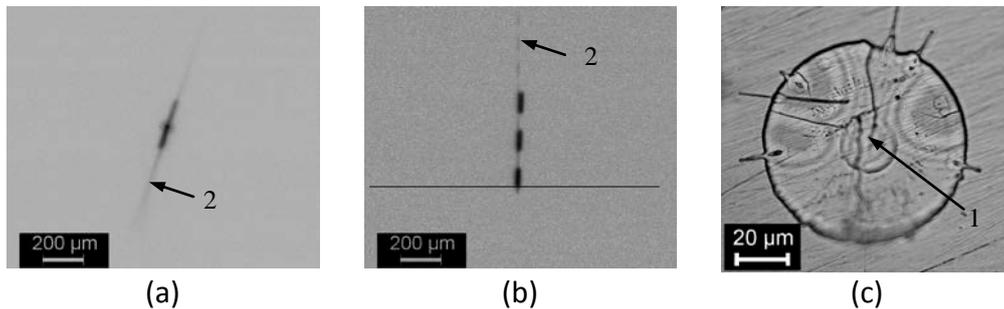


Figure III-14 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse de 198 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min) puis conservé à l'ambiante (20 °C / 1 min), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

Pour observer une modification brutale de la forme de la lamelle, il faut attendre 24h entre le refroidissement et le tir. Dans ce cas-là, la forme de la lamelle peut varier de dentelée avec des filaments de matière, à une lamelle avec une partie centrale réduite et un anneau périphérique (Figure III-15 (c)). Cette situation est à comparer à celle d'un substrat préchauffé à une température inférieure. En analysant les images des différentes caméras, le film fin est retrouvé (flèche 1, Figure III-15 (a)), de même que l'accumulation de matière en partie centrale (flèche 2, Figure III-15 (a)), et les éjections périphériques fortement angulaires

(flèche 3, Figure III-15 (b)). Ceci confirme le retour des adsorbats et condensats sur la surface du substrat.

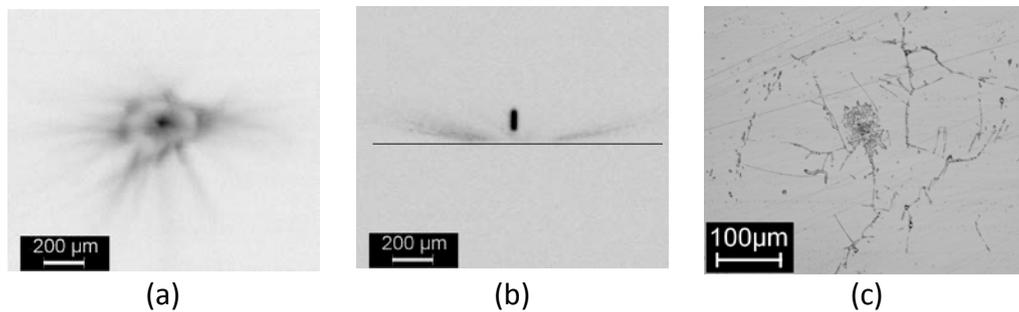


Figure III-15 : Etalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 185 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), poli et chauffé (200°C / 10 min) puis conservé à l'ambiante (20°C / 24 h), $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

Le retour à température ambiante après un chauffage dans les conditions optimales pour obtenir des lamelles circulaires ne modifie pas la forme de la lamelle si le temps entre le refroidissement et le dépôt est inférieur à 3h. Et si le temps d'attente est de 24h, la lamelle obtenue est identique au cas d'un substrat non préchauffé.

* Discussions et conclusions sur l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable.

La transition de la forme déchiquetée à la forme circulaire s'est effectuée dans des conditions de préchauffage de 200°C / 10 min. L'étalement de la matière est différent suivant les conditions de préchauffage. Mais, la température du substrat ne semble pas jouer un rôle direct sur la forme de la lamelle, c'est plutôt la pollution de la surface (adsorbats-condensats) qui va jouer un rôle majoritaire sur l'étalement de la particule. Le processus d'éjection diminue lorsque la température de préchauffage est augmentée. Cependant, sur un substrat préchauffé sont apparues, de façon aléatoire, des éjections perpendiculaires au substrat. Ces éjections se produisent au moment de l'impact alors que sur un substrat non préchauffé le processus d'éjection à l'impact conduit plutôt à des éjections réparties uniformément et avec des angles d'éjections faibles. ($<10^\circ$). Dans le cas d'éjections périphériques et d'un substrat préchauffé, le processus d'éjection peut provoquer la déformation locale du film d'une part en étirant le bord de la lamelle, et d'autre part, en créant une porosité allongée dans la lamelle.

Les courbes de températures (dérivant des signaux pyrométriques lors de l'impact) correspondant aux différentes lamelles obtenues, sont présentées dans l'Annexe 2. Sur chaque

courbe sont rappelées les conditions de préchauffage du substrat (température et temps). Chaque courbe est linéarisée pour en déduire la vitesse de trempe de la lamelle. Un exemple d'évolution de la température d'une lamelle sur un substrat à température ambiante est présenté sur la Figure III-16.

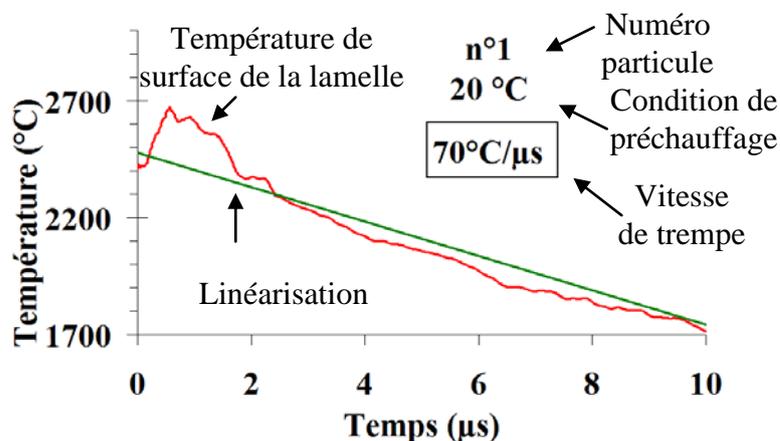


Figure III-16 : Exemple d'évolution de la température de surface de la lamelle dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine de diamètre 40 μm et de vitesse à l'impact de 210 m/s sur un substrat de type 304L à température ambiante.

Globalement les particules arrivent avec une température proche de 2500°C et une vitesse de 220 m/s. Dans certains cas, voir Annexe 2, une augmentation de la température après l'impact est observée. Ceci est dû à des particules refroidies en périphérie, qui au cours de l'étalement, découvrent des zones plus chaudes. Après cette augmentation de température, le refroidissement de la lamelle se produit plus ou moins vite suivant les conditions du substrat. Dans le Tableau III-2, sont présentés les différents résultats relatifs aux particules précédentes. Dans ce tableau, le D_{max} correspond à la zone concernée par l'étalement maximal, avant la rupture du film. Afin de se rendre compte de l'ampleur du film de matière liquide suivant les différentes conditions, le diamètre de la partie centrale, noté D_{min} , est également présenté. Suivant les conditions, les filaments de matière rentrent en compte ou non dans le D_{max} .

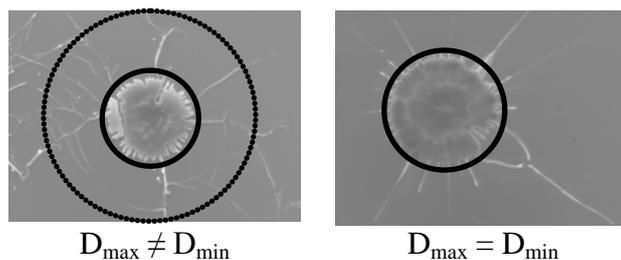


Figure III-17 : Exemple de calcul de D_{max} et de D_{min} pour différentes formes de lamelles

Par exemple, (Figure III-17) pour la lamelle obtenue sur un substrat chauffé à 170°C / 10 min, les filaments résultant de la rupture du film, sont pris en compte, ce qui n'est pas le cas pour la lamelle circulaire où les filaments sont dus à une éjection de matière.

Tableau III-2 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe)

Particule	Condition de préchauffage	v_o (m/s) ± 5	T_o (°C) ± 100	D_{max} (μm) ± 4	D_{min} (μm) ± 2	v_{trempe} (°C/ μs) ± 10
1	20°C	211	2400	610	40	70
2	80°C/10min	226	2800	406	45	150
3	170°C/10min	270	2700	200	71	165
4	170°C/14min	248	2500	68		320
5	170°C/16min	242	2600	60		450
6	170°C/16min	245	2600	86		300
7	170°C/25min	223	2500	112		270
8	200°C/10min	179	2600	92		270
9	200°C/10min	246	2800	100		265
10	200°C/10min	291	2600	90		320
11	200°C/10min 20°C/1min	198	2300	76		220
12	200°C/10min 20°C/24h	185	2300	430	55	100

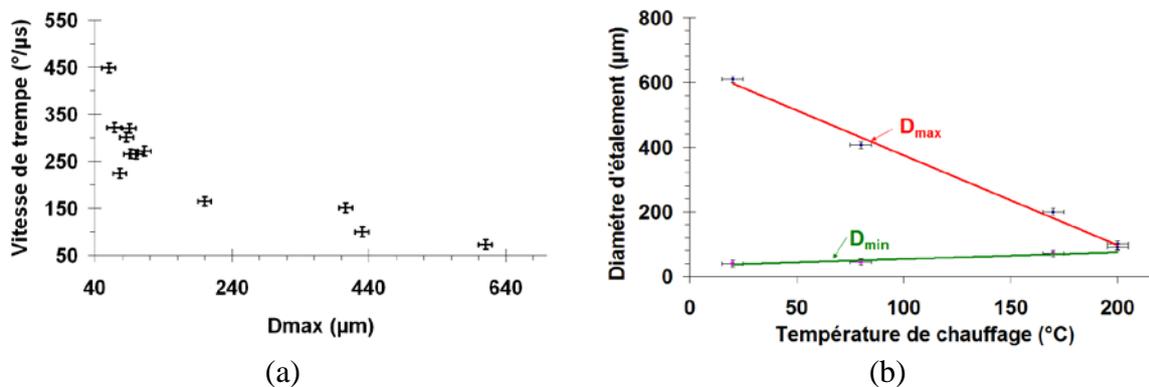


Figure III-18 : (a) Evolution de la vitesse de trempe en fonction du diamètre d'étalement maximal de la lamelle et (b) évolution du diamètre d'étalement en fonction de la température de chauffage

Plus le substrat est chauffé et plus la vitesse de refroidissement est importante. La vitesse de trempe évolue à l'inverse du diamètre maximal d'étalement (Figure III-18 (a)). Ceci peut paraître contradictoire. En effet, pour une même résistance thermique de contact, plus la surface de contact diminue moins le transfert thermique, en direction du substrat, est performant. Donc, dans le cas de la présence d'un film de matière, le contact avec le substrat est très mauvais. Ce mauvais contact résulte probablement de l'existence d'un nuage de

vapeur provoqué par la vaporisation lors de l'étalement des espèces adsorbées sur le substrat. Ce nuage de vapeur va diminuer les frottements entre la matière en écoulement et la surface du substrat, et permettre l'existence du film de matière. En outre, plus la température de préchauffage augmente pour un temps de chauffage fixe, plus le diamètre du film (D_{\max}) diminue et le diamètre du cœur de la lamelle (D_{\min}) augmente (Figure III-18 (b)). Ce qui confirme le rôle des adsorbats-condensats sur le comportement du film. Entre un substrat conservé à 200°C et un substrat chauffé à 200°C puis refroidi à 20°C, la cinétique de refroidissement est proche. Par contre, pour un substrat exposé à l'air 24 h après la procédure de préchauffage, la vitesse de trempe diminue fortement (d'environ 300°C/μs à 100°C/μs).

Tableau III-3 : Rugosité de surface des substrats d'acier inoxydable froid (20°C) ou chauffé (200°C / 10 min)

	R_a (nm)	$R_{\Delta q}$ (nm)	R_t (nm)	S_k
Substrat non chauffé	8	10	98	-0,08
Substrat chauffé à 200°C / 10 min	7	8	65	-0,2

La topographie de surface entre un substrat froid conduisant à des lamelles fortement déchiquetées et un substrat chauffé dans les conditions optimales pour obtenir une lamelle circulaire avec peu d'éjections est proche. (Tableau III-3). Il n'a donc pas été détecté de modification de la topographie de surface pour ces conditions de préchauffage. Dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat de 304 L, la forme de la lamelle est liée à la quantité d'adsorbats-condensats présents à la surface du substrat. Or, cette quantité peut varier d'un substrat à l'autre, ce qui pourrait expliquer les différences notées dans la forme de la lamelle, pour des conditions de tir identiques.

En conclusion, la température de transition d'une particule d'alumine sur un substrat inoxydable (304L) est proche de 200°C ± 20, pour un temps de chauffage de 10 min et une rampe de chauffage de 35°C/min. Qu'en est-il sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242) ?

b) Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242)

Ici, la difficulté majeure provient de la réflexion produite par le substrat. En effet, malgré un protocole de polissage identique pour obtenir le même état de surface entre les deux types de substrat, l'alliage de titane réfléchit beaucoup plus le rayonnement provenant de la torche plasma, induisant une perturbation au niveau de l'image de la caméra 1 (Visée perpendiculaire au substrat). Cette perturbation, (flèche 1, Figure III-20 (a)), se superpose au

rayonnement émis par la particule lors de son étalement (accolade, Figure III-20 (a)), ne permettant pas de distinguer nettement la forme de la lamelle. Ce phénomène est d'autant plus important que la surface est froide. Les conditions de préchauffage sont celles résumées sur la Figure III-19. Quatre conditions de températures différentes sont étudiées :

- Substrat à température ambiante (20°C)
- Substrat chauffé à 200°C / 10 min (courbe noire)
- Substrat chauffé à 250°C / 10 min (courbe bleue)
- Substrat chauffé à 300°C / 10 min (courbe rouge)

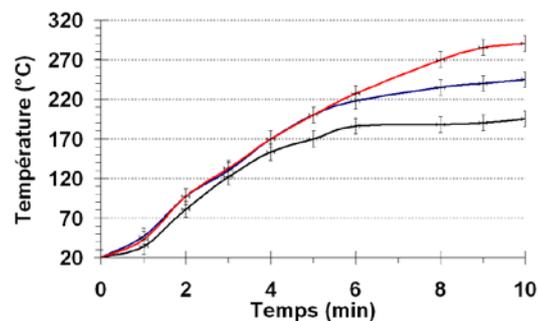


Figure III-19 : Evolutions de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage

* Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante

Lorsque le substrat est à température ambiante, un film de matière est présent en périphérie de la goutte, mais l'anneau de matière en périphérie est ici très faible (Figure III-20 (a)).

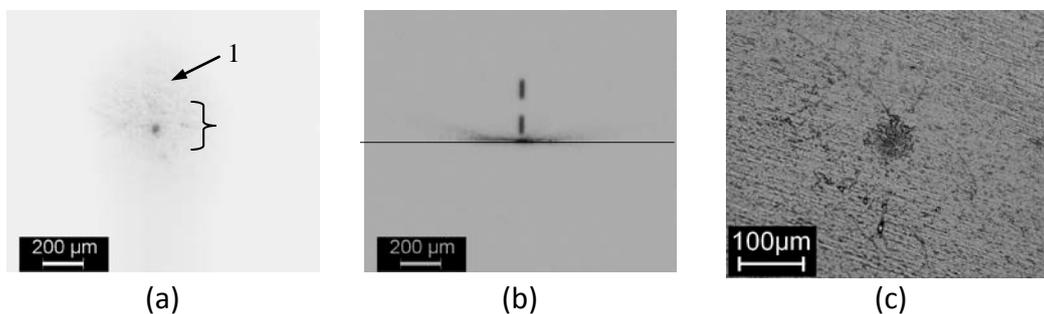


Figure III-20 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 180 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type Ti-6242), poli et à température ambiante, $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

L'étalement de la matière est plus faible (288 μm) que sur un substrat d'acier inoxydable (610 μm). Et le nombre et l'angle des éjections sont moins importants par rapport à l'impact sur un substrat d'acier inoxydable.

*** Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane chauffé de 200 à 300°C**

Sur des substrats chauffés dans les conditions suivantes, 200 °C / 10 min et 250 °C / 10 min, le film de matière est présent. Les éjections générées sur la périphérie du film se font de manière localisée mais avec un angle d'éjection faible. L'éjection perpendiculaire a aussi été détecté (Figure III-21, 250°C / 10 min, flèche 1), mais elle se produit là encore de façon aléatoire, mais cela permet de savoir que ce type d'éjection ne dépend pas du substrat.

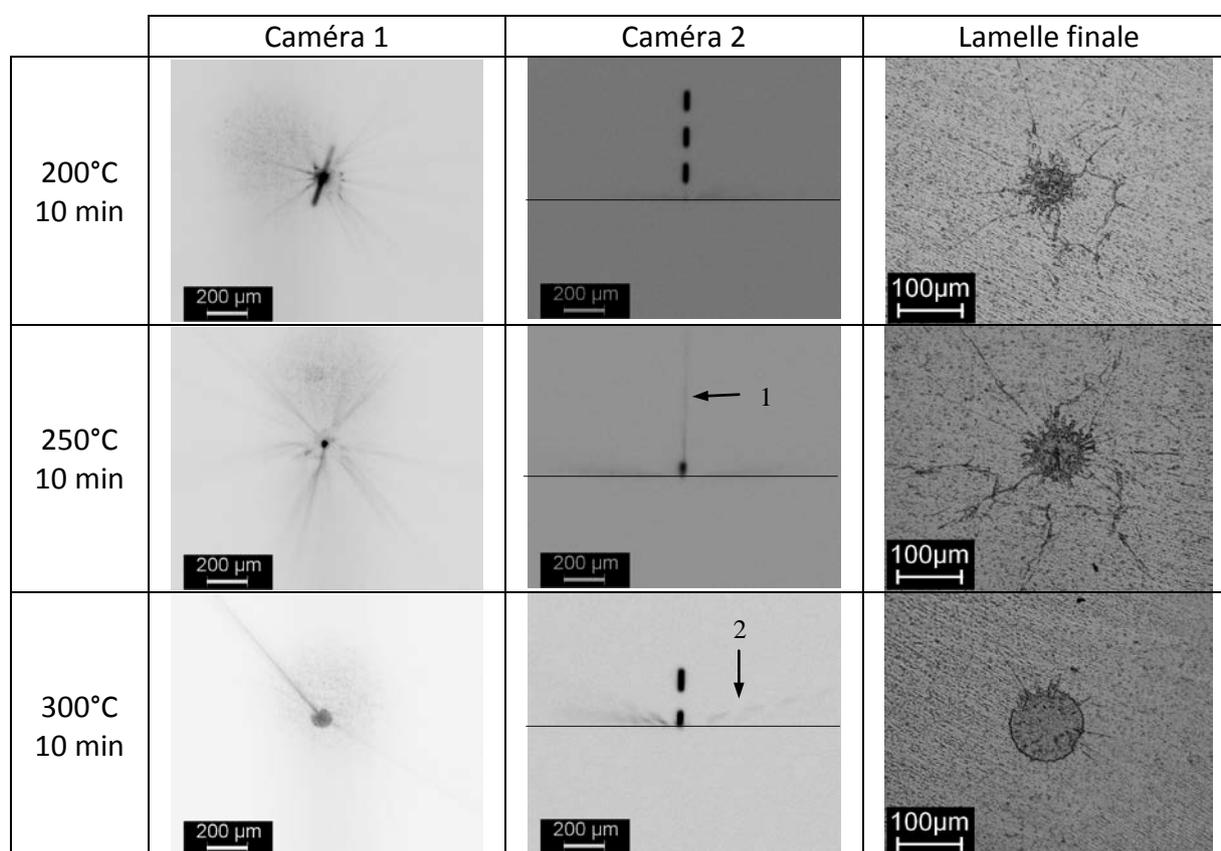


Figure III-21: Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), poli et chauffé dans différentes conditions résumées dans la première colonne, Vitesse moyenne d'impact = 215 m/s

Il est nécessaire d'avoir des conditions de préchauffage de 300°C / 10 min pour obtenir des lamelles parfaites ou présentant quelques éjections périphériques. Ces éjections

possèdent, dans certains cas, un angle important par rapport au substrat ((Figure III-21, 300°C / 10 min, caméra 2, flèche 2).

*** Impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane chauffé à 300°C / 10 min puis refroidi à 20°C.**

Pour un substrat chauffé dans les conditions nécessaires pour obtenir une lamelle la plus régulière possible puis refroidi à 20°C juste avant le tir, la lamelle obtenue n'est plus parfaitement circulaire mais présente des filaments de matière résultant de la rupture d'un film de matière en périphérie de la lamelle. Lors de la rupture de ce film, la matière s'agglomère au niveau des zones mouillantes pour former les filaments observés qui se répartissent en étoile autour de la zone centrale. Ceci est différent du cas d'un substrat non chauffé pour lequel les filaments ne sont pas présents.

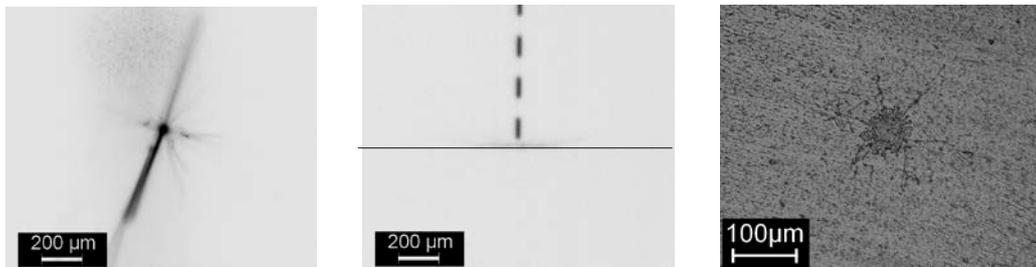


Figure III-22 : Photographies de l'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 221 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type Ti-6242), poli et préchauffé à 300°C / 10 min puis refroidi à 20°C, $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

Sur un substrat d'alliage de titane, la température du substrat joue donc un rôle direct sur la forme de la lamelle. Ce comportement est différent de celui rencontré dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable pour lequel le retour à température ambiante ne provoque pas de modification de la forme de la lamelle.

*** Conclusions sur l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane**

Dans le cas de l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'alliage de titane, il est nécessaire de chauffer le substrat à 300°C / 10 min pour obtenir des lamelles circulaires régulières. La matière est éjectée, la plupart du temps, selon un angle faible. Le retour à température ambiante après un préchauffage dans les conditions optimales s'accompagne d'une dégradation de la forme de la lamelle avec réapparition d'un film en périphérie de celle-

ci. Ceci peut être dû à l'existence d'un phénomène de stabilisation de l'écoulement sur un substrat chaud, comme le supposent Fukumoto et Dhiman [116][183]. En effet, pour ces auteurs, un refroidissement trop rapide au moment de l'impact conduit à l'apparition d'éjection du fait des perturbations provoquées par la phase déjà solidifiée à l'interface entre le substrat et la matière en écoulement. Selon eux, une augmentation de la température du substrat ralentit le transfert dans les premières microsecondes et permet d'éviter l'apparition de cette phase solide.

Dans le Tableau III-4 sont résumés les différents paramètres des lamelles étudiées. Les particules impactent avec une température moyenne de 2500°C et une vitesse de 210 m/s.

Tableau III-4 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe)

particule	Condition de préchauffage	v_o (m/s) ± 5	T_o (°C) ± 100	D_{max} (μm) ± 4	V_{trempe} (°C/ μs) ± 10
13	20°C	180	2400	288	130
14	200°C/10min	200	2300	160	160
15	250°C/10min	230	2500	156	160
16	300°C/10min	215	2400	108	300
17	300°C/10min 20°C/1min	220	2800	180	140

Comme dans le cas de l'impact sur un substrat de 304 L, la vitesse de trempe évolue en fonction de la température du substrat et plus la lamelle s'étale, plus elle est faible. Les courbes de refroidissement sont présentées dans l'Annexe 3

La rugosité de surface des différents substrats dans le cas d'un substrat non chauffé et d'un substrat chauffé dans les conditions optimales pour obtenir des lamelles circulaires est donnée dans le Tableau III-5.

Tableau III-5 : Rugosité de surface des substrats d'alliage de titane froid (20°C) ou chauffé (300°C / 10 min)

	R_a (nm)	$R_{\Delta q}$ (nm)	R_t (nm)	S_k
Substrat non chauffé	22	28	169	0,43
Substrat chauffé à 300°C / 10 min	20	25	179	-0,12

La rugosité des deux substrats est proche, le chauffage du substrat n'a donc pas eu d'effet détectable sur la topographie de surface. Les légères variations dans les valeurs des paramètres de rugosité, notamment du S_k (paramètre d'asymétrie de la surface) sont dûes au

fait qu'il s'agit de deux substrats différents, et malgré une procédure de polissage identique, il peut exister de légères différences.

En conclusion, la température de transition d'une particule d'alumine sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242) est proche de $300^{\circ}\text{C} \pm 20$, pour un temps de chauffage de 10 min et une rampe de chauffage de $35^{\circ}\text{C}/\text{min}$. Il existe donc 100°C de différence par rapport au cas précédent sur un substrat de type 304L. La partie suivante compare les deux cas afin de comprendre l'origine de la température de transition.

c) Comparaison de l'impact d'une particule de Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable (304L) et d'alliage de titane (Ti-6242) : *origine de la température de transition.*

L'étalement de la particule d'alumine est globalement identique lors du changement de substrat. En effet, pour un substrat préchauffé en dessous de la température de transition, il existe, dans les deux cas, un film entouré d'une accumulation de matière en périphérie accompagné d'éjections localisées à des points de la périphérie. Mais quelques différences existent entre les deux cas :

- Sur un substrat d'alliage de titane, l'accumulation de matière en périphérie est plus faible et l'étalement du film moins important. Les lamelles en forme de disque circulaire ont un diamètre proche, quel que soit le type de substrat (acier inoxydable ou alliage de titane). Si le diamètre d'étalement du film est plus faible, cela peut signifier que le contact est plus important sur un substrat d'alliage de titane.

- Pour obtenir des lamelles sous forme de disque, les conditions de chauffage sont de $300^{\circ}\text{C} / 10 \text{ min}$ pour le substrat d'alliage de titane alors qu'elles sont de $200^{\circ}\text{C} / 10 \text{ min}$ sur un substrat d'acier inoxydable.

Quelle est donc l'origine de l'augmentation de la température de transition sur le substrat de type Ti-6242 ?

Pour les deux substrats, la vitesse de trempe évolue de la même façon, c'est-à-dire que la vitesse de trempe est de l'ordre de $150^{\circ}\text{C}/\mu\text{s}$ pour des lamelles déchiquetées, alors que dans le cas de lamelles circulaires, elle est de l'ordre de $250^{\circ}\text{C}/\mu\text{s}$. L'augmentation de la température de transition est donc favorable à un meilleur transfert thermique entre la lamelle et le substrat. La diffusivité thermique du substrat d'acier inoxydable (304L) est de $9,47 \cdot 10^{-6}$

m^2s^{-1} , alors qu'elle est presque deux fois plus faible ($4,76 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242).

Tableau III-6 : Caractéristiques physiques des différents substrats utilisés.

	304L	Ti-6242
Conductivité thermique ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	18	9
Capacité calorifique ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{°C}^{-1}$)	500	420
Température de fusion (°C)	1375	1649
Masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	3800	4500
Diffusivité thermique ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) $\times 10^{-6}$	9,47	4,76

Or comme introduit précédemment, pour certains auteurs [183][116], un refroidissement trop rapide au moment de l'impact conduit à l'apparition d'éjections du fait des perturbations provoquées par la phase déjà solidifiée à l'interface entre le substrat et la matière en écoulement. Une augmentation de la température de surface du substrat ralentirait le transfert dans les premières microsecondes et permettrait d'éviter l'apparition de cette phase solide.

Les propriétés physiques (c_p et ρ) étant proches entre les deux matériaux, le facteur 2 est retrouvé sur la valeur de la diffusivité. Or, la diffusivité d'un matériau représente sa capacité à transférer la chaleur. Le substrat de 304L va donc favoriser les échanges de chaleur, son gradient de température interne est donc moindre que dans le cas d'un substrat Ti. Pour une même résistance thermique et une même quantité d'énergie transférée, la température de surface du substrat Ti-6242 est plus élevée que celle du 304L. Or, il est nécessaire de chauffer encore plus le substrat d'alliage de titane. La température de transition ne résulte donc pas uniquement des phénomènes de solidification car la lamelle risque de se solidifier plus vite sur un substrat d'acier inoxydable (304L), et donc, il devrait être nécessaire de chauffer plus haut le substrat. Et ici ce n'est pas le cas.

Dans le cas de l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable, il doit exister un autre processus qui influence l'étalement de la particule, comme, par exemple, une mouillabilité différente due à l'apparition d'une couche d'oxyde non détectée par les mesures de rugosité. La mouillabilité de l'alumine serait donc plus importante sur un substrat de 304L. Or, la mouillabilité d'un liquide sur une surface augmente en fonction de la température de cette dernière. En chauffant, la mouillabilité de l'alumine sur le substrat augmente ce qui favorise l'obtention de lamelles circulaires. Ceci explique pourquoi le retour à température ambiante, dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat Ti,

provoque l'apparition d'un film de matière, qui résulte du mauvais contact lamelle / substrat du fait de la faible mouillabilité. Sur le substrat de 304L, la mouillabilité serait suffisamment importante pour permettre de conserver des lamelles circulaires une fois le substrat refroidi. Il serait donc intéressant de mesurer ces différentes mouillabilités mais il n'est pas possible actuellement d'étudier la mouillabilité sur ce type de substrats car ils possèdent un point de fusion plus faible que l'alumine.

Cependant, un autre paramètre pouvant influencer la température de transition est la topographie du substrat. Dans le Tableau III-7 sont rappelées les valeurs des paramètres de rugosité pour un substrat d'acier inoxydable et un substrat d'alliage de titane. Dans les deux cas, il s'agit de substrats non chauffés.

Tableau III-7 : Rugosité de surface de substrats non chauffé, d'acier inoxydable et d'alliage de titane

	R _a (nm)	R _{Δq} (nm)	R _t (nm)	S _k
D'acier inoxydable (20°C)	8	10	98	-0,08
D'alliage de titane (20 °C)	22	28	169	0,43

Il peut être remarqué une rugosité plus importante dans le cas du substrat d'alliage de titane, ce qui peut expliquer, d'une part, l'étalement moindre de la matière et, d'autre part, la température de transition plus élevée sur ce type de substrat. L'effet de la rugosité sur la température de transition peut être dû à une quantité d'absorbats plus importante venant s'incruster dans la rugosité. Mais ce phénomène est probablement secondaire.

Pour conclure, l'étalement de la particule d'alumine est globalement identique lors du changement de substrat, même si des différences au niveau de la température de transition et du comportement sur un substrat froid préchauffé existent.

Dans le paragraphe suivant, du fait de la réflexion parasite présente sur la surface d'un substrat d'alliage de titane, seule la chronologie de l'impact sur un substrat d'acier inoxydable est étudiée.

III-2.1.2 Approche chronologique de l'impact d'Al₂O₃ sur un substrat d'acier inoxydable (304L).

Afin de mieux comprendre ce qui contrôle les éjections et la forme de la lamelle, il est nécessaire de connaître précisément le moment où elles sont produites. Cependant, comme il

a été signalé dans la partie I-3.1, il est actuellement impossible de suivre les différentes étapes de l'étalement pour la même particule micrométrique.

Dans cette partie, le temps d'exposition est donc réduit afin de visualiser l'étalement d'une particule à un temps t donné par rapport à l'impact. En faisant varier ce temps, il est donc possible d'avoir une idée du processus d'étalement. Evidemment, les images obtenues correspondent à l'étalement de particules différentes, il est donc nécessaire de considérer uniquement des particules avec des caractéristiques de diamètre, vitesse et température à l'impact, proches les unes des autres.

Dans un premier temps, est présenté le cas d'un substrat froid afin de détailler la formation du film, sa fragmentation et le phénomène d'éjection. Puis, dans un second temps, le cas d'un substrat chaud avec éjections visibles et l'étude du phénomène d'éjection perpendiculaire au substrat au moment de l'impact sont examinés. Le cas d'une lamelle en forme de disque n'est pas présenté ici car la lamelle devient très vite peu lumineuse du fait de son refroidissement rapide.

a) Substrat froid

Sur la Figure III-23 sont présentées les différentes images capturées pour différents temps d'étalement. Pour ceci, le pyromètre est déclenché à l'impact de la particule et les caméras sont déclenchées à différents temps d'étalement de la particule. Le temps d'exposition des deux caméras est de $2 \mu\text{s}$ et les particules de diamètre moyen de $40 \mu\text{m}$ ont une vitesse proche de $200 \text{ m/s} \pm 5$ et une température à l'impact de l'ordre de $2350^\circ\text{C} \pm 100$.

Dans la première ligne (cas 1, Figure III-23), correspondant à un déclenchement de $1,8 \mu\text{s}$ avant l'impact de la particule, aucune éjection de matière n'est vue à l'impact. Cependant il est fortement probable que sur un temps aussi court ($2 \mu\text{s}$), le signal lumineux généré par ces éjections est trop faible par rapport au fort rayonnement de la zone d'impact pour être visible.

Dans la ligne suivante (cas 2, Figure III-23), correspondant à un déclenchement de la caméra $1,2 \mu\text{s}$ avant l'impact, la caméra se ferme juste au niveau du maximum d'étalement (maximum du signal pyrométrique), et dans ce cas peu d'éjections sont générées. Il pourrait s'agir d'éjections amorcées lors de l'impact de la particule sur le substrat et se propageant à une vitesse supérieure à celle de l'étalement.

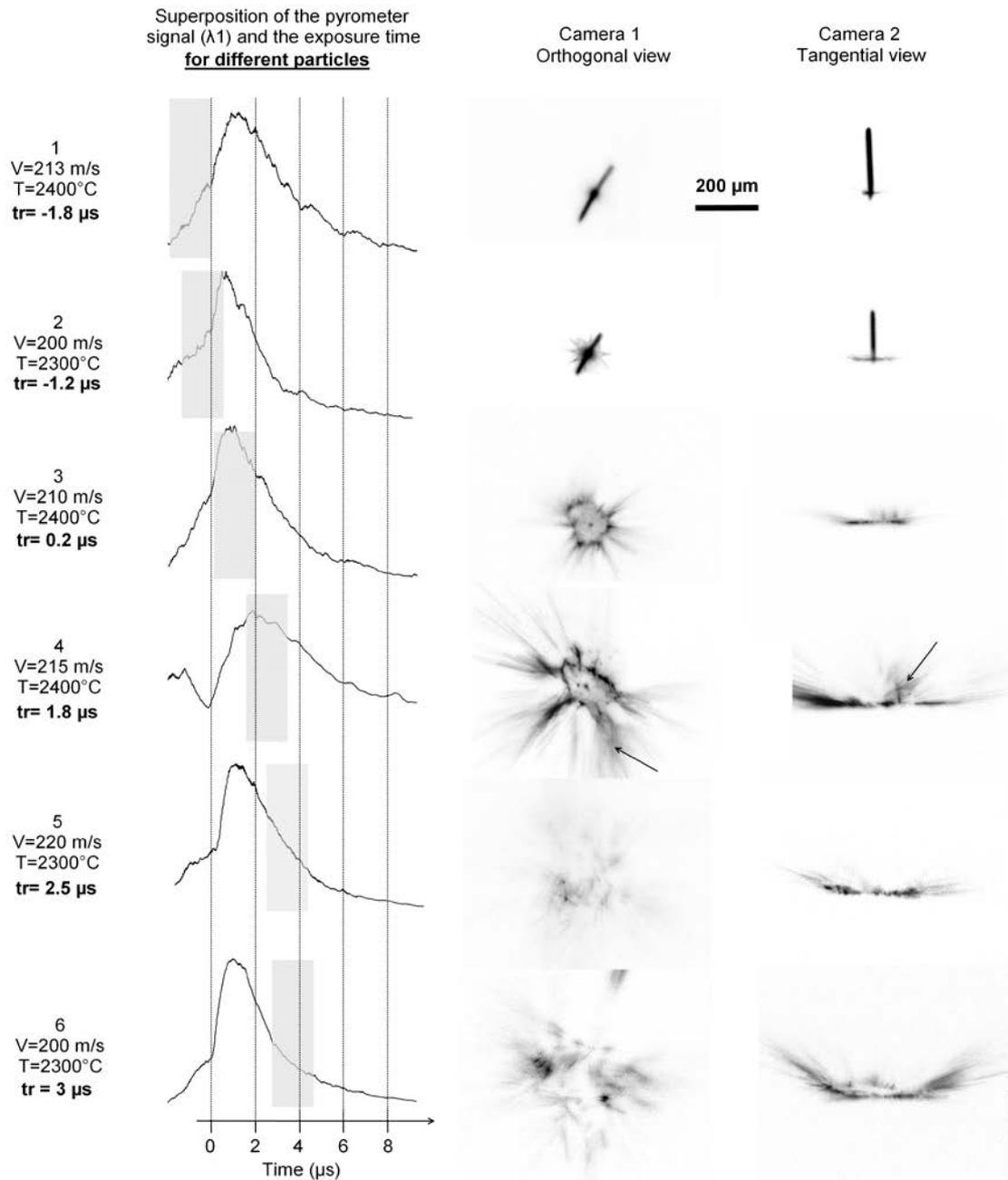


Figure III-23 : Visualisations du processus d'étalement pour différents moments de déclenchement et différentes particules d'alumine impactant un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : paramètres particules (vitesse et température à l'impact) et retard par rapport au moment de l'impact ; deuxième colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{exp} = 2\mu$ s)

Les images suivantes (cas 3, Figure III-23), déclenchées juste après l'impact ($t_r=0,2\mu$ s) correspondent à la phase d'étalement et au début de la phase de décroissance du signal. Sur ces photos, la lamelle présente plus d'éjections et son rayonnement n'est pas

homogène sur l'ensemble de sa surface : les côtés et le centre sont plus lumineux que l'aire située entre eux.

Sur les autres images (cas 4, Figure III-23), correspondant uniquement à la phase de décroissance du signal ($t_r=1,8\mu s$), les bords de la lamelle et le centre sont encore lumineux mais il y a beaucoup d'éjections de matière. Ces éjections sont majoritairement parallèles au substrat (angle en dessous de 5°) et sont localisées en des points précis de la périphérie de la lamelle.

Concernant la vue tangentielle, il est nécessaire de l'étudier avec beaucoup de précautions. En effet, les éjections marquées avec la flèche (cas 4, caméra 1 et 2, Figure III-23) ont une direction parallèle au substrat et, malgré ceci, l'angle qu'elles forment avec le substrat apparaît beaucoup plus important. La trajectoire d'éjection correspond approximativement à l'axe de la caméra. Les éjections de matière sortent vite de la profondeur de champs et les traces se défocalisent donc très vite. L'angle apparaît donc beaucoup plus grand qu'en réalité. Ainsi sur la vue tangentielle, les seules éjections à considérer sont celles avec une trajectoire dans le même plan que celui de la caméra.

Pour un retard plus important, (cas 5 et 6, Figure III-23), les éjections ont lieu en tous sens et pas seulement au niveau des bords de la lamelle. Les éjections parallèles sont alors peu présentes.

b) Substrat chaud

Dans cette partie, du fait de la diminution rapide de la luminosité de la lamelle, seuls les premiers instants de l'étalement sont présentés, et cela pour les deux formes majoritaires de lamelle finale (déchiquetées avec un anneau de matière périphérique et circulaires avec éjections). Pour ce faire, les conditions de préchauffage sont de $170^\circ C / 12 \text{ min}$ et le temps d'exposition des caméras est de $2 \mu s$.

Dans le cas d'une lamelle déchiquetée (cas 1, Figure III-24), la répartition de la matière est quasi identique à celle obtenue sur un substrat froid. Cependant, le film est moins marqué et l'accumulation de matière en périphérie de la lamelle est plus faible et la zone centrale beaucoup plus importante. Par ailleurs, dans la zone du film, il existe des zones radiales plus foncées (flèche, cas 1, Figure III-24), qui correspondent aux filaments présents sur la forme finale de la lamelle.

Dans le cas d'une lamelle circulaire avec des éjections périphériques (cas 2, Figure III-24), aucun film n'est présent et les éjections se produisent en périphérie de la lamelle après le maximum d'étalement. En observant bien les bords de la lamelle, il existe une zone plus foncée qui indique une zone de plus fort rayonnement et donc une accumulation de matière.

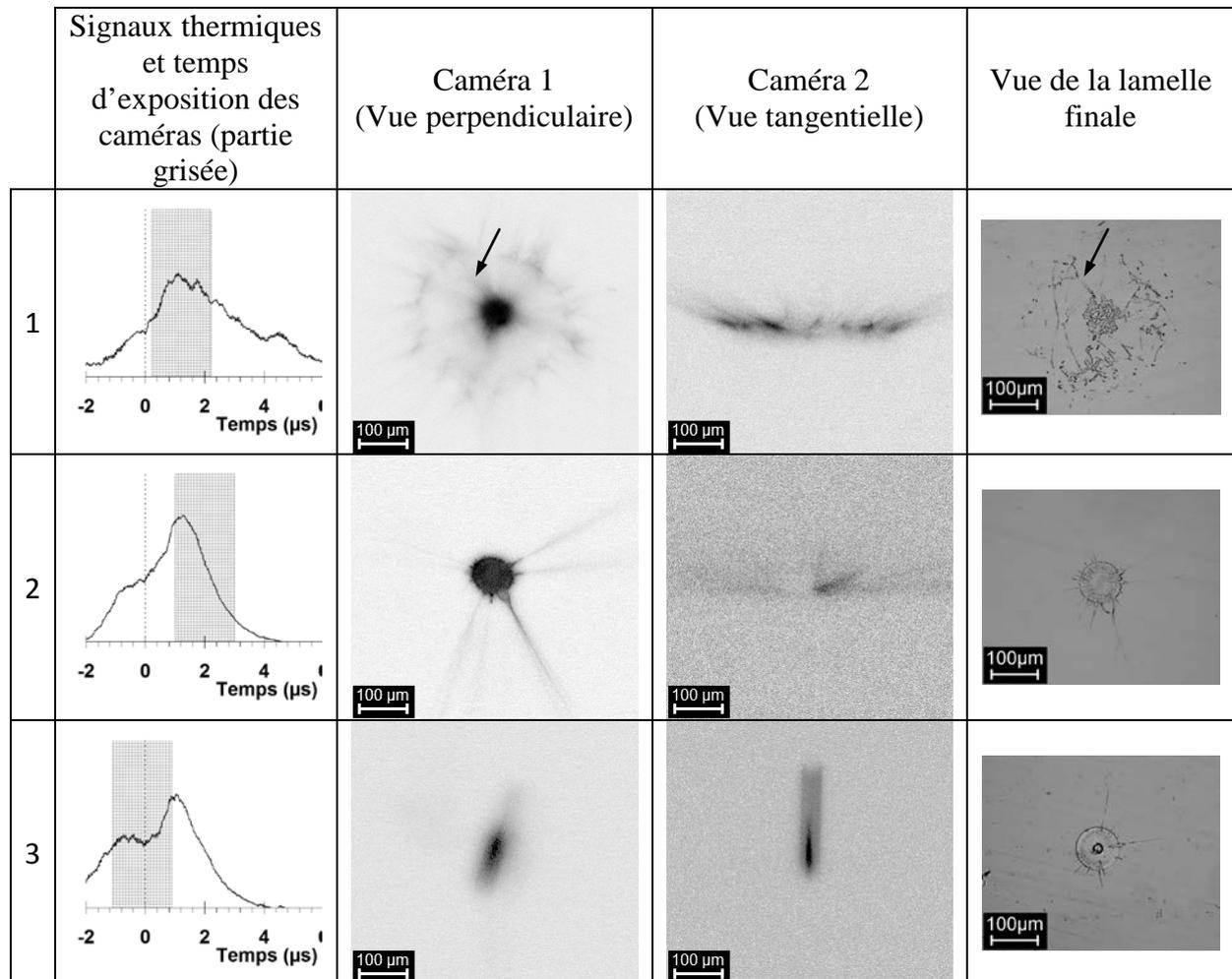


Figure III-24 : Visualisations du processus d'étalement d'une particule d'alumine de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 200 m/s sur un substrat de type 304L pour différentes formes de lamelles, (1) déchiquetée avec un anneau périphérique, (2) circulaire avec éjections périphériques, (3) circulaire avec éjection centrale perpendiculaire

Finalement, pour une lamelle présentant une éjection centrale (cas 3, Figure III-24), la caméra est déclenchée avant l'impact mais sur un temps suffisamment long pour visualiser les toutes premières nanosecondes de l'étalement (environ 800 ns). Le phénomène d'éjection perpendiculaire au substrat se produit bien au moment de l'impact de la particule sur le substrat et au centre de la zone d'impact. L'éjection a un diamètre proche de 10 μm et une vitesse d'environ 50 m/s. La particule incidente ayant une vitesse de 180 m/s pour un diamètre de 40 μm . La caméra 1 n'étant pas bien focalisée, l'étalement de la particule n'est

pas très visible. La grande difficulté dans l'observation de ce type d'éjection est le caractère aléatoire du phénomène.

c) Conclusions

Dans ce paragraphe III-2.1.2, la dynamique d'étalement d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat d'acier inoxydable (304L) a été précisée grâce à un décalage temporel des prises de vues au cours de l'étalement. Ceci a permis d'observer les différents types d'éjections résultant de divers phénomènes.

A l'impact, se produisent :

- Sur une surface froide non préchauffée, des éjections radiales provenant du centre de la lamelle, provoquées par la désorption des adsorbats se trouvant à la surface du substrat.
- De façon aléatoire indépendamment des conditions de chauffage du substrat des éjections perpendiculaires au substrat et provenant du centre de la lamelle, pouvant être provoquées soit par l'éclatement d'une bulle de gaz, soit par la présence d'un cœur solide rebondissant lors du contact avec le substrat.

Une fois l'étalement maximal atteint, deux situations possibles se présentent :

- En présence d'un film, un phénomène d'éjection localisé au niveau de la périphérie apparaît. Ce phénomène est provoqué par la présence d'un bourrelet de matière qui se fragmente au moment de l'arrêt de propagation du front de matière.
- Pour des lamelles circulaires, les éjections étirent localement la périphérie de la lamelle circulaire conduisant à l'apparition d'un vide radial dans l'anneau périphérique entourant une partie centrale plus dense.

Pendant le refroidissement, et en présence d'un film, un second lot d'éjections est initié par la fragmentation de ce film, suivi d'un phénomène de démouillage en direction des zones déjà solidifiées.

Toutes ces conclusions découlent de l'observation de l'étalement sur un substrat d'acier inoxydable (304L) à température ambiante. Les mêmes phénomènes apparaissent sur un substrat Ti (Ti-6242) même si le diamètre du film est réduit. Mais, les images n'ont pas été présentées, du fait de la réflexion parasite sur la surface, ce qui les rend plus difficilement exploitables.

III-2.2 Etude de l'impact d'une goutte métallique : NiAl

Dans ce paragraphe, il est question d'observer l'influence de la nature du substrat sur la dynamique d'étalement d'une particule de Nickel contenant 5 % en masse d'aluminium, notée NiAl, d'un diamètre compris entre 40 μm et 50 μm , ayant une vitesse d'environ 110 m/s ± 5 et une température à l'impact de $1800^\circ\text{C} \pm 100$.

Dans un premier temps, comme pour l'alumine, la température de transition est déterminée sur deux types de substrat, l'un en acier inoxydable (type 304 L) et l'autre en alliage de titane (type 6242). Puis dans un deuxième temps, par décalage temporel des prises de vues, le processus d'éjection sur un substrat d'acier inoxydable à 20°C est étudié.

III-2.2.1 Détermination de la température de transition

Afin de trouver la température de transition, le substrat est préchauffé à différentes températures jusqu'à obtenir des lamelles sous forme de disques. Le temps de préchauffage est conservé dans la majorité des cas à 10 min pour pouvoir comparer les résultats obtenus avec le cas de l'impact de particules d'alumine.

a) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable de type 304L

Pour une particule de NiAl impactant un substrat d'acier inoxydable, la forme de la lamelle est très différente de celle obtenue lors de l'impact d'une particule d'alumine sur le même type de substrat. Les conditions de préchauffage sont celles résumées sur la Figure III-25. Cinq conditions de températures différentes sont étudiées :

- Substrat à température ambiante (20°C)
- Substrat chauffé à 100°C / 10 min (courbe noire)
- Substrat chauffé à 200°C / 10 min (courbe bleue)
- Substrat chauffé à 290°C / 10 min (courbe verte)
- Substrat chauffé à 320°C / 16 min (courbe rouge)

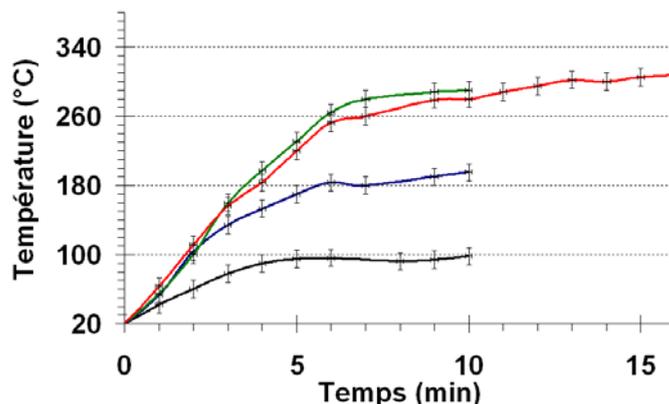


Figure III-25 : Evolutions de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage

* Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) à température ambiante

Pour un substrat à température ambiante aucun phénomène d'éjection à l'impact n'a pu être détecté.

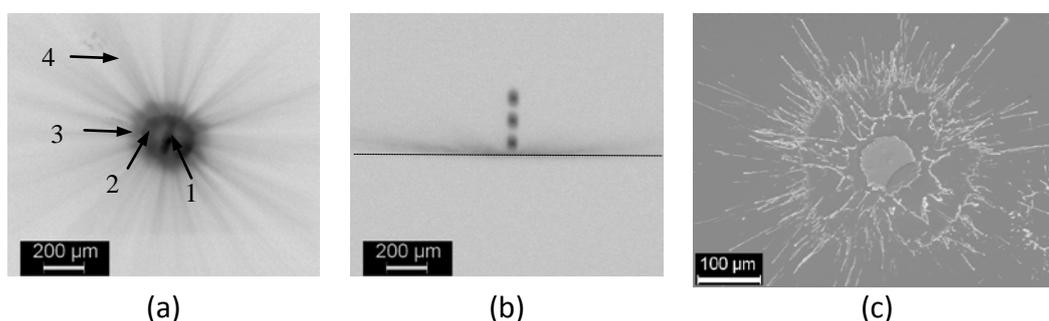


Figure III-26 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique ($40\ \mu\text{m}$) impactant à une vitesse de $117\ \text{m/s}$ sur un substrat d'acier inoxydable (type 304L), poli et à température ambiante, $t_{\text{exp}} = 10\ \mu\text{s}$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

Sur l'image de la caméra 1 (Figure III-26 (a)) quatre zones différentes sont présentes : la première située au niveau de la zone d'impact (diamètre $75\ \mu\text{m}$) plus claire, la deuxième annulaire plus sombre, la troisième également annulaire plus claire dont la périphérie présente des formes triangulaires, enfin une zone de trajectoires s'étendant sur tout le reste de l'image. L'image de la caméra 2 (Figure III-26 (b)) présente un phénomène d'éjection important avec des angles faibles (5°) comparés au cas de l'impact d'une particule d'alumine (30°). La forme finale de la lamelle est également différente du cas de l'alumine. En effet, ici il n'y a pas seulement un anneau de matière entourant une zone centrale de taille réduite, mais une zone

centrale de forme circulaire et homogène suivie d'un premier anneau au bord chaotique puis d'un autre anneau de forme plus circulaire mais dont la périphérie est hérissée de filaments de matière.

Pour mieux comprendre le phénomène d'étalement, il est nécessaire de superposer l'image de l'étalement avec celle de la lamelle résultante. Pour ce faire, il est nécessaire d'obtenir l'image de la lamelle finale dans les mêmes conditions que lors de l'étalement. Ainsi, un éclairage annexe focalisé sur la zone d'impact est utilisé pour photographier, à l'aide de la caméra 1, la lamelle résultante. Ensuite, il suffit de superposer les deux images obtenues.

La zone 4 correspond bien à un déplacement dans l'air de matière dû à un phénomène d'éjection à très faible angle puisque seulement quelques filaments de matière sont présents loin de la partie centrale. La zone grisée triangulaire (zone 3) correspond à la zone extérieure à la lamelle résultante. Le début de la zone grisée démarre à la périphérie de l'anneau le plus extérieur. Chaque pointe des triangles correspond à une trajectoire d'éjection. La zone la plus sombre (zone 2) est située entre l'intérieur du dernier anneau et l'extérieur du premier anneau. La zone centrale (zone 1) la plus claire correspond à la zone plate et homogène de la lamelle.

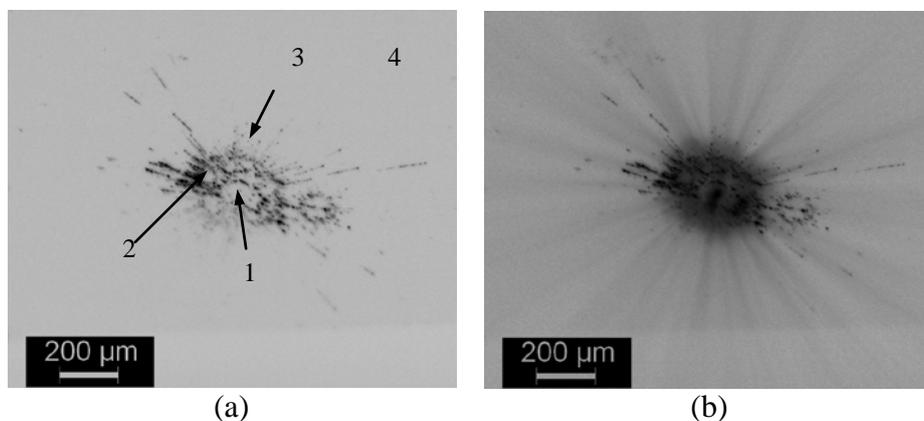


Figure III-27 : (a) image de la lamelle, après complet refroidissement, prise avec la caméra 1 en présence d'un éclairage annexe et (b) superposition avec l'image de la lamelle au cours de l'étalement.

Au vu de ces images, il existe probablement un film épais entre les deux anneaux. Et de toute évidence, en périphérie de la lamelle, sont éjectés (avec des angles faible $<3^\circ$), des morceaux de film, sous forme de copeaux.

Par rapport au cas de l'impact d' Al_2O_3 sur le même type de substrat, il n'y a pas d'accumulation de matière en périphérie et les angles d'éjections sont faibles. Enfin, le phénomène d'« impact splashing » n'a pas pu être détecté.

* Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) chauffés de 100 à 320°C

La Figure III-28 présente l'évolution de la forme de la lamelle en fonction de l'augmentation de la température du substrat.

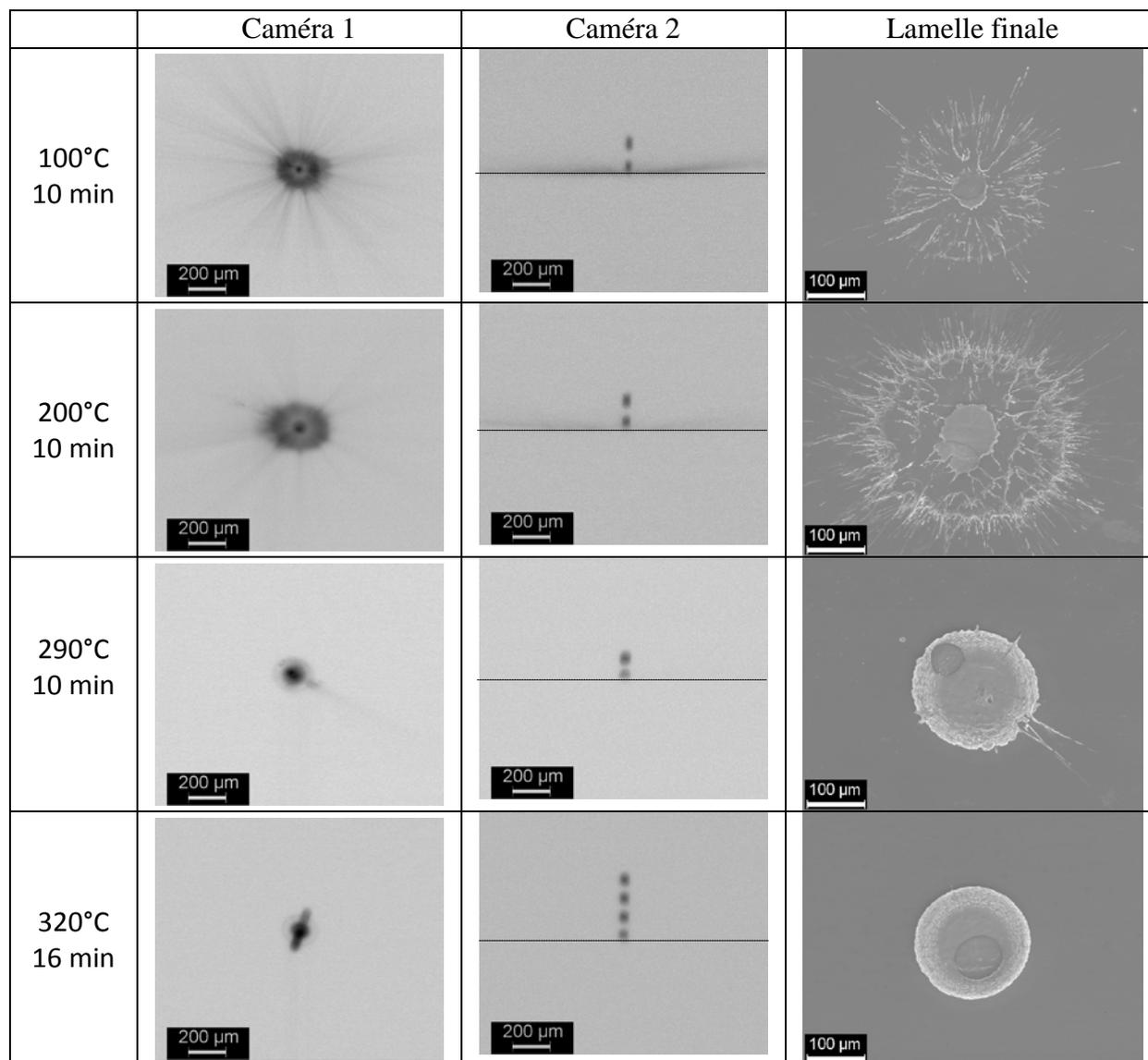


Figure III-28 : Photographies de l'étalement de particules de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 110 m/s sur un substrat en acier inoxydable (type 304 L), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et de la lamelle résultante (dernière colonne). Chaque ligne correspond à une procédure de chauffage différente.

Au fur et à mesure de l'augmentation de la température du substrat, le phénomène d'éjection en provenance de l'anneau le plus extérieur se réduit, avec toujours des angles d'éjections faibles. La périphérie de la lamelle est plus circulaire (Figure III-28, cas à 200°C) que pour le cas à 20°C où l'anneau est mal défini et présente des discontinuités. Mais la lamelle déposée n'est toujours pas uniforme.

Il est nécessaire de chauffer à 290°C pour commencer à voir apparaître des lamelles sous forme de disque avec quelques éjections en périphérie. Pour obtenir des lamelles parfaites (sans éjection), il est nécessaire de chauffer le substrat à 320°C / 16 min. Cependant, la lamelle n'est pas uniforme et présente un anneau périphérique avec des vagues de matière (Figure III-28, cas à 320°C). Ces vagues de matière sont dirigées de l'intérieur vers l'extérieur de la lamelle et se propagent selon des arcs de cercles concentriques (Figure III-29, flèche 1).

Par ailleurs, la lamelle finale présente une partie plus sombre (Figure III-29, flèche 2), qui ne semble pas avoir perturbée l'écoulement de la matière sur le substrat. Cette zone sombre est présente sur de nombreuses lamelles, indépendamment de la température du substrat. La partie plus foncée apparaît fissurée et se trouve en surépaisseur par rapport aux autres parties de la lamelle. Un pointé EDS a mis en évidence une concentration en oxygène plus importante dans cette zone foncée, indiquant clairement que cette partie est plus oxydée que le reste de la lamelle. Cette calotte peut donc provenir du processus d'oxydation durant le trajet de la particule au sein du jet plasma.

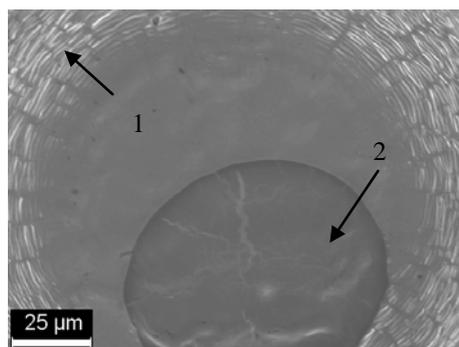


Figure III-29 : Agrandissement de la zone centrale d'une lamelle de NiAl déposée sur un substrat d'acier inoxydable, chauffé à 320°C / 16 min

Pour obtenir des lamelles circulaires, il a fallu chauffer au-delà de 300°C et donc, par rapport à l'alumine sur le même type de substrat, il existe une différence de 100°C. Par ailleurs, dans le cas de l'alumine la zone périphérique ondulée n'est pas présente.

* Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) chauffés à 320°C / 16 min puis refroidi à 20°C

Il est maintenant nécessaire de connaître le comportement du NiAl sur un substrat froid mais préchauffé avant le tir selon des conditions permettant d'obtenir des lamelles en forme de disque (350°C ; 16 min). Pour ce faire, la lamelle est déposée juste après le refroidissement du substrat. Le substrat a donc été exposé moins de 1 min à l'air ambiant. La forme de la lamelle obtenue n'est plus un disque parfait mais un disque avec de nombreux filaments de matière répartis symétriquement. Une forme intermédiaire entre le cas d'une lamelle circulaire et le cas d'une lamelle obtenue sur un substrat préchauffé à une température inférieure à la T_t est alors visible. Les filaments de matière correspondent au film présent sur l'image de la caméra 1 (Figure III-30, (a)). Le diamètre de la zone circulaire centrale est identique à celui de la partie homogène dans le cas de l'impact sur un substrat chauffé à 320°C / 16 min. Les particules incidentes ayant environ le même diamètre, dans les deux cas, il est possible de comparer la forme des lamelles.

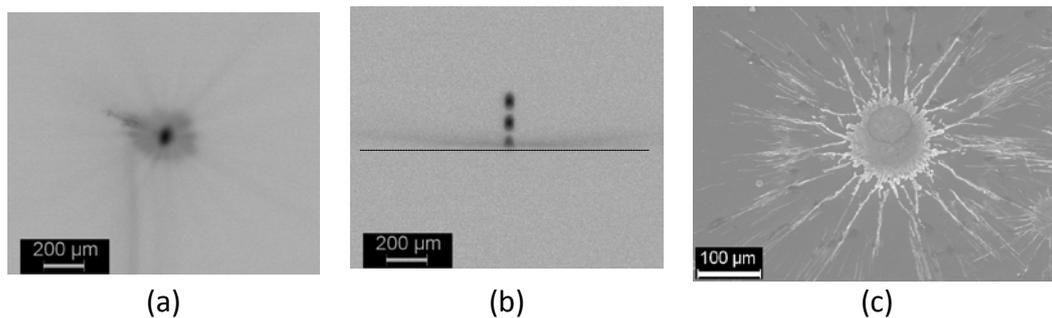


Figure III-30 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 106 m/s sur un substrat d'acier inoxydable (type 304L), poli et préchauffé à 300°C / 10 min puis refroidi à 20°C, $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

La superposition des deux lamelles permet de voir clairement que les filaments de matière dans le cas d'une surface froide correspondent à la matière qui se trouve sous forme de vague dans le cas d'un substrat chaud. La base de chaque éjection possède une amorce de zone ondulée. La température du substrat a donc un effet sur la forme de la lamelle en évitant l'apparition d'éjections en périphérie. Cependant, seules les conséquences du préchauffage (oxydation du substrat et / ou nettoyage de la surface) ont une influence sur la forme de la partie centrale qui semble posséder un diamètre critique au-delà duquel sa périphérie devient instable et est influencée par la température du substrat.

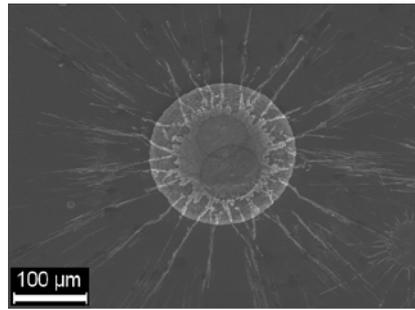


Figure III-31 : Superposition de lamelles obtenues sur un substrat chauffé dans les mêmes conditions (320°C / 16 min) mais dont la température est différente au moment de l'impact.

Ici le retour du substrat à température ambiante s'est accompagné d'une modification de la forme de la lamelle, alors que ce n'est pas le cas pour l'alumine impactant le même type de substrat. L'hypothèse précédente sur la modification de la chimie de surface due au chauffage du substrat, ne peut donc plus être avancée ici. Il est alors nécessaire d'étudier précisément pourquoi le retour à température ambiante modifie la forme de la lamelle.

*** Conclusions sur l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) : *influence de la température du substrat***

Dans le cas de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable de type 304 L, il est nécessaire de chauffer le substrat à 320°C / 16 min pour obtenir des lamelles régulières. La matière est éjectée la plupart du temps selon un angle faible. Le retour du substrat à température ambiante après un préchauffage dans les conditions optimales s'accompagne d'une dégradation dans la forme de la lamelle avec réapparition d'un film en périphérie de la lamelle, mais sans modification au niveau de la partie centrale de la lamelle.

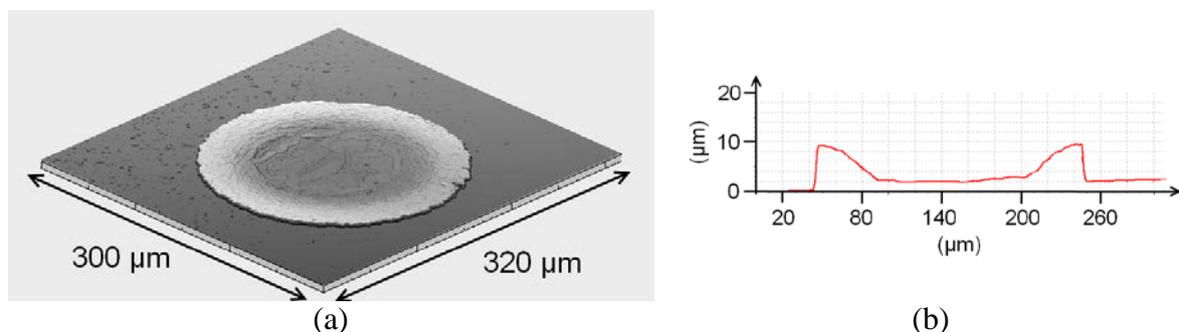


Figure III-32 : Etude topographique d'une lamelle de NiAl déposée sur un substrat d'acier inoxydable chaud (300°C / 10min) de type 304L, (a) vue générale de la lamelle et (b) vue du profil selon un diamètre.

Pour comprendre ce phénomène, il faut tout d'abord élucider le mécanisme de formation de la zone ondulée en périphérie de la lamelle. L'étude de la lamelle à l'aide du microscope interférométrique permet d'obtenir les résultats présentés sur la Figure III-32.

D'après Li et al [160], la propagation d'une onde est probablement à l'origine de ce phénomène. En effet, les particules métalliques, comme le cuivre ou le nickel, possèdent un nombre de Reynolds deux fois plus important que celui des particules de céramique. Dans le cas de liquide de faible viscosité (Reynolds élevé), une étude expérimentale sur l'étalement d'une particule liquide a montré que le front de matière est enclin à revenir vers la partie centrale [47], quand il a atteint son maximum d'étalement. Pour des particules qui se solidifient, la partie inférieure de la lamelle en contact avec le substrat peut être solide alors que la partie supérieure conserve du liquide qui peut être stoppé et, du fait de l'excès de quantité de mouvement, se ré étale en direction du centre de la lamelle. Lors ce processus, des oscillations au sein du liquide apparaissent [109], créant la zone ondulée annulaire observée en périphérie de la lamelle.

Dans notre cas, la zone ondulée apparaît plus épaisse que la partie centrale (Figure III-32, b) ($4 \mu\text{m}$ de différence). Le volume de matière, pour une particule sphérique de diamètre $40 \mu\text{m}$, est d'environ $33\,500 \mu\text{m}^3$, alors que le volume d'une lamelle de diamètre $120 \mu\text{m}$ et d'épaisseur égale à $2 \mu\text{m}$ (volume de la partie centrale, (Figure III-32, a), est de $22\,600 \mu\text{m}^3$. En considérant un rayon extérieur de $200 \mu\text{m}$, l'épaisseur théorique de la zone ondulée est de $0,5 \mu\text{m}$. La partie ondulée a donc subi un important relèvement lors du refroidissement (angle de 11°). Ce phénomène porte le nom de « splat curling » [133].

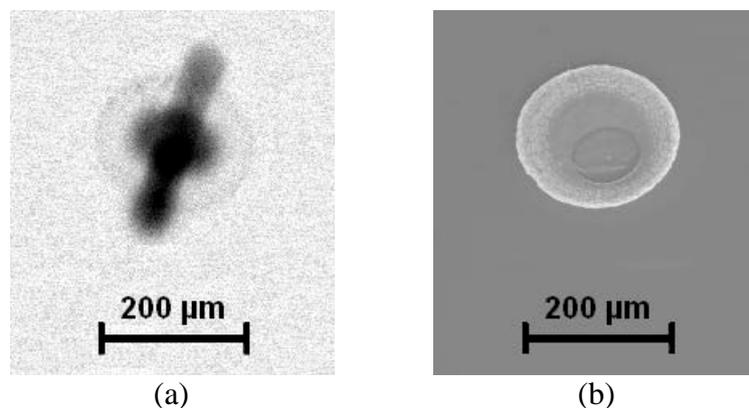


Figure III-33 : Vues zoomées de (a) l'image de la caméra 1 et de (b) la lamelle finale

En comparant l'image obtenue pendant l'étalement de la particule sur une durée de $10 \mu\text{s}$ (Figure III-33, a) et l'image de la lamelle résultante (Figure III-33, b), il apparaît dans les

deux cas, deux zones clairement marquées : une zone centrale circulaire, et une zone annulaire.

Le diamètre de la zone annulaire périphérique est de $200 \mu\text{m} \pm 4$ sur l'image de la caméra 1 (Figure III-33, a) et de $203 \mu\text{m} \pm 2$ sur l'image de la lamelle finale (Figure III-33, b). La lamelle n'a donc pas subi de phénomène de recul global après son étalement maximal. Cependant, sur l'image de la caméra 1 (Figure III-33, a), est présent un fin liseré extérieur indiquant la présence à un moment de l'étalement d'une accumulation de matière en périphérie. Ce fin liseré a une largeur d'environ $4 \mu\text{m} \pm 2$. Et donc un volume de matière d'environ $7700 \mu\text{m}^3$, en considérant un tore de matière de diamètre $4 \mu\text{m}$. En prenant en compte le volume de ce tore, l'épaisseur de la matière entre celui-ci et la partie centrale est d'environ $0,1 \mu\text{m}$. Or, sur l'image de la lamelle finale, ce bourrelet n'est pas visible (Figure III-33, b). Il y a donc eu un phénomène d'étalement de l'excès de matière en périphérie mais pas de recul global de la périphérie de la lamelle.

Il s'avère que la zone annulaire est beaucoup moins lumineuse que la zone centrale (Figure III-33, a). Or, même si les calculs de volume ne permettent d'avoir qu'une idée de la répartition de la matière, ils montrent clairement que la partie ondulée a une épaisseur très faible par rapport à la partie centrale, elle se refroidit donc beaucoup plus vite. La solidification à l'interface, qui freine l'avancée du front de matière, et l'excès de l'énergie cinétique, qui accumule la matière en périphérie, provoquent l'apparition d'un bourrelet de matière en périphérie. Or, ici, aucune éjection n'est présente : l'énergie cinétique n'est pas suffisante pour vaincre les forces de tension superficielle. La matière subit donc un phénomène de recul en direction du centre de la lamelle. Mais cela se produit sur une partie déjà solidifiée, ce qui entraîne le phénomène supposé par Li and Al précédemment décrit [160]. Dans le cas de l'alumine, la tension superficielle n'est pas suffisante pour vaincre les forces de viscosité et le bourrelet reste en périphérie.

Que ce passe-t'il alors dans le cas d'un substrat préchauffé puis refroidi ?

Sur la Figure III-34 sont présentées les images zoomées de la caméra 1 et de la lamelle finale. Dans ce cas-là sur l'image de la caméra 1 une seule zone est visible, la partie de couleur noire qui correspond à la trajectoire de la particule incidente ne doit pas être prise en compte (Figure III-34, a).

La lamelle présente ainsi une teinte homogène, il n'y a donc pas de zone qui se refroidit plus vite qu'une autre. De plus, par rapport au cas précédent, il n'existe pas d'accumulation de matière en périphérie. Ici il apparaît clairement un film qui conduit, lors de sa rupture, à la création de filament de matière. La présence d'un film peut être assimilée à un mauvais contact qui diminue les forces de frottement. Or ici, les adsorbats n'ont pas eu le temps de s'adsorber suffisamment pour influencer l'étalement, le dépôt de la lamelle ayant été effectué 1 min après le refroidissement.

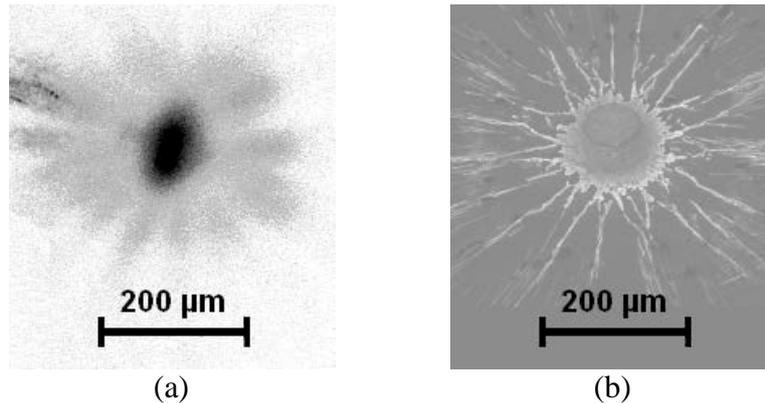


Figure III-34 : Vues zoomées de (a) l'image de la caméra 1 et de (b) la lamelle finale

La vitesse de trempe de la lamelle est faible ($149^{\circ}\text{C}/\mu\text{s}$). Or cette vitesse de trempe concerne le refroidissement de la face supérieure de la lamelle, la lamelle peut donc subir un refroidissement rapide à l'interface sans que cela soit détectable sur la surface de la lamelle.

D'après Fukumoto [183], la solidification rapide à l'interface sur substrat froid provoque l'apparition d'une couche solide, ce qui freine brutalement l'écoulement et provoque des éjections de matière. Ici, les filaments de matière ne résultent pas d'un phénomène d'éjection mais de la présence d'un film. La solidification à l'interface aurait donc permis l'éjection complète du front de matière et favorisé ainsi la création d'un film de matière.

Un autre phénomène est l'augmentation de la mouillabilité du liquide lorsque la température de surface du substrat augmente. Or si la mouillabilité augmente, les forces de frottement entre le substrat et le liquide en étalement augmentent, ce qui favorise une perte d'énergie cinétique. Si suffisamment d'énergie cinétique est perdue avant que le phénomène de solidification à l'interface ne stoppe la propagation de la phase liquide, l'éjection de matière est alors évitée. De ce fait, sur une surface préchauffée et froide, la perte d'énergie cinétique par frottement sur le substrat est plus faible que sur un substrat chaud. La matière a

donc tendance à s'étaler davantage et à former le film fin. Cependant, lorsque la solidification à l'interface entre en jeu, cela provoque la déstabilisation du film et sa fragmentation. Lors de sa fragmentation, la matière a tendance à migrer vers les zones déjà solidifiées et à former les filaments de matière observés.

Dans le Tableau III-8 sont résumés les différents paramètres des lamelles étudiées. Les particules impactent avec une température moyenne de 1800°C et une vitesse de 110 m/s.

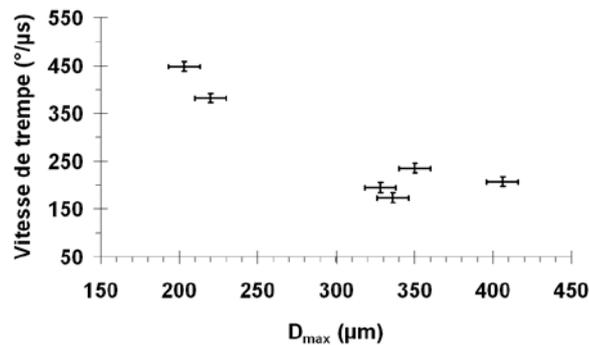


Figure III-35 : Evolution de la vitesse de trempe de particules de NiAl en fonction du diamètre d'étalement maximal de la lamelle.

Tableau III-8 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe) pour des particules de NiAl

particule	Condition de préchauffage	v_o (m/s) ± 5	T_o ($^{\circ}\text{C}$) ± 100	D_{max} (μm) ± 4	D_{min} (μm) ± 2	v_{trempe} ($^{\circ}\text{C}/\mu\text{s}$) ± 10
18	20°C	117	1900	406	88	210
19	100°C / 10min	130	1600	336	60	180
20	200°C / 10min	117	2000	328	103	200
21	290°C / 10 min	90	1400	220		380
22	320 °C / 16 min	106	2000	203		450
23	320°C/16 min 20°C/1min	106	2100	350	133	240

Comme dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat de 304 L, la vitesse de trempe évolue en fonction de la température du substrat et en fonction du diamètre d'étalement : plus la température de chauffage est importante plus la lamelle se refroidit rapidement et plus le diamètre d'étalement est faible (Figure III-35). Les courbes de refroidissement sont présentées dans l'Annexe 4.

La rugosité de surface des différents substrats, dans le cas d'un substrat non chauffé et d'un substrat chauffé dans les conditions optimales pour obtenir des lamelles circulaires est donnée dans le Tableau III-9.

La rugosité des deux substrats est différente. Cela est dû au chauffage du substrat qui a favorisé la croissance de la couche d'oxyde sur la surface du substrat. Cette augmentation de la rugosité a pu favoriser la forme en disque de la lamelle comme le supposent certains auteurs [37] [170].

Tableau III-9 : Rugosité de surface des substrats d'acier inoxydable froid (20°C) ou chauffé (320°C / 10 min)

	R _a (nm)	R _{Δq} (nm)	R _t (nm)	S _k
Substrat non chauffé	8	10	98	-0,08
Substrat chauffé à 320°C / 16 min	16	21	182	-0,96

En conclusion, comme dans le cas de l'alumine, plus la lamelle s'étale, moins elle se refroidit, et plus la température du substrat augmente, plus le diamètre de la lamelle se réduit. Pour des lamelles circulaires, l'étalement est plus important dans le cas de particules de NiAl. Par contre, la température de transition d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) est proche de 320°C±20, pour un temps de chauffage de 16 min et une rampe de chauffage de 45°C/min. Il existe donc 100°C de différence par rapport au cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat de type 304L.

Dans le paragraphe suivant, est présentée la température de transition sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242).

b) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242)

Pour une particule de NiAl impactant un substrat d'alliage de titane, la forme de la lamelle est globalement identique à celle obtenue sur un substrat de d'acier inoxydable. Les conditions de préchauffage sont celles résumées sur la Figure III-36. Quatre conditions de températures différentes sont présentées :

- Substrat à température ambiante (20°C)
- Substrat chauffé à 100°C / 10 min (courbe noire)
- Substrat chauffé à 210°C / 10 min (courbe violette)
- Substrat chauffé à 350°C / 16 min (courbe rouge)

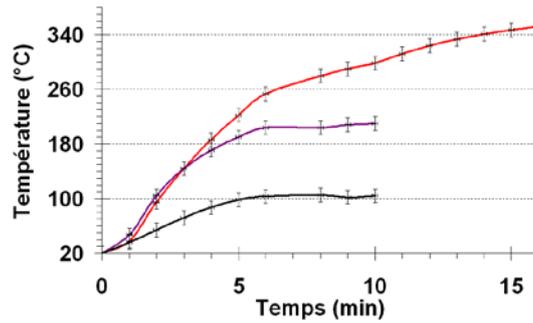


Figure III-36 : Evolution de la température de surface du substrat suivant les différentes conditions de chauffage

*** Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante**

Lorsque la particule de NiAl impacte sur un substrat à température ambiante, l'étalement de la particule est globalement uniforme avec une zone périphérique dessinant un anneau large, cette zone correspond à la portion de la lamelle déchiquetée. De nombreuses éjections sont présentes en périphérie et la partie centrale est moins lumineuse que l'anneau périphérique. Les éjections se font avec un angle faible, quasi parallèlement au substrat. Le point noir au centre correspond à la particule au moment de l'impact. En effet, il existe un retard entre les deux caméras afin d'éviter de visualiser l'arrivée de la particule sur l'image de la caméra 1 alors que cette trace est nécessaire dans le cas de la caméra 2 qui est, là encore, en mode exposition multiple.

Globalement, l'étalement est identique à celui obtenu sur un substrat en acier inoxydable.

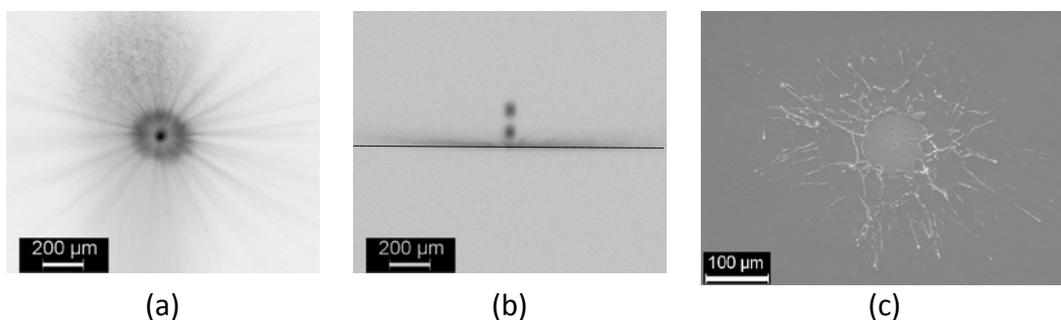


Figure III-37 : Photographies de l'étalement d'une particule de NiAl de taille micrométrique (40 µm) impactant à une vitesse de 109 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), poli et à température ambiante, $t_{exp}=10\mu s$ suivant deux directions (a) perpendiculaire et (b) tangentielle et (c) lamelle résultante

* Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffés de 100 à 350°C

Lorsque que le substrat est chauffé à 100°C / 10 min, aucune différence majeure avec le cas précédent n'est notée. Et il peut être remarqué que l'angle d'éjection est très faible puisque des traces de matière, correspondant à des trajectoires d'éjection, sont présentes sur le substrat (Figure III-38, flèche, cas à 100°C / 10 min).

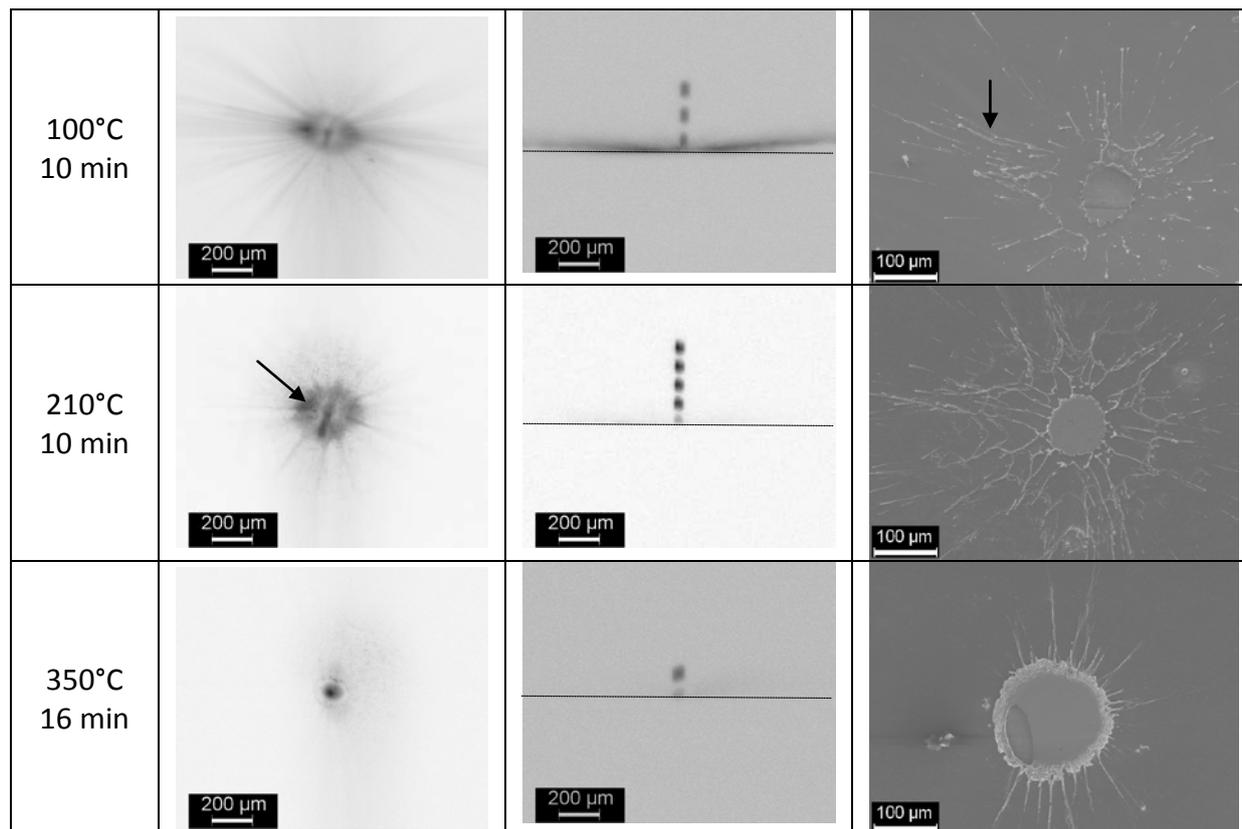


Figure III-38 : Photographies de l'étalement de particules de NiAl de taille micrométrique (40 μm) impactant à une vitesse moyenne de 114 m/s sur un substrat d'alliage de titane (type 6242), $t_{\text{exp}}=10\mu\text{s}$ suivant deux directions, perpendiculaire (caméra 1), tangentielle (caméra 2) et de la lamelle résultante (dernière colonne). Chaque ligne correspond à une procédure de chauffage différente.

Pour un substrat chauffé à 210°C / 10 min, le phénomène d'éjection périphérique se réduit et la lamelle présente des filaments de matière partant du centre de la lamelle en direction de sa périphérie. Ces filaments de matière résultent de la rupture d'un film mince, comme en témoigne l'image de la caméra 1 (Figure III-38, flèche, cas à 210°C / 10 min), qui montre clairement la présence d'un film de matière.

Pour ce type de substrat, il n'a jamais été obtenu de lamelle parfaite. Elles présentaient toujours des éjections en périphérie, même à 350°C / 16 min, et l'augmentation du temps de chauffe n'a rien changé. Il faut noter qu'avec le système utilisé, il n'est pas possible de dépasser les 400°C et la température de transition est sûrement un peu plus élevée. Pour ce type de lamelle, la périphérie possède une zone de vagues de matière formant un anneau et les éjections prennent naissance à la périphérie de cette zone.

*** Conclusions sur l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane**

Dans le cas de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, il est nécessaire de chauffer le substrat à une température supérieure à 400°C pour obtenir des lamelles régulières, mais ceci n'a pas pu être confirmé du fait des limites en température du système de chauffage. La matière est éjectée dans la plupart du temps selon un angle faible (<3°). Dans le Tableau III-10 sont résumés les différents paramètres des lamelles étudiées. Les particules impactent avec une température moyenne de 2000°C et une vitesse de 114 m/s. Du fait de la difficulté à obtenir des images de l'étalement sur un substrat de d'alliage de titane, difficulté induite par la réflexion parasite provenant du jet plasma, peu de cas sont présentés ici. Et comme des lamelles de formes parfaites non jamais été obtenues, il devient difficile de tirer des conclusions, si ce n'est l'augmentation de la vitesse de trempe sur les substrats chauffés à 210°C et 350°C. Les courbes de refroidissement sont présentées sur l'Annexe 5.

Tableau III-10 : Résumé des données « en vol » (vitesse et température) et à l'impact (diamètre d'étalement maximal et vitesse de trempe)

particule	Condition de préchauffage	v_o (m/s) ± 5	T_o (°C) ± 100	D_{max} (μm) ± 4	D_{min} (μm) ± 2	V_{trempe} (°/ μs) ± 10
24	20°C	109	2000	304	80	100
25	100°C / 10 min	135	2100	292	79	90
26	210°C / 10 min	100	1900	310	93	180
27	350°C / 16 min	112	2100	192		260

La rugosité de surface des différents substrats, dans le cas d'un substrat non chauffé et d'un substrat chauffé à la température la plus haute, est donnée dans le Tableau III-11. La rugosité des deux substrats est proche, le chauffage du substrat n'a donc pas eu d'effet détectable sur la topographie de surface.

Tableau III-11 : Rugosité de surface des substrats d'alliage de titane froid (20°C) ou chauffé (300°C / 10 min)

	R _a (nm)	R _{Δq} (nm)	R _t (nm)	S _k
Substrat non chauffé	22	28	185	0,19
Substrat chauffé à 350°C / 16 min	17	22	174	-0,02

La température de transition d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242) est supérieure à 400°C et n'a pu être atteinte du fait des limites en température du système. Il existe près de 100°C de différence par rapport au cas soit de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'alliage de titane (Ti-6242), soit de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L).

c) Comparaison de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) et d'alliage de titane (Ti-6242) : origine de la température de transition

L'étalement de la particule de NiAl est globalement identique lors du changement de substrat. En effet, pour un substrat préchauffé en dessous de la température de transition, il existe dans les deux cas un film homogène entourant la zone centrale de la lamelle. Mais quelques différences existent entre les deux cas.

Il est nécessaire pour obtenir des lamelles circulaires de chauffer plus haut le substrat d'alliage de titane que le substrat d'acier inoxydable. En sachant, que pour un substrat d'alliage de titane, il n'a pas été possible d'obtenir des lamelles parfaites, seules des lamelles circulaires avec quelques éjections ont pu être obtenues.

Dans le cas du substrat d'acier inoxydable, le chauffage du substrat a modifié la topographie de surface du substrat. Ce qui a pu favoriser le mouillage entre la matière en étalement et le substrat et donc favoriser l'apparition de lamelles sans phénomène d'éjection [37]. Cependant, l'amélioration de la mouillabilité induite par cette couche d'oxyde n'est pas suffisante pour s'opposer à la diminution de la mouillabilité due au retour de la surface à température ambiante après le préchauffage.

Pour conclure, l'étalement de la particule de NiAl est globalement identique lors du changement de substrat, et l'influence de la température de transition sur la mouillabilité est confirmée.

L'étude chronologique de l'étalement présentée dans la partie suivante concerne uniquement l'impact sur un substrat d'acier inoxydable (304L), du fait de la réflexion parasite lors de l'utilisation d'un substrat en alliage de titane (Ti-6242).

III-2.2.2 Approche chronologique de l'impact du NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L).

Dans cette partie, seul le cas d'un substrat froid est présenté. Par contre, le processus de rupture du film est étudié en détail, pour mieux comprendre les phénomènes. Pour ce faire, dans une première partie, est présenté le processus d'impact par pas de $2 \mu\text{s}$, alors que dans la deuxième partie, est présenté le détail de la fragmentation du film, avec des temps d'exposition de $1 \mu\text{s}$.

a) Dynamique de l'étalement

Pour observer la dynamique de l'étalement, les images sont capturées pour différents temps d'étalement et donc pour des particules différentes, mais avec des conditions « de vol » proches. Le temps d'exposition des deux caméras est de $2 \mu\text{s}$ et les particules ont une vitesse proche de 120 m/s et une température à l'impact de 2100°C .

Dans la première ligne Figure III-39, correspondant à un déclenchement de $1,8 \mu\text{s}$ avant l'impact de la particule, il n'y a aucune éjection à l'impact.

Dans la ligne suivante Figure III-39, correspondant à un déclenchement de la caméra juste au moment de l'impact de la particule sur le substrat, la lamelle est homogène, à l'exception de la zone d'impact qui est très peu lumineuse, et semble donc se refroidir à une vitesse importante par rapport au film de matière. La périphérie de ce film apparaît comme découpée en forme de triangles. Des éjections de matière sont générées à partir de ces zones.

Dans la troisième ligne Figure III-39, la caméra a été déclenchée au moment de la décroissance des signaux pyrométriques et donc après le maximum d'étalement. Le film de matière se limite alors à la périphérie de la lamelle et certaines éjections, démarrant légèrement plus loin que la présence du film, sont visibles (flèche 1, Figure III-39) alors que d'autres sont générées au niveau du film (flèche 2, Figure III-39). Ces deux types d'éjections possèdent un angle d'éjection faible.

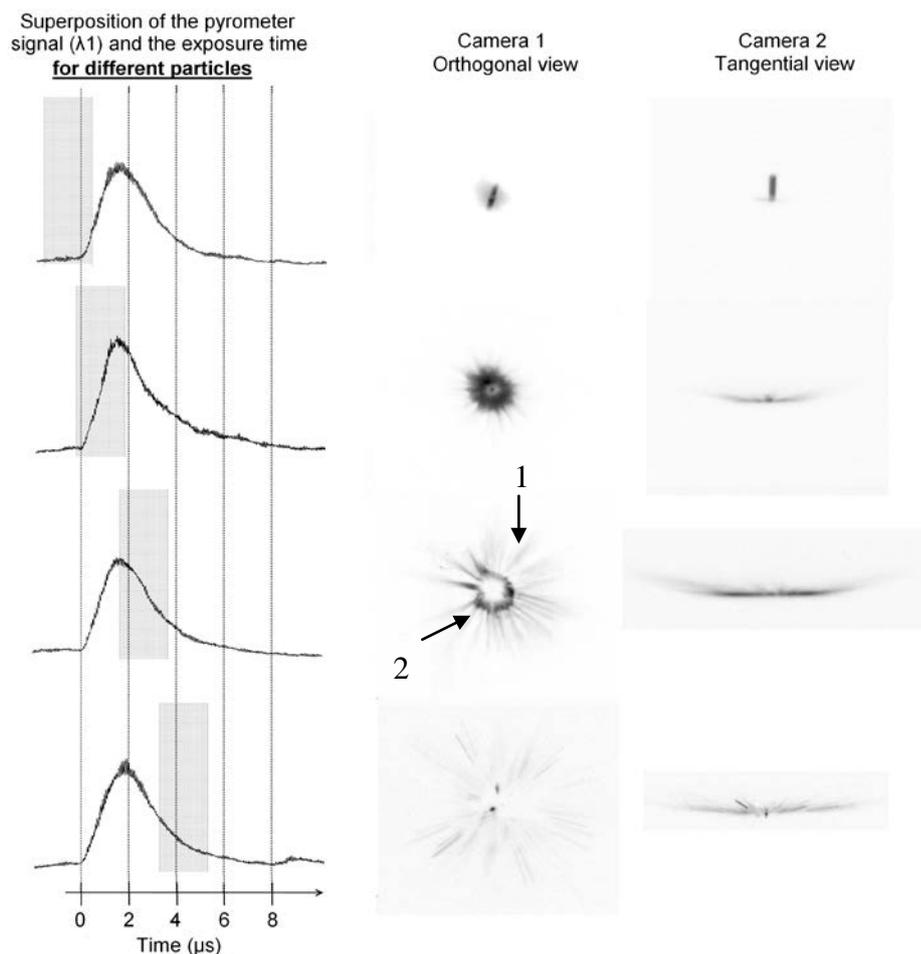


Figure III-39 : Visualisations du processus d'étalement pour différents moments de déclenchement et différentes particules de NiAl impactant un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : paramètres particules (vitesse et température à l'impact) et retard par rapport au moment de l'impact ; deuxième colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{exp} = 2\mu s$)

Enfin, au cours du refroidissement (voir Figure III-39, dernière ligne), des éjections sont présentes aussi bien en périphérie que dans la zone centrale. Les éjections de matière provenant de la partie centrale ont un angle plus important. Par ailleurs, la lamelle sur le substrat ne rayonne plus suffisamment pour être visible avec les caméras. Cela signifie que 3 μs après le maximum d'étalement, plus aucun mouvement de matière ne se produit.

b) Chronologie de la rupture du film

Pour détailler de façon plus précise la rupture du film, il est nécessaire d'abaisser le temps d'exposition à 1 μs . Le phénomène d'éjection en deux temps est confirmé. Le premier temps correspond à l'éjection de matière sous forme de morceaux provenant de la rupture du

film périphérique, avec réorganisation de la périphérie de la lamelle pour minimiser la tension superficielle, ce processus se produit au moment de l'étalement maximal. Le deuxième temps correspond à la rupture du film intérieur induisant la deuxième vague d'éjection.

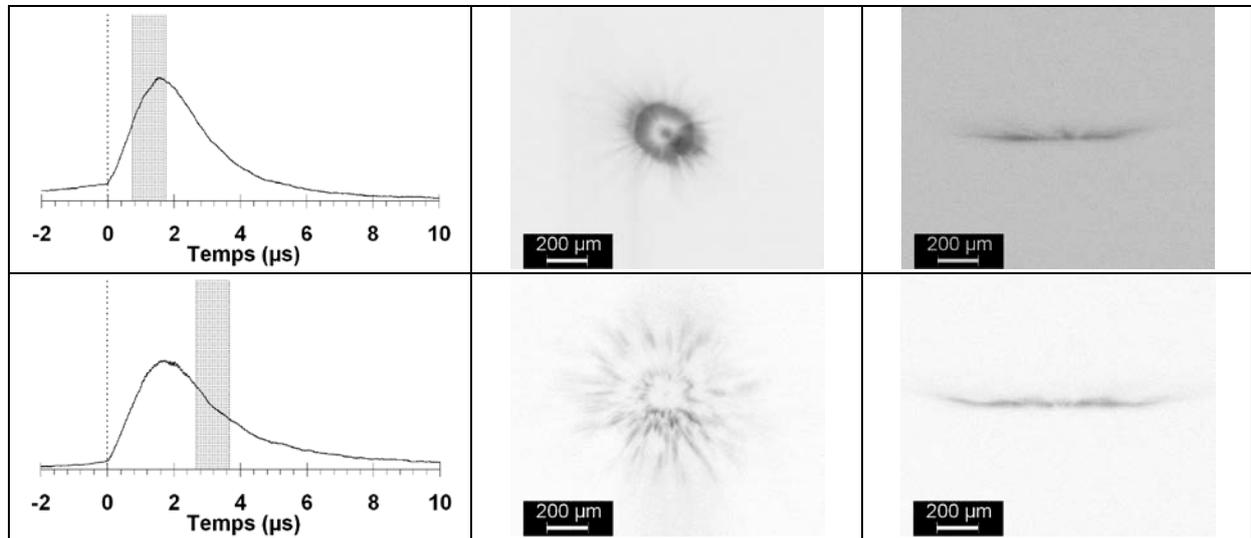


Figure III-40 : Visualisations du processus de fragmentation du film pour différents moments de déclenchement et différentes particules de NiAl impactant un substrat froid d'acier inoxydable. Première colonne : signaux pyrométriques ; deux dernières colonnes : respectivement vue perpendiculaire et vue tangentielle de l'étalement ($t_{exp} = 1\mu s$)

Par rapport au cas de l'alumine, le film est ici beaucoup plus cohésif et la fragmentation du film se produit en deux temps avec l'apparition d'une zone annulaire périphérique et non d'un bourrelet. De plus, le phénomène d'éjection périphérique est beaucoup mieux réparti sur tout le pourtour de la particule.

c) Conclusions

Dans ce paragraphe III-2.2.2, la dynamique d'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable (304L) a été précisée grâce au décalage temporel des prises de vues au cours de l'étalement. Ceci a permis d'observer les différents types d'éjections résultant de phénomènes divers.

A l'impact, contrairement au cas de l'alumine sur le même type de substrat, aucun phénomène d'éjections à l'impact n'a pu être observé :

- Pour les éjections radiales, elles peuvent être présentes et ne pas être détectées du fait de leur faible diamètre.

- Pour l'éjection perpendiculaire, si elle avait eu lieu, elle aurait entraîné l'apparition d'une porosité dans la zone centrale. Pour le NiAl, aucune lamelle n'a présenté de porosité centrale lors des essais. Ce type d'éjection est donc absent. Or, les particules de NiAl ont un point de fusion plus faible, et il est bien connu que les particules métalliques sont mieux traitées thermiquement que les particules céramiques. Ce type d'éjection est donc probablement provoqué par le rebond d'un cœur solide.

Une fois l'étalement maximal atteint, en présence d'un film, le phénomène d'éjection se produit en deux temps. Le premier temps concerne une zone périphérique présentant des bords dentelés (zone 1), chaque dent étant à l'origine d'une trajectoire d'éjection. Et le deuxième temps concerne la zone 2 située juste avant la zone 1 (Figure III-41). Ceci semble donc indiquer l'éjection de la périphérie du film (zone 1) dans un état semi solide, suivie de la rupture d'une partie du film central (zone 3) avec un mouvement probable de matière en direction de la zone annulaire périphérique (zone 2) et avec refroidissement rapide de la partie centrale (zone 4).

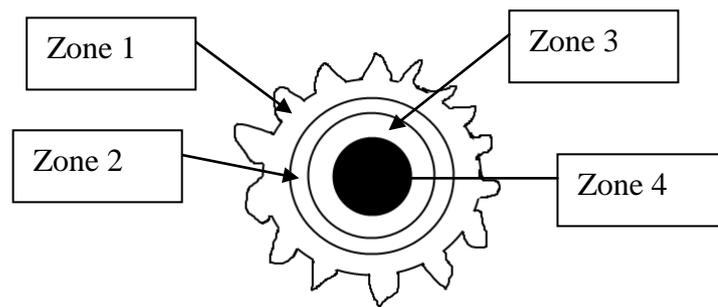


Figure III-41 : Schématisation des différentes zones de film au fur et à mesure de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat de type 304L à température ambiante.

Pendant le refroidissement, et en présence d'un film, un troisième lot d'éjections est initié par la rupture du film encore présent dans la zone annulaire périphérique (zone 2).

III-2.3 Conclusions sur le processus d'impact de particule micrométrique de type Al_2O_3 ou NiAl, sur deux types de substrat

Dans ce paragraphe, il est vu successivement l'influence de la nature des substrats et de la particule incidente, afin de conclure sur les différents phénomènes rencontrés dans le cadre de cette étude.

III-2.3.1 Influence de la nature des substrats métalliques : d'acier inoxydable (304L) ou d'alliage de titane (Ti-6242) sur la température de transition (T_t).

D'une façon générale, lorsque qu'une particule (Al_2O_3 ou NiAl) impacte sur un substrat d'acier inoxydable ou d'alliage de titane, les processus d'étalement sont globalement identiques pour une particule de même nature. Quel que soit la particule incidente, la température de transition (notée T_t) est toujours plus élevée sur un substrat d'alliage de titane par rapport à un substrat d'acier inoxydable (pour une particule d' Al_2O_3 , $T_t=200^\circ\text{C}$ sur d'acier inoxydable, $T_t=300^\circ\text{C}$ sur un alliage de titane).

Dans ce paragraphe, sont présentés successivement l'influence des adsorbats, de l'oxydation et de la diffusivité thermique sur la valeur de T_t .

Quel rôle joue la présence des adsorbats-condensats sur la valeur de la température de transition ?

Pour un substrat non préchauffé, la matière s'étale sur une grande surface et la vitesse de refroidissement est faible (de l'ordre de $100^\circ\text{C}/\mu\text{s}$), ce qui est caractéristique d'un mauvais contact thermique. Ce mauvais contact est dû à la désorption des espèces présentes à la surface du substrat qui induisent la présence d'une fine couche de gaz à l'interface réduisant les échanges thermiques et les frottements avec le substrat. Cependant, les adsorbats-condensats peuvent être supprimés en préchauffant le substrat [77]. Ici, les deux types de substrats ont été stockés dans les mêmes conditions après un protocole de polissage identique. Il existe deux types d'adsorbats : les physisorbés et les chimisorbés. Si les adsorbats physisorbés sont peu liés avec la surface, il n'en va pas de même pour les adsorbats chimisorbés, pour lesquels il est nécessaire de chauffer plus intensément pour pouvoir les enlever. Suivant les propriétés chimiques du substrat, les espèces chimisorbées sont plus ou

moins liées [78]. Et il peut exister en surface du substrat de nombreux types d'adsorbats [123]. Cela peut donc expliquer les différences présentes entre les deux types de substrats. Mais, par contre, cela n'explique pas qu'il existe, pour un même type de substrat, des températures de transition différentes suivant la particule considérée.

Quel rôle joue l'oxydation du substrat sur la valeur de la température de transition ?

La résistance à l'oxydation du substrat d'alliage de titane est plus importante que celle du substrat d'acier inoxydable. La surface de ce dernier subit en effet une modification de sa topographie de surface lorsque la température de préchauffage dépasse 300°C. Cette étude n'a pas été focalisée sur l'influence que pourrait avoir cette couche d'oxyde sur le processus d'étalement, mais des études précédentes ont montré que cette modification de la topographie de surface favorisait le mouillage de la matière sur la surface du substrat et améliorait la forme finale de la lamelle [37][170]. La température de transition plus élevée sur un substrat de Ti pourrait donc provenir de sa résistance à l'oxydation qui diminue la mouillabilité de la lamelle sur le substrat. Cependant, la couche d'oxyde doit rester relativement faible pour éviter une modification trop importante du transfert thermique.

La Figure III-42, tirée de [183], indique clairement que, plus l'oxyde est difficile à former, plus la température de transition est élevée. Ceci confirme donc le rôle de la formation d'une couche d'oxyde (jouant le rôle de tensioactif) sur la température de transition.

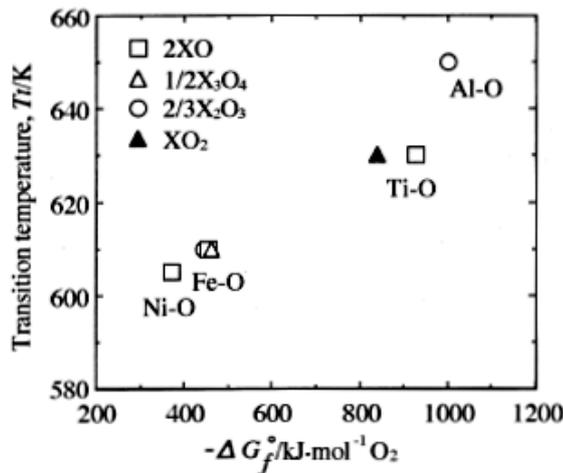


Figure III-42 : Lien entre la valeur de la température de transition et l'énergie de formation des oxydes [183].

La diffusivité thermique des substrats a-t-elle une influence sur la température de transition?

Pour un même état de pollution de la surface du substrat, et donc une même résistance thermique de contact entre le substrat et la lamelle, un des seuls paramètres qui conditionne le transfert thermique est la diffusivité thermique des substrats ($9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ pour l'acier inoxydable et $3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ pour l'alliage de titane). La diffusivité thermique de l'acier inoxydable, deux fois plus élevée que l'alliage de titane favorise le transfert thermique (en admettant une même résistance thermique dans les deux cas) et crée un gradient de température plus faible dans le substrat d'acier inoxydable et une température à l'interface plus élevée pour le substrat d'alliage de titane. Une température élevée pour l'alliage de titane devrait légèrement favoriser la diminution de la couche solidifiée de la lamelle, ce qui tendrait à diminuer T_t [183]. Or T_t sur un substrat de Ti-6242 est différent de T_t sur un substrat de 304L et les vitesses de refroidissement mesurées sont similaires pour les 2 substrats et un même type de particule incidente. En effet, la faible différence entre les valeurs de diffusivité thermique des deux substrats et la présence probable d'une couche d'oxyde à l'interface plus importante sur un substrat en acier inoxydable, que sur un alliage de titane, induisant une faible augmentation de la résistance thermique, ne permet pas d'avoir des transferts thermiques très différents. Il n'est donc pas possible de conclure sur le rôle du transfert thermique. Mais dans cette étude, son impact est probablement faible. Il est nécessaire de mener d'autres études avec des substrats présentant une diffusivité thermique plus élevée et avec une résistance à l'oxydation importante. Ce dernier point complique fortement le choix des substrats.

Conclusions sur le rôle des adsorbats, de l'oxydation, et de la diffusivité thermique sur la température de transition.

L'écart de l'ordre de 100°C entre les deux températures de transition d'un substrat de type 304L et d'un substrat de type Ti-6242 peut être dû à la résistance à l'oxydation plus élevée du substrat Ti, ce qui défavorise la mouillabilité de la phase liquide sur la surface, en considérant que la surface du substrat est propre. En effet, le rôle principal de la température de transition est d'augmenter le contact en réduisant la quantité d'adsorbats et donc la couche de gaz produite par la désorption brutale des espèces adsorbées en surface.

III-2.3.2 Influence de la nature de la particule incidente : céramique (Al_2O_3) ou métallique (NiAl) sur la température de transition.

Autant la nature du substrat ne change pas fortement l'étalement, autant les natures différentes des particules incidentes modifient l'étalement, que ce soit pour une température de substrat en dessous ou au-dessus de la température de transition. Cependant d'une façon générale, plus la lamelle s'étale, plus elle se refroidit lentement, compte tenu du fait que cet étirement est dû à un mauvais contact à l'interface. Tout d'abord les processus d'étalement rencontrés pour les deux types de matériaux sont rappelés puis ils sont comparés afin d'en déduire l'origine de la valeur de la température de transition.

a) Cas de Al_2O_3

Dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable ou d'alliage de titane, il existe deux types d'étalements obtenus respectivement pour une température de substrat au-dessous de T_1 ou au-dessus. Entre les deux cas extrêmes, la forme de la lamelle évolue progressivement. Il est possible de résumer cela selon trois points différents :

- A température ambiante, il peut exister un phénomène d'éjection à l'impact nommé « impact splashing », dépendant de l'état thermique et cinétique des gouttes. La matière s'étale ensuite en formant un film fin autour de la zone centrale. Une fois, l'étalement maximal atteint, une grande quantité de matière s'accumule en périphérie pour former un tore de matière. Des éjections de matière prennent alors naissance en des points de la périphérie. Puis, le film présent entre la périphérie et le centre de la lamelle se brise. La forme finale de la lamelle est alors un anneau discontinu de billes de matière périphérique avec une faible portion de solide au centre de la lamelle et dont le diamètre correspond approximativement au diamètre de la particule incidente.

- Lors du chauffage du substrat, la portion de matière solidifiée entre la périphérie de la lamelle et la zone centrale augmente. Le diamètre de cette zone croît au fur et à mesure de l'élévation en température du substrat. L'anneau de matière, résultant de l'accumulation de matière, se réduit également et il en va de même pour les éjections. Avec l'élévation de la température du substrat, les lamelles apparaissent de plus en plus circulaires avec en périphérie des filaments de matière, résultant d'un processus d'éjection direct (pas de

présence de film), chaque filament de matière est alors précédé d'un vide allongé ou d'un étirement local de la matière dans la zone périphérique.

- Lorsque le substrat est chauffé au-delà de la température de transition, la lamelle résultante est sous forme circulaire avec un fin tore de matière à sa périphérie (« splat curling » [133]).

De plus, indépendamment des conditions du substrat, apparaissent de façon aléatoire des éjections perpendiculaires lors de l'impact de la particule sur le substrat. Lorsque ce phénomène se produit pour une lamelle circulaire, cela conduit à l'apparition d'un vide au centre de la lamelle. Ce type d'éjection est différent de celui noté dans le cas de l'impact sur un substrat froid. Pour ce dernier, il existe de nombreuses éjections avec un angle maximal de 30°. L'éjection perpendiculaire peut être provoquée par de nombreux phénomènes (éclatement brutal d'une poche de gaz, présence d'un cœur solide dans la particule, ondes à l'impact...)

b) Cas du NiAl

Dans le cas de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable ou d'alliage de titane, il existe deux types d'étalements obtenus respectivement pour une température de substrat au-dessous de T_t ou au-dessus. Cependant, l'évolution entre les deux cas extrêmes n'est pas aussi nette que dans le cas de l'alumine. Il existe trois points principaux :

- En dessous de la température de transition, lorsque la particule impacte, aucun phénomène d'« impact splashing » n'a pu être mis en évidence. La matière s'étale ensuite en formant un film homogène autour de la zone centrale. Une fois l'étalement maximal atteint, une zone annulaire large se forme, présentant des bords triangulés en périphérie. Cette zone périphérique se désagrège alors sous la forme probable de morceaux solides car chaque pointe des triangles est à l'origine d'une trajectoire d'éjection. Au moment de l'éjection de cette zone, une déchirure du film en contact de la zone centrale s'amorce et provoque une deuxième vague d'éjection en périphérie de la lamelle. Cependant, une partie du film est encore présente en périphérie. Ce dernier film subit alors à son tour une fragmentation suivie d'un phénomène de démouillage en direction des zones déjà solidifiées, ce phénomène produit alors un troisième lot d'éjections.

- Plus la température du substrat augmente, plus le premier phénomène se réduit, l'anneau le plus extérieur, présentant une périphérie découpée en triangle, disparaît alors progressivement.

- Sur un substrat chauffé au-delà de la température de transition, la lamelle présente une forme circulaire régulière avec en périphérie une zone ondulée résultant du recul d'un anneau de matière accumulé en périphérie au moment de l'étalement maximal.

Dans le cas de l'impact d'une particule de NiAl, aucun phénomène d'éjection perpendiculaire à l'impact n'a pu être détecté. Cela peut confirmer que le phénomène rencontré avec des particules d'alumine résulte bien de la présence d'un cœur solide au sein de cette particule. Les particules de NiAl sont généralement dans un état de fusion supérieur à celui des particules d'alumine pour lesquels le phénomène de propagation de chaleur est très limité.

c) Comparaison des deux matériaux.

Quel est le rôle des propriétés physiques des matériaux sur la dynamique de l'étalement ?

Pour comprendre les différences rencontrées entre les deux types de matériaux, il est nécessaire de comparer les cas extrêmes.

Dans le Tableau III-12, sont comparés l'étalement des deux types de particules impactant un substrat de 304L, soit non chauffé (substrat froid), soit chauffé et maintenu à une température supérieure à celle de transition.

Sur un substrat à température ambiante, la particule d'alumine a tendance à s'étaler plus largement ($D_{\max} = 600 \mu\text{m}$) que la particule de NiAl ($D_{\max} = 400 \mu\text{m}$), alors que sur un substrat chaud, c'est plutôt l'inverse ($\text{Al}_2\text{O}_3 : D_{\max} = 100 \mu\text{m}$, NiAl : $D_{\max} = 200 \mu\text{m}$). Par ailleurs, la vitesse de trempe d'une lamelle de NiAl est deux fois plus rapide que celle de l'alumine. L'alumine est beaucoup plus visqueuse que le NiAl, mais la tension superficielle du NiAl est quasiment 3 fois plus importante que celle de l'alumine. De plus, alors que la viscosité du NiAl évolue peu avec la température, celle de l'alumine est triplée au cours du refroidissement.

Dans les premiers instants de l'étalement, la viscosité joue un rôle prépondérant par rapport au phénomène de tension superficielle, même s'il est nécessaire dans les premiers instants, de vaincre la tension superficielle pour permettre l'étalement de la particule. Après, au cours de l'étalement, quand la vitesse de propagation du fluide diminue, la tension superficielle entre en jeu et s'oppose à l'étalement [47][67].

Tableau III-12 : Comparaison de l'étalement pour deux types de particules (Al_2O_3 , NiAl) de taille micrométrique ($40\mu\text{m}$) impactant un substrat de type 304L dont la température est égale à 20°C ou au-delà la température de transition, les cercles représentent le diamètre d'étalement maximal.

		Particule : Al_2O_3 $v_0=210 \text{ m/s} \pm 5$ $T_0=2500^\circ\text{C} \pm 100$	Particule : NiAl $v_0=115 \text{ m/s} \pm 5$ $T_0=1900^\circ\text{C} \pm 100$
Substrat froid (20°C)	D_{max}		$400 \mu\text{m}$ 
	$v_{\text{trempe}}(^{\circ}\text{C}/\mu\text{s})$	70	200
Substrat chaud ($T > T_t$)	D_{max}	$100 \mu\text{m}$ 	 $200 \mu\text{m}$
	$v_{\text{trempe}}(^{\circ}\text{C}/\mu\text{s})$	270	450
Propriétés des matériaux [189-190]	Viscosité (mPa.s)	60 (2050°C) 20 (2800°C)	5 (1450°C) 4 (1600°C)
	Tension de surface (mNm^{-1})	652 (2050°C) 550 (2800°C)	1780 (1450°C) 1740 (1600°C)

Dans le cadre de cette étude, il existe deux cas :

- Sur un substrat froid, la goutte d' Al_2O_3 de plus grande viscosité est celle qui s'étale le plus ! Ceci peut être attribué au mauvais contact entre la lamelle et le substrat, ce qui ne permet pas de refroidir assez vite la matière. En effet, la lamelle de NiAl se refroidit plus vite et s'étale moins. Dans le cas de l'alumine, la viscosité plus importante est compensée par la faible vitesse de refroidissement. Par ailleurs, la tension superficielle du NiAl peut également contribuer à obtenir un plus faible diamètre que pour l'alumine.

- Sur un substrat chaud, la viscosité de l'alumine joue un rôle important dans la dissipation de l'énergie cinétique d'étalement. En effet, du fait de la vitesse de refroidissement élevée ($200^\circ\text{C}/\mu\text{s}$), et de la forte évolution de la viscosité au cours du refroidissement, les frottements visqueux sont importants. La vitesse d'étalement chute rapidement par rapport au

cas d'un substrat froid, ce qui induit une très forte évolution du diamètre maximal d'étalement (divisé par 6). Pour la lamelle de NiAl, le refroidissement plus important ne va pas modifier fortement le diamètre d'étalement puisque la viscosité évolue très peu lorsque la température diminue. L'évolution du diamètre d'étalement est donc faible par rapport au cas d'une surface froide (divisé par 2). Par contre, le diamètre de la lamelle de NiAl est plus important que celui de l'alumine (multiplié par 2), confirmant l'influence importante de la viscosité sur le diamètre d'étalement par rapport aux forces de tension superficielle. De plus, le bourrelet présent au moment de l'étalement maximal subit un phénomène de recul pour une lamelle de NiAl, alors que ce n'est pas le cas pour la lamelle d'alumine. Ceci est dû à une compétition entre la force de tension superficielle et la force de viscosité. Si la force de tension superficielle l'emporte, la matière accumulée en périphérie s'étale en direction du centre de la lamelle par contre si c'est la force de viscosité, le bourrelet se solidifie sur place. La solidification joue donc un rôle prépondérant sur l'étalement de la particule comme le suppose de nombreux auteurs [112][111][107][113]

Conclusions sur le rôle de la tension superficielle et de la viscosité sur l'étalement

L'étalement d'une particule sur une surface résulte d'une compétition entre les différentes énergies de viscosité, de tension superficielle, et de frottement. Chacune de ces énergies agit différemment suivant le contact thermique avec le substrat, mais également suivant le gradient de température présent dans la lamelle. Sur la Figure III-43 sont résumés de façon schématique, les différents cas pouvant être rencontrés suivant le bilan énergétique. Dans cette schématisation n'est pas représenté le processus de rupture interne du film qui dépend de la quantité d'adsorbats-condensats, des défauts de surface et de la tension superficielle. De plus, l'échelle en diamètre et épaisseur n'est pas respectée.

La lecture de ce schéma s'effectue ainsi :

Tout d'abord, est considéré un moment de l'étalement juste après l'impact de la particule. A partir de ce point, il peut y avoir deux types de phénomènes soit la présence soit l'absence d'un film :

- Si un film est présent cela signifie que l'énergie cinétique de la goutte est très grande par rapport à l'énergie dissipée au cours de l'étalement, la matière s'étale donc sur une grande surface. Une fois ce film obtenu, deux situations existent : soit le gradient de température au sein du film est important, soit il est faible. S'il est important, cela signifie que la partie

supérieure du film peut être liquide, la matière peut alors s'écouler en direction de la périphérie pour former un bourrelet, ce qui conduit à un phénomène d'éjection fortement angulaire ($>30^\circ$) du fait de l'obstruction dans l'écoulement. Dans le cas d'un gradient de température faible, l'ensemble du film se refroidit, ce qui ne permet pas à la matière de s'accumuler en périphérie, mais du fait du mouvement d'ensemble, les parties périphériques moins adhérentes vont alors être éjectées dans un état semi solidifié, et selon un angle faible ($<3^\circ$).

- Si aucun film n'est présent, ceci signifie que l'énergie cinétique de la goutte est proche de l'énergie dissipée au cours de l'étalement, la matière s'étale donc sur une plus petite surface. Il apparaît alors un bourrelet périphérique. Si l'énergie cinétique est encore supérieure aux énergies de tension superficielle et de viscosité, des éjections se produisent alors en périphérie. Dès que l'énergie cinétique n'est plus suffisante pour vaincre E_V et E_T , le bourrelet se stabilise en périphérie. A ce moment-là, les énergies de viscosité et de tension superficielle rentrent en compétition : si E_V est supérieure à E_T , le bourrelet se solidifie sur place, mais si c'est l'inverse, le bourrelet se réétale en direction de la partie centrale.

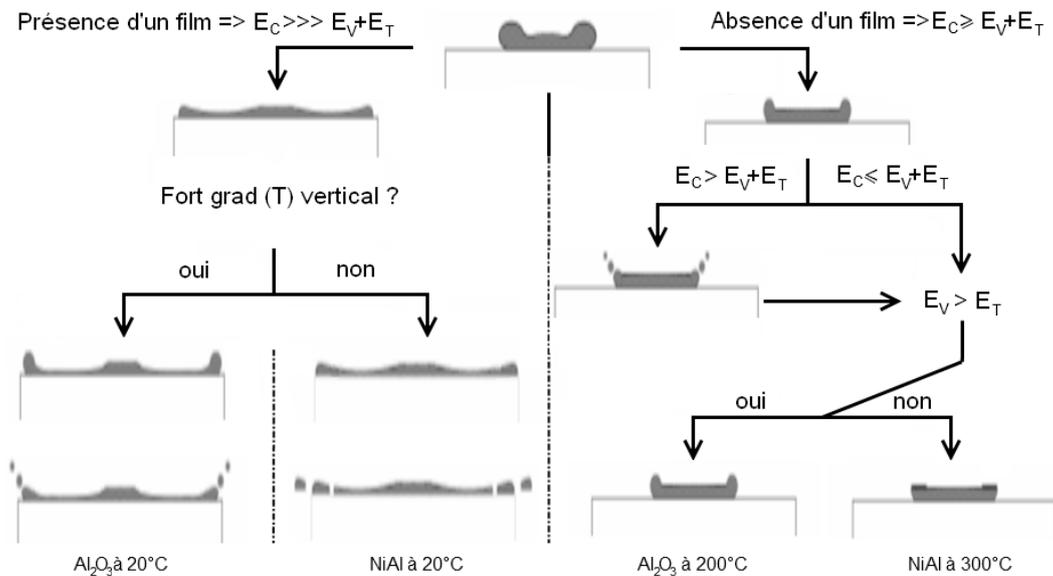


Figure III-43 : Schématisation du processus d'étalement en termes de bilan énergétique et de refroidissement, et exemples de cas (impacts sur un substrat type 304L)

Sur ce schéma différentes abréviations sont utilisées :

- | | |
|---|---|
| - E_C : Energie cinétique. | - E_D : Energie dissipée lors de l'étalement |
| - E_V : Energie visqueuse. | - ΔT : Gradient de température vertical au sein de la lamelle |
| - E_T : Energie de tension superficielle. | |

III-2.3.3 Relation entre la température de transition et le bilan énergétique de la lamelle.

a) La désorption des adsorbats et des condensats du substrat

Un des rôles bien définis de la température de transition est la désorption des éléments présents à la surface du substrat. En effet, à température ambiante pour un échantillon non préchauffé, de nombreuses espèces peuvent être présentes à la surface du substrat [123][124], ce qui induit un nuage de vapeur à l'interface lamelle / substrat, réduisant le transfert thermique mais également les frottements avec le substrat. De ce fait, la goutte perd très peu de son énergie cinétique, ce qui induit la présence d'un film. Par contre, au fur et à mesure de l'élévation en température du substrat lors d'un préchauffage, les adsorbats présents en surface s'évaporent, ce qui augmente le transfert thermique et les frottements et permet donc d'obtenir des lamelles circulaires sans éjections.

b) L'augmentation de la mouillabilité avec la température

Dans le cas d'un substrat préchauffé selon des conditions optimales pour obtenir des lamelles circulaires puis refroidi à température ambiante, le seul cas où il a été possible d'obtenir à nouveau des lamelles circulaires, est l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable.

Dans les autres conditions (Al_2O_3 sur Ti, NiAl sur Fe), le retour à température ambiante s'est accompagné de divers phénomènes :

- Diminution de la vitesse de trempe
- Apparition d'un film de matière en périphérie de la lamelle conduisant à l'apparition de filaments radiaux provenant du centre de la lamelle mais le centre de la lamelle est globalement inchangé
- Dans le cas du NiAl, la zone périphérique ondulée est absente ou très faible.

Pour expliquer, la particularité de l'impact de la particule d'alumine sur le substrat d'acier inoxydable, il faut tout d'abord penser au transfert thermique entre la lamelle et le substrat or les vitesses de trempe sont proches pour les deux substrats (d'acier inoxydable : $100^\circ\text{C}/\mu\text{s}$; d'alliage de titane : $140^\circ\text{C}/\mu\text{s}$). Cependant, le substrat de 304L peut subir une légère modification de la structure de son oxyde ce qui augmente la mouillabilité de la lamelle

sur le substrat. Et comme la mouillabilité d'un liquide sur une surface augmente en fonction de la température, cela signifie qu'un des rôles de la température de transition est d'augmenter la mouillabilité et ainsi d'augmenter les frottements avec la surface du substrat [110].

Il est donc possible suivant les valeurs de la température de transition, de classer les couples particule / substrat par mouillabilité croissante : NiAl / Ti-6242 ; NiAl / 304L ; Al₂O₃ / Ti-6242 ; Al₂O₃ / 304L

Il est donc nécessaire d'étudier avec précision la mouillabilité de ces différents matériaux. Cependant, ceci est difficile à cause des températures de fusion des matériaux utilisés. En effet, pour étudier la mouillabilité de l'alumine sur un substrat d'acier inoxydable (304L), cela nécessite de monter à 2050°C alors que l'acier inoxydable fond à 1300°C ! Une des solutions pour résoudre ce problème est d'inverser les matériaux et d'étudier par exemple la mouillabilité de l'acier inoxydable sur l'alumine. Le problème est qu'il est dans ce cas impossible d'étudier l'évolution de la mouillabilité entre un substrat à 200°C et un autre à 300°C car il est nécessaire de monter jusqu'au point de fusion de l'acier inoxydable. Une autre solution serait d'étudier les variations d'angle d'avancée et de reculée lors de l'étalement de la particule sur les surfaces chauffées à différentes températures.

III-3/ Echelle millimétrique

Afin d'interpréter les résultats obtenus sur les gouttes micrométriques et d'améliorer la compréhension des phénomènes ayant lieu à l'impact, l'examen et le diagnostic d'impacts de gouttes millimétriques sont d'un grand intérêt. La chronologie de l'étalement est alors beaucoup plus précise. Les matériaux utilisés sont identiques à ceux utilisés pour l'étude micrométrique : l'alumine, et le nickel aluminium.

Dans le cas de l'alumine, il a été mentionné, au niveau micrométrique, la présence d'un film qui se brisait. Il faut à présent préciser au mieux la formation du film, du bourrelet périphérique, mais également le processus de fragmentation de ce film. De plus, il est intéressant de se pencher sur la chronologie des différents types d'éjection lors de l'impact ou au cours de l'étalement.

De même, pour une particule de NiAl, les différents points à étudier sont la formation du film, la zone triangulée périphérique, ainsi que le processus de fragmentation du film. Il est nécessaire, de plus, de préciser le rôle de l'oxydation de la goutte sur la dynamique de

l'étalement. Pour ce faire, le trajet de la goutte ainsi que l'impact sur le substrat se font soit en atmosphère oxydante (air) soit en atmosphère neutre (argon).

Par ailleurs, ici la température de transition est considérée comme identique à celle trouvée à l'échelle micrométrique, mais pour s'assurer d'un environnement propre à la formation de lamelles circulaires, la température du substrat est, dans certains cas, très supérieure à celle de transition (cas de l'alumine sur un substrat de 304L)

III-3.1 Etude de l'impact d'une goutte céramique : Al_2O_3

Dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine, l'étude à l'échelle micrométrique a montré, hormis la valeur de la température de transition, qu'il y avait peu de différences entre l'étalement sur un substrat d'acier inoxydable et un substrat d'alliage de titane. La plupart du temps, l'alumine est projetée sur un acier inoxydable plutôt que sur un substrat d'alliage de titane. Le but de l'étude à l'échelle millimétrique est de comprendre les phénomènes se déroulant à l'échelle micrométrique, cette partie porte donc uniquement sur le substrat d'acier inoxydable. Ce paragraphe présente tout d'abord l'étude du processus d'étalement, suivant différents angles de vues, d'une particule d'alumine sur un substrat de type 304L à température ambiante ou chauffé à 400°C. Puis dans une deuxième partie, est présenté le lien entre l'étalement et le refroidissement de la lamelle afin de mettre en lumière les limites de la comparaison micrométrique / millimétrique.

III-3.1.1 Chronologie de l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur un substrat de 304L à deux températures (20°C et 400°C)

a) Influence de la vitesse d'impact sur l'étalement.

Dans le Tableau III-13, sont présentées plusieurs séquences d'images prises à différents temps de l'étalement. Chaque colonne comporte une séquence d'images de l'étalement de la même particule.

Dans la première colonne (Tableau III-13, cas 1), l'impact de la goutte d'alumine se produit sur un substrat froid à une vitesse de 4 m/s, ce qui correspond à un nombre de Weber égal à 360 ($\Phi=5$ mm). Pour la deuxième (Tableau III-13, cas 2) et troisième colonne (Tableau III-13, cas 3), par rapport au cas 1, seule la vitesse d'impact est modifiée. Dans le cas 3, afin d'obtenir une vitesse de 10 m/s, le piston est utilisé et permet d'obtenir un nombre de Weber

similaire à celui obtenu en projection par plasma d'arc soufflé pour une particule d'alumine de 10 μm impactant à une vitesse de 200 m/s ($We_o=2300$).

Tableau III-13 : Visualisation de l'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique (5 mm) impactant à différentes vitesses (cas D1 à D3), et pour deux températures de substrat (cas D3 à D4)

Temps (ms)	Cas 1 ($\Phi=5$ mm; $v=4$ m/s) Substrat froid (20°C) $We_o = 360$	Cas 2 ($\Phi =5$ mm; $v=5$ m/s) Substrat froid (20°C) $We_o = 564$	Cas 3 ($\Phi =5$ mm; $v=10$ m/s) Substrat froid (20°C) $We_o = 2255$	Cas 4 ($\Phi =5$ mm; $v=10$ m/s) Substrat chaud (400°C) $We_o = 2255$ (prise de vue différente)
0				
1,6				
3,2				
4,8				
6,4				
12,8				

La comparaison des différentes colonnes, à une température de substrat constante (Tableau III-13, cas 1 à 3), montre que, lors de l'augmentation de la vitesse d'impact, la particule tend très logiquement à s'étaler beaucoup plus sur la surface. Du fait du mauvais contact entre la matière en écoulement et le substrat, il apparaît à partir d'une certaine vitesse d'impact (5 m/s) un film fin d'alumine à la surface du substrat. Ce film mince se développe de

plus en plus avec l'augmentation de la vitesse d'impact. Pour ces paramètres de caméra (temps d'exposition et obturateur), ce film apparaît noir excepté à ses bords où un bourrelet est présent.

Le maximum d'étalement est obtenu pour un temps de 1,6 ms. Ce temps ne semble pas être influencé fortement par la vitesse d'impact de la particule et ce malgré le plus grand diamètre d'étalement atteint lors de l'augmentation de vitesse. Cela montre clairement que la vitesse d'écoulement de la matière sur un substrat froid est directement liée à la vitesse d'impact (Tableau III-13). Une fois ce maximum d'étalement atteint, le film mince étendu autour de la partie centrale semble se casser en morceaux solides, seul le centre de la lamelle reste sur le substrat.

Pour quelle valeur du nombre de Weber un film est-il présent ?

Pour un nombre de Weber inférieur à 500, la matière tend à subir un recul en direction du centre (Tableau III-13, cas 1, $t = 3,2$ ms). Une fois les mouvements de matière terminés, une sphère est obtenue et non une lamelle. Ceci est dû au faible contact thermique (dû à une faible énergie cinétique) entre la matière liquide et le substrat, il n'y a alors pas de solidification rapide de la lamelle à l'interface.

Pour obtenir une lamelle, il est nécessaire d'avoir, dans le cas de l'alumine, un nombre de Weber d'au moins 500. Cela correspond à l'énergie minimale de la particule pour lui permettre de se déformer et de vaincre les énergies visqueuses et de tension superficielle. Lorsque la particule approche le maximum d'étalement (Tableau III-13, cas 1, $t = 1,6$ ms), la vitesse d'étalement diminue et la force de tension superficielle commence à jouer un rôle, et la matière recule alors en direction du centre. Lorsque la vitesse d'impact augmente, la dissipation de l'énergie visqueuse, liée à l'augmentation de l'interface solide / liquide et un meilleur contact thermique lamelle / substrat, limite le recul de la matière. Mais cet excès d'énergie à l'impact induit la présence d'un film de matière qui s'étale rapidement autour de la partie centrale correspondant à la zone d'impact.

Dans le cas d'un nombre de Weber proche de celui obtenu en projection plasma (cas 3), il peut être noté que la particule s'étale plus, mais qu'elle semble se refroidir plus rapidement. En effet, il peut être constaté une baisse rapide de la luminosité de la lamelle par rapport au cas 2. Le refroidissement est tel que la partie centrale de la lamelle est solidifiée lorsque le piston arrive en bout de course (12,8 ms après l'impact). A ce moment-là, du fait de

la brutale décélération, la lamelle n'adhérant pas suffisamment au substrat, elle se détache (Tableau III-13, cas 3, $t=12,8$ ms).

Conclusions sur le nombre de Weber critique.

Pour obtenir un film de matière et conserver une forme de lamelle au cours du refroidissement, il est nécessaire de dépasser un nombre de Weber de 500, ce qui correspond à une vitesse à l'impact de 5 m/s. Ce nombre de Weber critique est lié à la dissipation de l'énergie cinétique au moment de l'impact. En dessous d'un weber de 500, l'énergie perdue n'est pas suffisante, car le contact substrat / lamelle est trop faible.

Que se passe-t-il sur une surface chauffée au-delà de T_t ?

Sur une surface préchauffée, il peut être observé (Tableau III-13, cas 4) qu'il n'y a pas de film mince étendu autour de la partie centrale. Ce qui permet de supposer que l'étalement est influencé par le meilleur contact thermique entre la particule en phase d'étalement et la surface du substrat, augmentant les frottements, et de ce fait, l'accumulation de matière sur les bords de la lamelle. Ce meilleur contact est provoqué par la désorption des adsorbats présents à la surface des substrats froids. Afin de mettre en évidence les différences entre une surface froide et chaude, l'acquisition de la particule sur substrat chaud est surexposée. Cela permet de mettre en évidence le refroidissement très rapide de la partie centrale de la lamelle sur un substrat chaud (Tableau III-13, partie apparaissant noire à $t=12,8$ ms). Alors que les bords de la lamelle sont encore liquides lorsque le piston arrive en fin de course. La partie centrale est suffisamment adhérente pour résister à la brutale décélération du piston, alors que la périphérie ne l'est pas. Cela met en évidence le gradient de points de contact entre le centre et la périphérie de la lamelle. Ce gradient est provoqué par le fait que la matière à l'impact possède une forte énergie, lui permettant de diminuer la résistance thermique par incrustation du liquide dans les anfractuosités du substrat alors que lorsque la matière s'étale, la propagation du liquide est parallèle au substrat ce qui est défavorable à un bon contact. Ce qui évolue dans le même sens que la pression du liquide sur la surface du substrat [184].

Conclusions sur l'influence de la vitesse d'impact :

Les points essentiels sont :

- Sur un substrat froid, un film mince de matière autour d'une partie centrale plus épaisse, est présent si le nombre de Weber est supérieur à 500. Les bords du film présentent

une accumulation de matière. La lamelle se refroidit en premier lieu au niveau de ce film et a très peu de contacts avec le substrat.

- Sur un substrat chaud, aucun film de matière n'est présent et la lamelle se refroidit préférentiellement par son centre. La partie centrale est suffisamment adhérente pour résister à la brutale décélération du piston. Les points de contact sont plus nombreux au centre qu'en périphérie.

L'influence de la vitesse incidente de la goutte ayant été étudiée, qu'en est-il maintenant de la formation du film ?

b) Formation du film de matière

Afin de comprendre la formation du film, deux cas sont étudiés en parallèle. Le premier concerne l'effet d'un obstacle sur le trajet du film et le deuxième concerne l'effet d'une grande quantité d'adsorbats-condensats présents en surface du substrat.

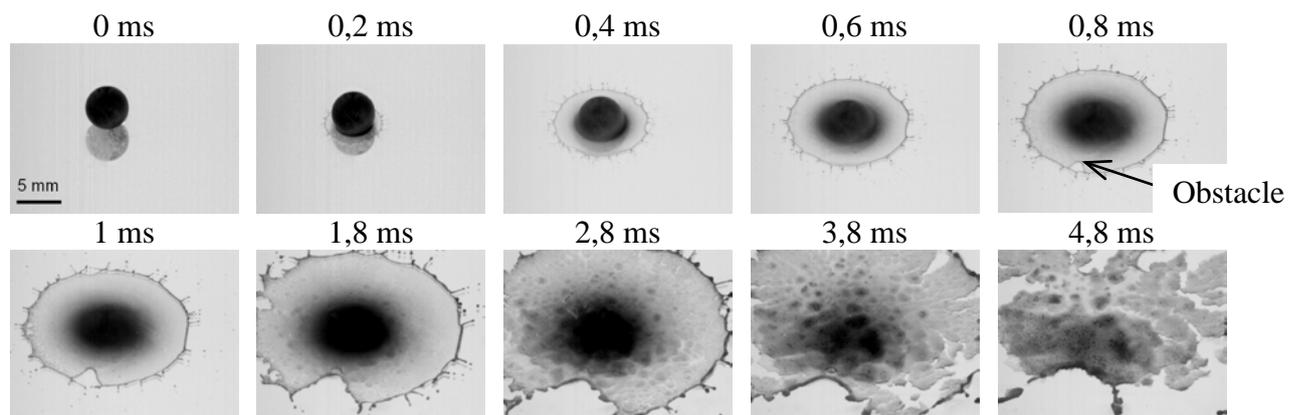


Figure III-44 : Visualisations de la chronologie de la formation et de la fragmentation du film en présence d'un obstacle sur le substrat.

Tout d'abord en étudiant le processus d'étalement de la particule sur le substrat sans considérer le phénomène induit par la présence de l'obstacle, il est possible de remarquer (Figure III-44) que le film se forme dès l'impact de la particule sur le substrat, qu'il se propage ensuite sur le substrat sans subir de phénomène de fragmentation. Quelques filaments de matière sont déjà présents en périphérie et avancent à la même vitesse que le front de matière. Ce front de matière devient de plus en plus important au fur et à mesure de son étalement. Au moment de l'étalement maximal, à $t = 2,8$ ms, le front de matière est stoppé et forme un bourrelet périphérique. Les filaments de matière, mentionnés plus haut, se séparent

alors de la périphérie. Puis le film se solidifie et se fragmente sous la forme de fragments solides.

La présence d'un obstacle (ici une déclivité de quelques μm dans le substrat), perturbe localement l'écoulement mais ne produit pas d'effet global sur les autres parties du film. Les effets de l'obstacle (Figure III-45) peuvent être décrits par les points suivants :

- Le bourrelet périphérique formé à partir de $t=0,2$ ms, passe au-dessus du trou sans être perturbé à $t = 0,6$ ms
- Le film étant perturbé par l'obstacle, il se sépare du bourrelet à $t=0,8$ ms
- Une accumulation de matière se forme au niveau de l'obstacle mais également de chaque côté ($t=0,8$ ms)
- Le bourrelet continue sa progression mais se fragmente à $t = 1$ ms, pendant ce temps les bourrelets présents de chaque côté du trou augmentent en épaisseur.

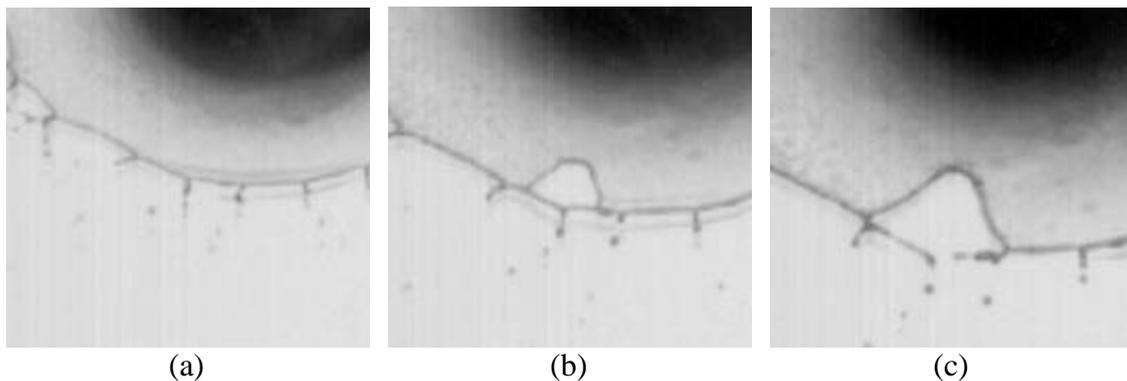


Figure III-45 : Vues des images présentées sur la Figure III-44 agrandies et centrées sur la position de l'obstacle, (a) passage du front de matière au-dessus de l'obstacle, (b) séparation du film et du bourrelet, (c) cassure du bourrelet.

Tout ceci indique que le film est provoqué par un phénomène ayant lieu à l'impact, probablement la désorption des adsorbats-condensats présents à la surface du substrat qui créent un nuage de vapeur sous haute pression, ce qui éjecte la matière avec un angle par rapport au substrat (hypothèse confirmée dans la partie suivante). En effet, si le front de matière était en contact avec le substrat, il aurait été perturbé par la déclivité or il passe au-dessus sans la voir. Par contre, la matière se trouvant juste après le front de matière est en meilleur contact avec le substrat puisqu'elle est arrêtée par la présence du trou. De plus, le front de matière n'est pas très épais au moment de sa formation, mais il s'épaissit au fur et à mesure de sa propagation et chaque côté du trou la matière s'accumule indiquant la présence d'un écoulement de matière suivant le front de matière. Le film de matière ne résulte donc pas

uniquement de l'étalement du bourrelet initial. Finalement, le film se fragmente sous la forme de fragments solides.

Sur la Figure III-46, l'évolution du diamètre d'étalement est reportée en fonction du temps. Dans les tous premiers instants la matière s'étale à une vitesse de 15 m/s, alors qu'au fur et à mesure de l'étalement, la vitesse de propagation se stabilise à 2,5 m/s, soit 6 fois moins. Ceci indique que, lors de l'impact, un front de matière est éjecté. Puis, au fur et à mesure de son avancée, il ralentit. Ce ralentissement peut être provoqué par la diminution du nuage de gaz au fur et à mesure de l'étalement. La matière, des couches supérieures plus chaudes, peut poursuivre son étalement et rattraper le front. La matière s'accumule en périphérie, et le front de matière stabilise sa vitesse d'avance jusqu'à ce que l'étalement maximal soit atteint. L'arrêt brutal induit alors la séparation des filaments de matière présents sur le bourrelet initial et la fragmentation du film.

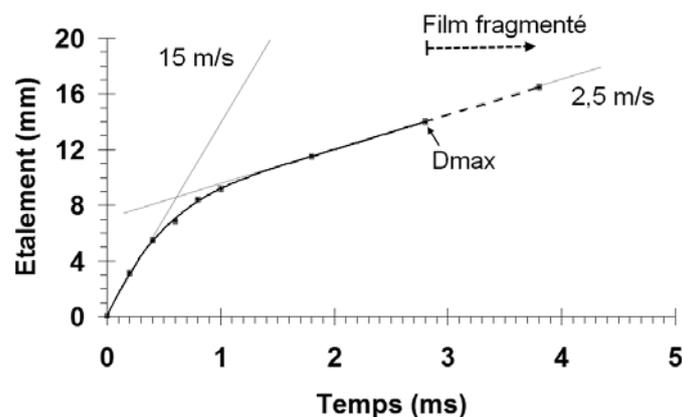


Figure III-46 : Evolution du diamètre d'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique impactant un substrat de type 304L froid.

Conclusions sur l'effet d'un obstacle sur le parcours du film

La présence de l'obstacle a permis de mettre en évidence le fait que le film de matière résulte de deux phénomènes :

- Le premier consiste à l'éjection d'un bourrelet de matière à haute vitesse, probablement sur « coussin de gaz », du aux gaz désorbés et à l'air emprisonné à l'interface.
- Le deuxième est l'écoulement du reste de la matière sur ce film. Cette matière vient alors buter contre le bourrelet initial, et augmente son diamètre. L'arrêt brutal du front de matière provoque des éjections périphériques.

Quel est le rôle des adsorbats-condensats sur l'étalement du film ?

L'étude des phénomènes d'étalement à l'échelle millimétrique peut permettre de simuler l'étalement de la particule dans des conditions proches de l'échelle micrométrique. Mais lors de l'augmentation du diamètre de la particule, l'effet de la désorption des espèces adsorbées n'a pas le même impact quantitatif sur l'étalement. En effet, en considérant que la quantité d'adsorbats-condensats par unité de surface est la même pour les substrats utilisés à l'échelle micrométrique et à l'échelle millimétrique, le rapport entre la quantité de gaz générée et l'épaisseur de la lamelle ne peut pas être respectée. Il est donc fortement probable que la solidification du film ne se produit pas à l'échelle micrométrique, car l'épaisseur de la couche de gaz par rapport à celle du film peut avoir comme effet de déstabiliser le film et de provoquer un phénomène de démoillage du film non solidifié en direction des zones en contact avec le substrat et déjà solidifiées.

Pour vérifier ces hypothèses, il est nécessaire d'augmenter la taille des adsorbats présents à la surface du substrat, afin d'augmenter la quantité de gaz générée. Pour ce faire, un fin nuage d'eau est déposé sur la surface du substrat, des gouttes d'eau (diamètre = 300 μm) uniformément réparties sur la surface sont alors présentes. La séquence d'image présentée sur la Figure III-47 est obtenue dans le cas de l'impact d'une particule d'alumine de diamètre 5 mm impactant le substrat mouillé et froid.

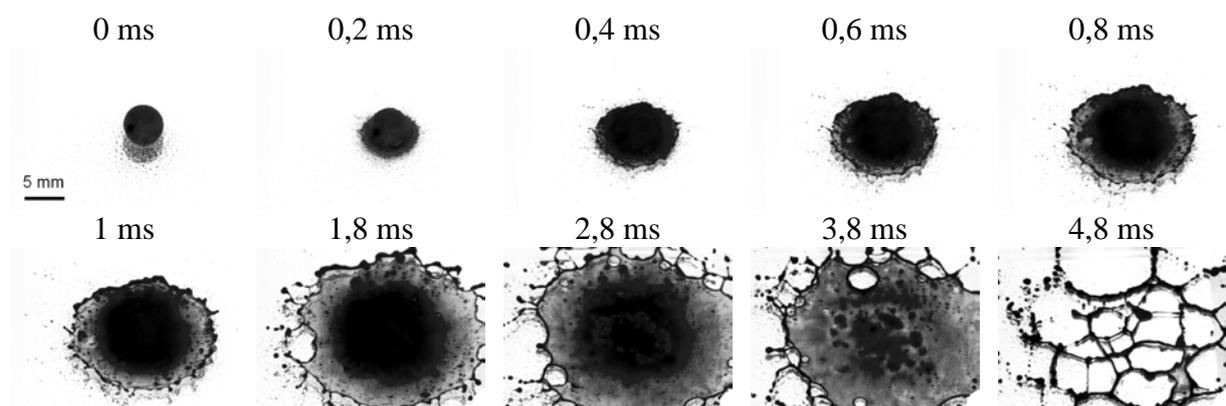


Figure III-47 : Visualisation de la chronologie de la formation et de la fragmentation du film sur une surface mouillée froide.

Il peut être remarqué, tout d'abord, que le film de matière éjecté lors de l'impact est beaucoup plus épais et qu'il se déplace à une vitesse plus importante (19 m/s) que dans le cas de la surface sèche (15 m/s). Ceci indique que ce phénomène est accentué par la grande quantité d'adsorbats présents à la surface du substrat. La présence de ce film peut donc être

liée à un mauvais contact avec le substrat. Ensuite, au cours de l'étalement, le bourrelet périphérique subit, comme dans le cas précédent, un accroissement de son diamètre mais l'étalement maximal est globalement inchangé.

Par contre l'avancée du front de matière est ici, très fortement angulaire, car il est possible d'observer le reflet du bourrelet sur le substrat au cours de l'étalement (Figure III-48). La vitesse d'étalement à la fin du processus d'étalement est par contre plus faible (0,6 m/s) que dans le cas d'une surface sèche (2,5 m/s). L'étalement de la matière est donc freiné. Ce phénomène peut être lié à l'absence de solidification. La force de tension superficielle peut alors agir sur la totalité de la surface de la lamelle et contrôler le diamètre d'étalement maximum alors que sur le substrat sec, la solidification intervient avant que l'énergie de tension superficielle ne prédomine.

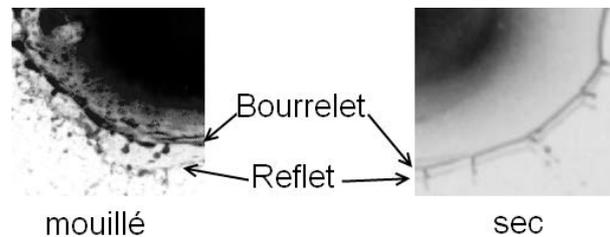


Figure III-48 : Comparaison de l'angle de propagation du bourrelet par observation de son reflet sur la surface du substrat entre un substrat mouillé et un substrat sec

Après le maximum d'étalement, des vides apparaissent au sein du film. Puis un phénomène de fragmentation totale du film par démouillage se produit. La matière forme alors des cellules creuses, puis les filaments de matière se fragmentent sous la forme de petites billes. A la fin de l'étalement, aucune bille n'est adhérente à la surface.

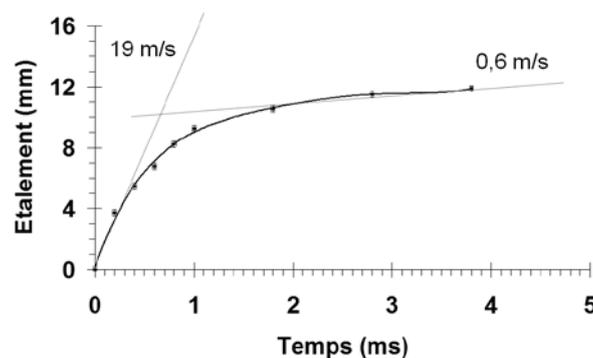


Figure III-49 : Evolution du diamètre d'étalement d'une particule d'alumine impactant un substrat de type 304L mouillé.

Conclusions du rôle des adsorbats sur le film

En présence d'une grande quantité d'adsorbats, aucun phénomène de solidification à l'interface n'a pu être détecté, et le film est resté entièrement liquide du fait du manque de contact avec la surface du substrat. Le front de matière était alors fortement freiné en fin d'étalement, par rapport au cas d'une surface froide et sèche. Cela permet de confirmer l'hypothèse que, lorsque la particule ne subit pas de phénomène de solidification, la tension superficielle joue alors un rôle important sur le contrôle du diamètre maximal. La particule, pour une vitesse d'impact donnée, ne peut donc s'étaler au-delà d'un diamètre donné.

Le rôle des adsorbats est alors d'éjecter le bourrelet de matière au moment de l'impact, du fait de leur désorption rapide au moment de l'impact, créant une importante quantité de gaz qui dévie le trajet du front de matière. Puis, au fur et à mesure de l'étalement, les adsorbats présents en dessous du film commencent à se désorber progressivement, jusqu'à ce que la pression du gaz à l'interface devienne trop importante et lui permette de traverser le film et de provoquer sa rupture et ensuite le phénomène de démouillage.

c) Formation des éjections de matière

* L'éjection centrale à l'impact.

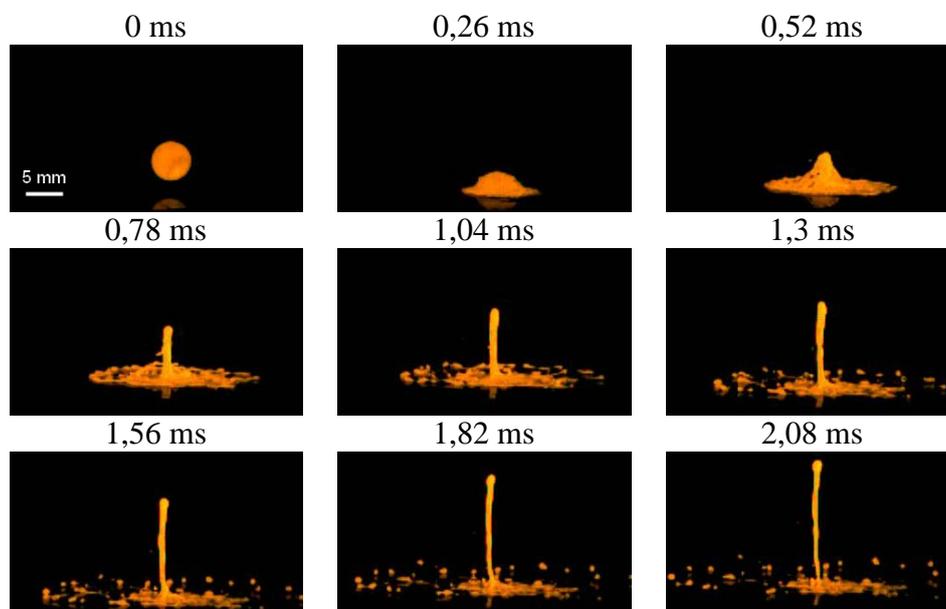


Figure III-50 : Visualisations du processus d'éjection perpendiculaire au substrat dans le cas de l'étalement d'une particule d'alumine de taille millimétrique présentant un cœur solide.

Il n'a pas été possible d'observer le phénomène d'éjection centrale dans les conditions normales d'expérience. Pour observer ce phénomène, le courant d'arc est modifié de 120 A à 100A, afin de conserver une partie solide au cœur de la particule. La séquence d'images présentée sur la Figure III-50 est alors obtenue.

La particule impacte à une vitesse de 10 m/s. A $t=0,26$ ms, la particule s'étale comme précédemment. Mais à partir de $t = 0,52$ ms, une colonne de matière monte en partie centrale, pendant que le reste de la particule continue à s'étaler. Cette colonne a une vitesse d'éjection de 7 m/s (Figure III-51), et donc une vitesse proche de celle de la particule incidente. Et à $t=2,08$ ms, une partie arrondie est présente à l'extrémité de l'éjection. Il s'agit donc vraisemblablement de la partie solide qui a rebondi sur la surface du substrat en entraînant, derrière elle, un filet de matière.

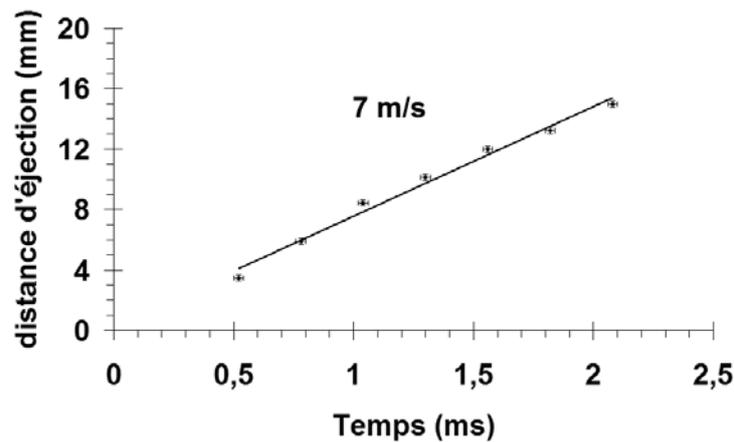


Figure III-51 : Evolution de la distance parcourue par l'éjection perpendiculaire en fonction du temps

Analogie avec les gouttes micrométriques :

Cette éjection perpendiculaire au substrat confirme que pour des particules micrométriques, les éjections perpendiculaires au moment de l'impact correspondent à des rebonds d'un cœur solide sur le substrat au moment de l'impact. A l'échelle micrométrique, la vitesse d'éjection est, elle aussi, inférieure ou égale à celle de la particule incidente.

** Les éjections générées pendant l'étalement*

Pour visualiser le plus précisément possible le phénomène d'éjection, il est nécessaire de savoir avec quel angle se produisent ces éjections. Pour ce faire, la caméra est placée suivant un axe faisant un angle de 2° avec la surface du substrat. Cet angle permet de

visualiser l'autre bord de la lamelle. Dans ce cas, pour pouvoir se rapprocher des conditions plasma, avec des nombres de Weber les plus proches possibles, le piston est utilisé pour augmenter la vitesse d'impact qui est alors de 10 m/s. Les impacts de particules sur une surface froide puis sur une surface chaude sont présentés successivement.

– Substrat froid

Sur la Figure III-52 sont présentées les vues tangentielles, prises à différents temps d'étalement, pour une particule d'alumine de diamètre 5 mm, impactant à une vitesse de 10 m/s sur un substrat froid.

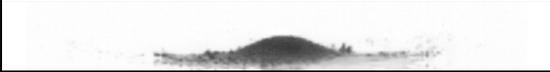
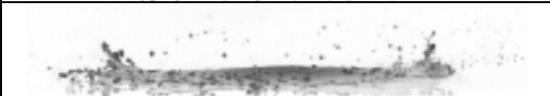
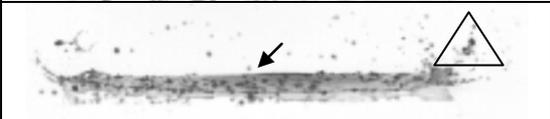
Temps (ms)	Substrat froid (20°C), vue tangentielle, $V_{\text{impact}} = 10\text{m/s}$
0	
0,6	
0,9	
1,2	
1,5	
1,8	
Images superposées	

Figure III-52 : Vues tangentielles de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante (20°C), la flèche pointe le côté opposé de la lamelle (dû à un angle d'observation de 2°)

Sur ce type de surface, le phénomène d'éjection de matière est le suivant :

- Des éjections parallèles issues des bords de la lamelle, avec une vitesse jusqu'à 50 m/s (particules entourées par le cercle, Figure III-52, t=0,9)
- Des éjections angulaires se détachant également des bords de la lamelle avec une vitesse de 10 m/s (particules entourées par le triangle, Figure III-52, t=1,5 ms)

- Et finalement, des éjections plus petites à faible vitesse, (particules entourées par le carré, Figure III-52, $t=1,8$ ms)

Afin de préciser la trajectoire des éjections, toutes les images ont été superposées (voir Figure III-52, dernière ligne). Il apparaît alors que les éjections angulaires, majoritaires, proviennent de la propagation d'une onde locale de matière lors de l'étalement. Ces ondes, qui apparaissent symétriques, sont en fait localisées seulement en quelques points du film. Elles ont été générées non loin de la zone centrale de la lamelle entre $t=0,6$ ms et $t=0,9$ ms, et leur apparition se fait en même temps que l'éjection de fines particules, avec un angle proche de 45° . Cette observation est à rapprocher de la formation du film à l'impact. En effet, là encore, la périphérie de la lamelle se propage sans contact direct avec le substrat.

En conclusion, des éjections de matière sont présentes en des points particuliers de la périphérie. Ces éjections sont de deux types :

- Parallèles : Provenant de l'éjection de la partie périphérique du bourrelet de matière.
- Angulaires : Provenant de la génération du film au moment de l'impact sur le substrat. Au départ, elles sont peu importantes mais au fur et à mesure de l'étalement de la matière, l'écoulement de matière interne au film alimente ces points de discontinuité ce qui leur permet de gagner en volume, et au moment de l'étalement maximal induit d'importantes éjections.

– Substrat chaud

Sur la Figure III-53, sont présentées les vues tangentielles, prises à différents temps d'étalement, pour une particule d'alumine de diamètre 5 mm impactant à une vitesse de 10 m/s sur un substrat chaud.

Sur un substrat chaud, il y a peu d'éjections et elles possèdent une vitesse inférieure à 8 m/s. Les éjections de matière sont parallèles (Figure III-53, cercle) et angulaires (Figure III-53, triangle).

Il semble que les éjections angulaires proviennent d'une instabilité dans l'écoulement, se produisant aux environs de 0,6-0,9 ms, et conduisant à la création de filaments fins de matière. Ces filaments se propagent en conservant un lien avec le substrat.

Les éjections parallèles se produisent majoritairement lorsque la lamelle a atteint son maximum d'étalement (à $t = 1,2$ ms).

Temps (ms)	Substrat chaud (400°C), vue tangentielle, $V_{\text{impact}} = 10\text{m/s}$
0	
0,6	
0,9	
1,2	
1,5	
1,8	

Figure III-53 : Vues tangentielles de l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable chauffé à (200°C), la flèche pointe le côté opposé de la lamelle (dû à un angle d'observation de 2°)

Analogie avec les gouttes micrométriques :

Ces différents types d'éjection à l'échelle millimétrique sont à rapprocher de celles rencontrées à l'échelle micrométrique. A l'échelle micrométrique, sur un substrat froid, des éjections radiales avec un angle proche de 30° sont présentes à l'impact et au moment de l'étalement maximal. Et sur substrat chaud, les éjections étirent localement le film en créant un vide dans la lamelle, laissant penser que cette éjection résulte d'un phénomène qui se produit avant l'étalement maximal.

Jusqu'à présent, les phénomènes observés sont relativement proches de ceux rencontrés à l'échelle micrométrique. Qu'en est-il de la vitesse de refroidissement ?

III-3.1.2 Refroidissement d'une lamelle d'Al₂O₃ millimétrique :

limites de la comparaison micrométrique / millimétrique

Les très grandes différences de taille influent fortement sur les transferts thermiques entre la lamelle et le substrat. Cela amène à déterminer les limites de la comparaison entre l'échelle millimétrique et l'échelle micrométrique. Les enregistrements thermométriques sont alors examinés. La Figure III-54 correspond aux signaux pyrométriques enregistrés pour une

lamelle impactant un substrat froid et sur un substrat chaud, à la longueur d'onde de 630 nm. Il peut être noté que les deux particules subissent un phénomène de surfusion durant l'étalement et la plus basse température de surfusion est atteinte quand la particule a atteint son étalement maximal (à environ 2-4 ms). Du fait de la cristallisation, la température augmente alors jusqu'au plateau de solidification.

La lamelle sur un substrat chaud se refroidit moins vite que sur un substrat froid. Cette tendance est le contraire de l'évolution rencontrée pour des particules micrométriques. En effet, pour ces dernières plus la lamelle s'étale et plus le refroidissement est lent. Ici la lamelle s'étale également plus sur un substrat froid mais elle se refroidit plus vite.

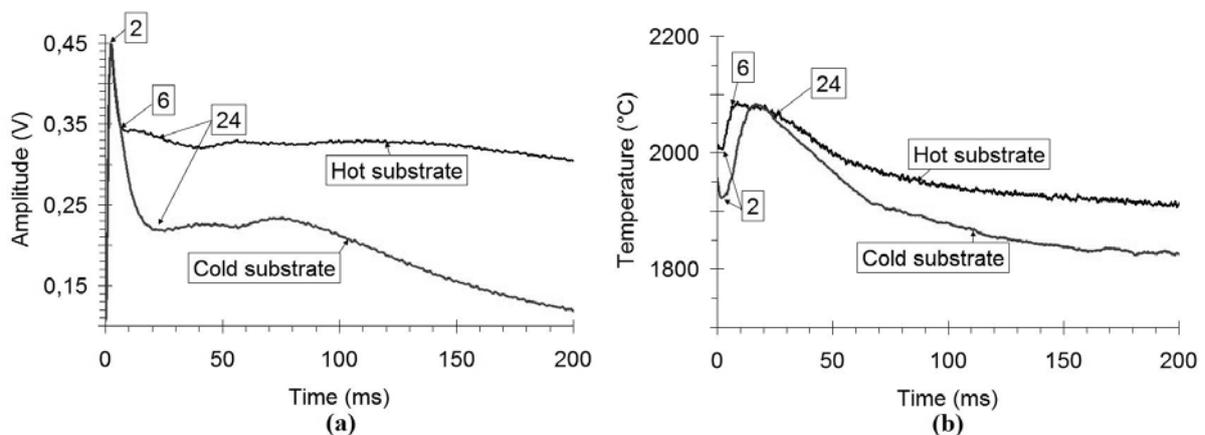


Figure III-54 : (a) Signaux pyrométriques ($\lambda=630\text{nm}$) et (b) évolutions de la température de surface de la lamelle pour une surface froide (20°C) et chaude (400°C), les nombres encadrés correspondent à des points temporels.

Il peut être remarqué une importante décroissance dans le signal pyrométrique, correspondant à la rupture du film, est donc à une perte importante de matière. La quantité de matière à refroidir est donc moins importante que dans le cas d'un substrat chaud où peu d'éjections se produisent. De plus, du fait de l'étalement important sur un substrat à température ambiante, la surface en contact avec l'air ambiant est importante ce qui favorise les transferts de chaleur par convection et rayonnement et l'épaisseur plus faible favorise les transferts par convection. Le refroidissement est donc plus rapide sur substrat froid contrairement à celui relatif à des lamelles micrométriques.

III-3.1.3 Conclusions

L'étude de la vitesse d'impact a montré qu'à partir d'une vitesse d'impact de 5 m/s ($We_o=500$) la forme de l'étalement n'est pas fortement modifiée. Lorsque la vitesse d'impact est augmentée, le diamètre d'étalement augmente. Les points essentiels sont :

- Sur un substrat froid, formation d'un film mince de matière autour d'une partie centrale plus épaisse. Les bords du film sont également plus épais. La lamelle se refroidit en premier lieu au niveau de ce film mais n'est pas adhérente. Lors de l'étalement, dans les tous premiers moments de l'impact, il peut apparaître de façon locale une perturbation dans l'écoulement qui provoque l'apparition immédiate d'éjections fines et la création d'une onde locale de matière qui conduit, au moment de l'étalement maximal, à la génération d'éjections fortement angulaires (angle = 30°).

- Sur un substrat chaud, aucun film de matière n'est présent et la lamelle se refroidit préférentiellement par son centre, la partie centrale étant suffisamment adhérente pour résister à la brutale décélération du piston. Par ailleurs, dans ce cas-là, il peut apparaître des perturbations locales du film conduisant à la création de fins filaments de matière. Ces filaments se propagent au cours de l'étalement en conservant un lien avec la lamelle jusqu'au moment de l'étalement maximal, où ces filaments se rompent en provoquant des éjections angulaires. Cependant, sur un substrat chaud les phénomènes d'éjections sont peu nombreux et souvent parallèles au substrat. Par ailleurs, le centre de la lamelle se refroidit plus rapidement que la périphérie, du fait d'un meilleur contact et d'une plus faible épaisseur.

Par ailleurs, il a été observé une différence dans l'évolution de vitesse de trempe par rapport au cas de lamelles micrométrique, confirmant les limites thermiques de la comparaison micrométrique / millimétrique.

III-3.2 Etude de l'impact d'une goutte métallique : NiAl

Du fait des analyses menées par le laboratoire de l'Université de Göteborg sur les lamelles micrométriques, et de l'étalement proche sur les deux types de substrat étudiés, seul le cas de l'impact du NiAl sur un substrat d'alliage de titane est développé. La différence avec le cas d'une goutte d' Al_2O_3 est naturellement l'oxydation « en vol » de la surface de la goutte. Il faut donc étudier l'effet de la présence de cette couche d'oxyde sur la dynamique de l'étalement. Pour ce faire, l'étalement de la goutte est étudié en fonction de l'atmosphère.

La première partie est consacrée à l'étude du processus d'étalement sous air. Puis, dans la deuxième partie, est présenté le processus d'étalement sous atmosphère d'argon. Dans chacune de ces parties, l'impact est étudié sur une surface à température ambiante et sur une surface chauffée au-delà de T_i . Puis en comparant les résultats présentés dans les deux parties, l'effet de l'oxydation sur l'étalement de la particule est expliqué. La vitesse d'impact est fixée à 5 m/s, pour obtenir un weber supérieur à 500.

III-3.2.1 Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous air

Dans ce paragraphe, il est question de visualiser l'étalement sous une atmosphère d'air d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante ou chauffé au-delà de la température de transition, notée T_i .

a) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante.

Afin d'observer au mieux l'étalement de la particule et plus particulièrement le comportement à la périphérie de la lamelle, et du fait de la nécessité de comprendre le phénomène d'éjection en deux temps lors de l'impact d'une particule micrométrique de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, seule la moitié de la lamelle est présentée (Figure III-55).

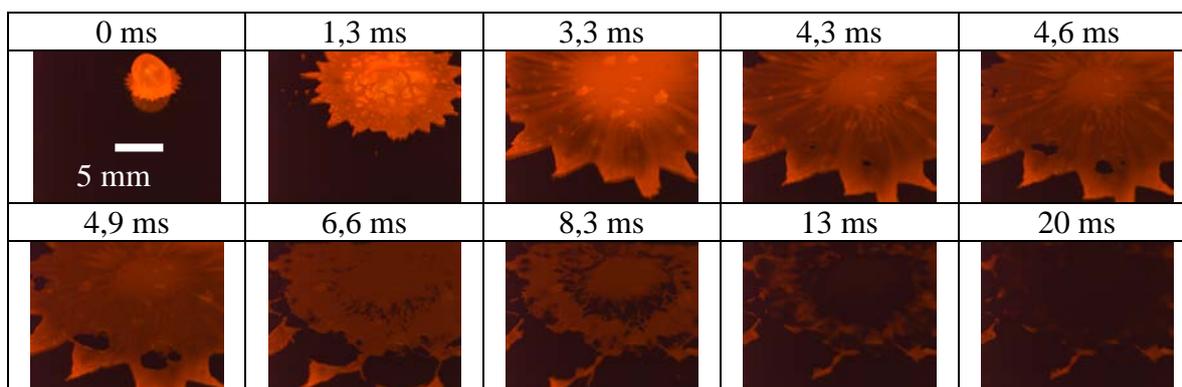


Figure III-55 : Visualisation de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'acier inoxydable à température ambiante

Le processus d'étalement est le suivant (Figure III-55):

- Lors de l'impact, en périphérie de la lamelle naissante, apparaît une forme finement dentelée (Figure III-56)

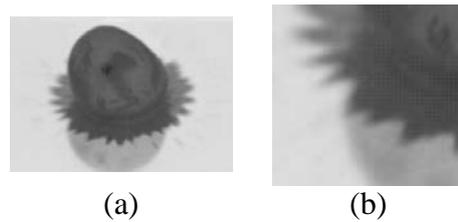


Figure III-56 : Vues agrandies de l'image de l'étalement au moment de l'impact

- Lors de l'étalement, cette forme finement dentelée est conservée et s'amplifie pour former des zones en triangles de plus en plus grandes.

- Au moment de l'étalement maximal ($t=3,3$ ms) des trous apparaissent dans le film au niveau de la base des triangles qui se séparent progressivement de la lamelle. Les triangles sont alors éjectés et seuls quelques résidus sont encore présents.

- A la fin de l'étalement, à $t=13$ ms, un anneau de matière en périphérie d'une zone centrale moins lumineuse est présent puis la lamelle se fige. Il n'y a ici ni rupture du film intérieur et ni la deuxième vague d'éjections.

b) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé à 300 °C / 10 min

Dans le cas d'un substrat chaud, la périphérie ne présente plus des formes triangulées mais des bâtonnets avec, à leurs extrémités, une boule de matière (voir Figure III-57).

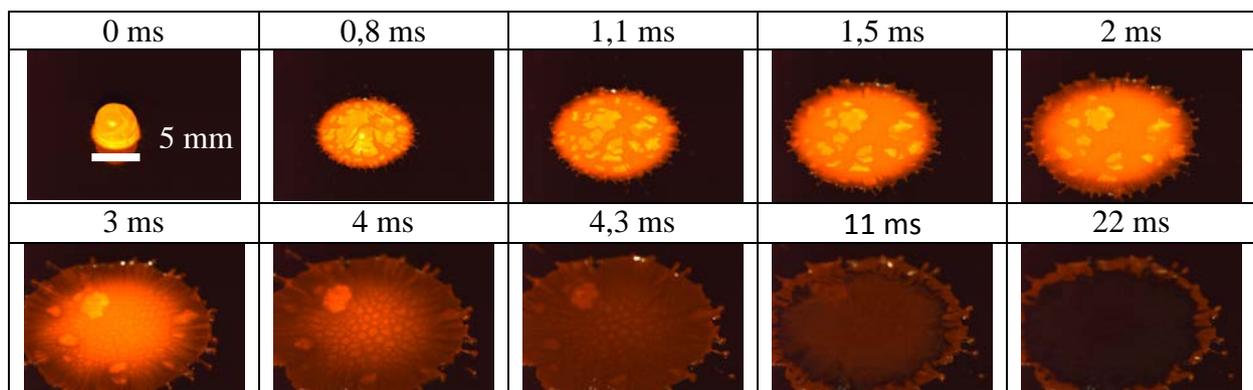


Figure III-57 : Visualisations de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé 300°C / 10 min

Le processus d'étalement est le suivant (Figure III-57):

- Lors de l'impact, la matière s'étale beaucoup moins que dans le cas d'un substrat chaud, et aucune forme particulière n'est présente en périphérie mais quelques éjections existent.

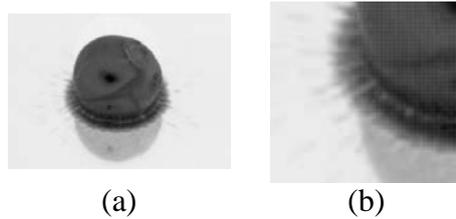


Figure III-58 : Vues agrandies de l'image de l'étalement au moment de l'impact

- Au cours de l'étalement, des bâtonnets apparaissent en périphérie (à $t = 0,8$ ms). Ces filaments de matière possèdent une vitesse supérieure à l'avancée du front de la lamelle, de ce fait, ils sont encore présents à la fin de l'étalement.

- Au maximum d'étalement, quelques bâtonnets se cassent et provoquent des éjections de matière. Curieusement, la majorité des filaments stoppe leur avancée en même temps que le front de la lamelle et ne produisent pas d'éjections. La solidification à l'interface semble se produire d'une façon homogène en tout point de la périphérie. Par contre, au sein de la lamelle, un écoulement de matière continu conduit à une accumulation de matière en périphérie.

- A la fin de l'étalement, l'anneau de matière en périphérie de la lamelle se refroidit plus lentement que le centre de la lamelle, mais sans réelle évolution (pas de recul de matière par exemple). Le centre de la lamelle est uniforme, alors que l'anneau de matière périphérique est désordonné.

c) Résumé

Dans le cas de l'impact d'une goutte de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, la particule s'étale de deux façons strictement différentes :

- Dans le cas d'un substrat froid, sous atmosphère d'air, la particule s'étale sur une surface importante (25 mm) et des triangles apparaissent à la périphérie de la lamelle. Ces triangles sont ensuite éjectés au moment de l'étalement maximal.

- Dans le cas d'un substrat chaud, sous atmosphère d'air, la lamelle s'étale moins (15 mm) et aucun triangle n'apparaît en périphérie. A la place, des filaments fins de matière sont présents et il existe un anneau de matière en périphérie qui se refroidit plus lentement, mais qui ne subit pas de phénomène de recul.

Quelle est l'origine de la forme triangulée présente en périphérie de la lamelle sur le substrat froid ?

Comme cette forme est rencontrée uniquement sur substrat froid, cela peut signifier qu'elle est liée au processus de désorption des adsorbats présents à la surface du substrat, et donc au mauvais contact entre la lamelle et le substrat.

III-3.2.2 Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous argon

Dans le paragraphe précédent, a été focalisé sur la description du processus d'étalement global. Or sur les images précédentes, il existe une coquille entourant la particule, et cette coquille se fragmente au moment de l'impact. Il s'agit donc, vraisemblablement, d'une partie solide. Cette partie solide résulte-t-elle d'un refroidissement de la particule au cours de sa chute ou d'un processus d'oxydation induisant l'apparition d'un oxyde à plus haut point de fusion ? Afin de pouvoir répondre à cette question, il est nécessaire d'étudier l'impact en atmosphère peu oxydante. Pour ce faire, le système est mis sous une légère surpression d'argon, et seul le cas du substrat d'alliage de titane est présenté.

a) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante, sous argon.

Dans le cas de l'impact sous argon, la coquille sur la goutte n'est plus présente, ce qui prouve que cette coquille résulte bien de l'oxydation de la particule lors de sa chute.

Le processus d'étalement est le suivant (cf. Figure III-59) :

- Lors de l'impact, la lamelle ne présente plus une forme dentelée mais une forme parfaitement circulaire avec quelques éjections.

- Au cours de l'étalement, la zone périphérique triangulaire (rencontrée sous une atmosphère d'air) est remplacée par un bourrelet de matière correspondant à l'avancée du front de matière sur le substrat.

- Au moment de l'étalement maximal, quelques éjections sont présentes en périphérie et le bourrelet stoppe son avancée. Puis, un léger recul de matière se produit au sein de la lamelle, provoquant une déchirure à l'interface zone annulaire / bourrelet (flèche à $t = 8,3$ ms).

- La lamelle poursuit son refroidissement, selon la même procédure que dans le cas sous air.

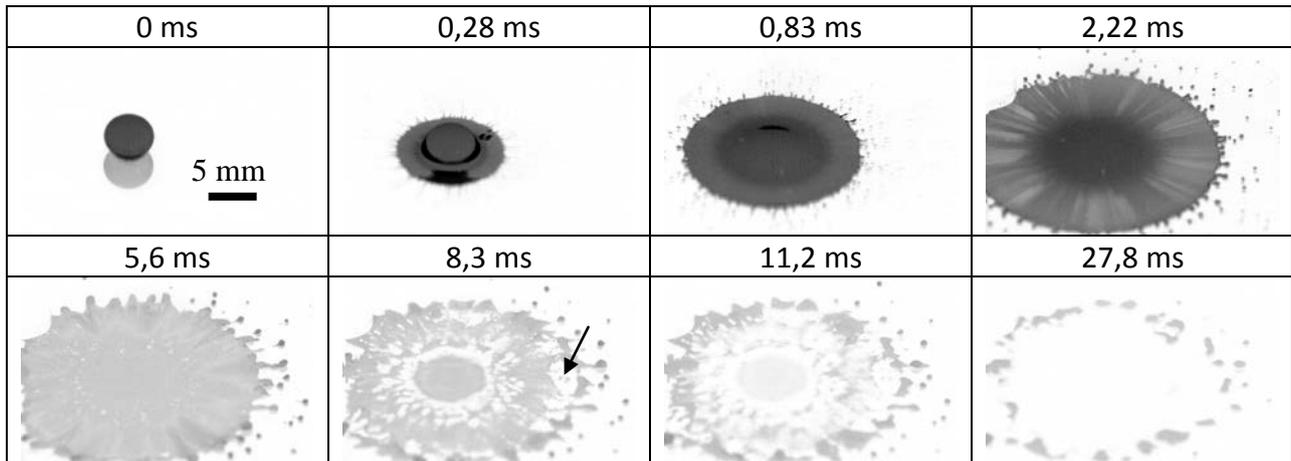


Figure III-59 : Visualisation de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane à température ambiante sous argon.

b) Impact d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé à 300°C / 10 min, sous argon.

Sous argon, et sur un substrat chaud, le bord de la lamelle est finement ondulé mais sans que cela soit très prononcé, car, au cours de l'étalement, ces ondulations ne s'éloignent pas du front d'avancée de la lamelle.

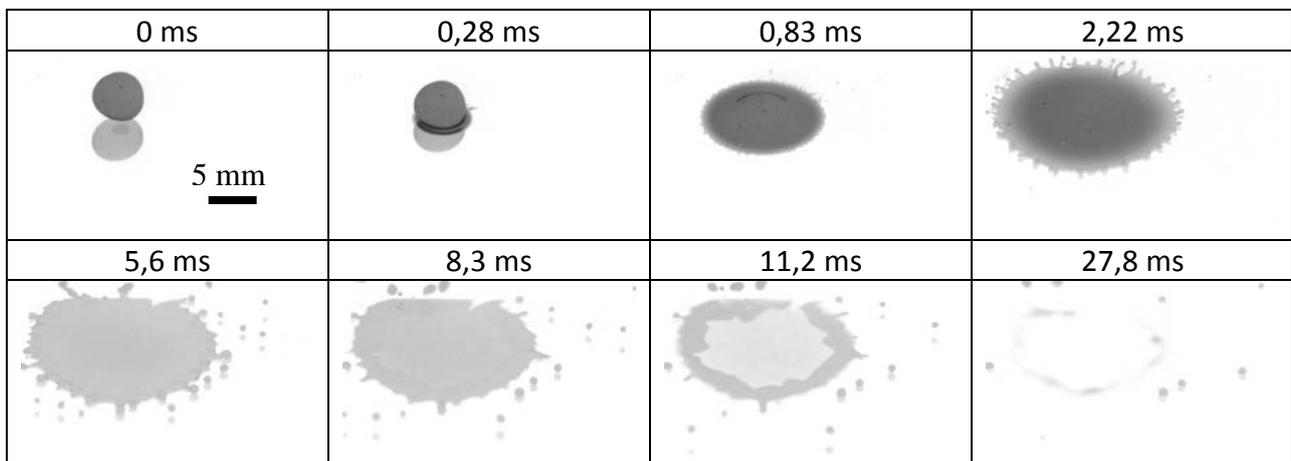


Figure III-60 : Visualisation de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane chauffé 300°C / 10 min, sous argon

Le processus d'étalement est le suivant (cf. Figure III-60) :

- Lors de l'impact, le bord de la lamelle est finement ondulé mais aucun phénomène d'éjection ne se produit.

- Au cours de l'étalement, ces ondulations se transforment en épais filaments de matière en périphérie de la lamelle.

- Au moment de l'étalement maximal, un recul général des bords de la lamelle s'amorce. Et, soit les filaments se détachent, soit ils sont entraînés avec le recul de la matière. Un anneau de matière beaucoup plus large que sous une atmosphère air est alors obtenu.

- La lamelle poursuit son refroidissement, et cet anneau continue ensuite à se fermer jusqu'à se figer complètement.

Par rapport au cas sous air, la grande différence est l'absence du phénomène d'éjection au moment de l'impact (voir à $t=0,83$ ms).

c) Résumé

Sous atmosphère d'argon, il n'existe pas la couche solide entourant la particule incidente. Ce qui confirme que cette couche solide résulte de l'oxydation de la goutte au cours de sa chute.

- Dans le cas d'un substrat froid, sous atmosphère d'argon, des éjections à l'impact apparaissent mais la périphérie de la lamelle ne présente pas de zone triangulée. Les bords de la lamelle présentent une accumulation de matière. Un faible phénomène de recul (au sein du film et non du bourrelet) induit une déchirure à l'interface bourrelet / film.

- Dans le cas d'un substrat chaud, sous atmosphère d'argon, les éjections à l'impact sont absentes. Les seules éjections sont produites lors de l'étalement maximal. La lamelle présente alors, à l'étalement maximal, d'épais filaments de matière qui sont, soit entraînés dans le recul de la matière, soit éjectés. De plus, il existe un anneau de matière épais qui subit un phénomène de recul en direction du centre de la lamelle.

Comment se fait-il que les triangles assimilés dans la partie précédente à la désorption des adsorbats-condensats ne soient plus présents ?

Les substrats utilisés ont tous été stockés dans les mêmes conditions avant le tir. Dans le cas du substrat à température ambiante, il est peu probable que l'atmosphère d'argon ait permis de nettoyer la surface de ses adsorbats. La présence des triangles ne peut donc pas être liée uniquement aux adsorbats-condensats, ils sont également liés à l'état d'oxydation de la goutte.

III-3.2.3 Conclusions sur l'effet de l'oxydation sur le processus d'étalement d'une goutte de NiAl impactant un substrat d'alliage de Titane.

Dans le cas de l'impact de la particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, l'étalement a été étudié sous différentes atmosphères. Cette modification de l'atmosphère a modifié l'étalement de la goutte (Figure III-61). Et différents points sont à étudier.

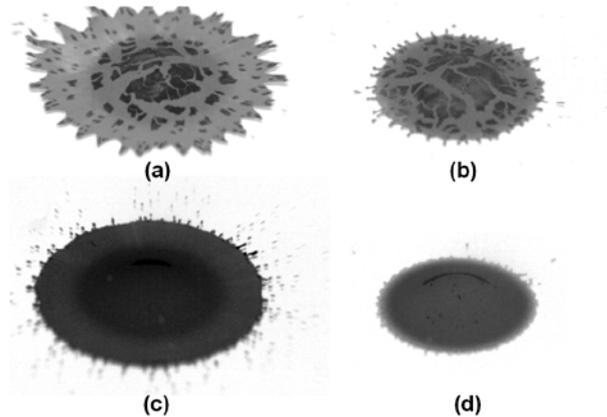


Figure III-61 : Visualisations pour un même temps des différents types d'étalement rencontrés suivant les conditions de tir, (a) substrat à 20°C, atmosphère d'air, (b) substrat à 300°C, atmosphère d'air, (c) substrat à 20°C, atmosphère d'argon, (d) substrat à 300°C, atmosphère d'argon

Quelle est l'influence de la couche d'oxyde de la particule sur l'étalement de la particule ?

Lorsque la particule impacte sous air, une coquille solide est présente en périphérie de la goutte. Cette couche solide correspond bien à un oxyde puisque qu'elle n'apparaît que sous atmosphère d'air. Lorsque la particule impacte, cette couche solide se casse et provoque des éjections de matière. En effet, sur une surface chauffée, les adsorbats-condensats ne sont plus présents. Sous une atmosphère d'air des éjections à l'impact sont encore présentes, alors que ce n'est pas le cas sous une atmosphère d'argon.

Par ailleurs, lors de la cassure de la couche d'oxyde, si l'écoulement de la matière possède suffisamment d'énergie pour vaincre la tension superficielle, et qu'un obstacle est présent la matière va devoir s'étaler de chaque côté pour pouvoir le contourner (comme c'était le cas pour l'alumine dans le paragraphe III-3.1.1b) p 147). Si une multitude d'obstacle ou de débris (par exemple des morceaux d'oxyde) sont présents, il est obtenu le cas présenté sur la

vue schématique représentant une lamelle au moment de l'impact Figure III-62 (vue de haut, partie supérieure non dessinée). Ces morceaux d'oxydes sont entraînés par l'écoulement et se retrouvent à l'intérieur des triangles. L'écoulement vient alors buter sur l'intérieur des triangles et participe à leur agrandissement.

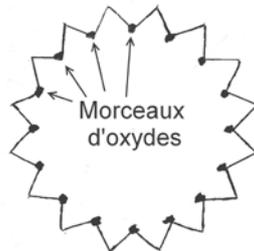


Figure III-62 : Vue schématique de la création des triangles de matière au moment de l'impact de la particule sur le substrat.

Ces triangles n'apparaissent pas sur un substrat chaud, sous atmosphère d'air, car la particule perd de l'énergie par frottement avec le substrat, du fait du bon contact. L'épaisseur de la matière en écoulement est plus épaisse. Le front de matière se propage au fur et à mesure de la cassure de la coquille d'oxyde. L'effet d'obstacle se fait alors moins ressentir, mais cela déstabilise quand même l'écoulement puisque quelques filaments apparaissent en périphérie de la lamelle naissante.

Quelle est l'influence de l'atmosphère sur l'étalement de la particule ?

Les modifications dans la forme de la lamelle lors du passage sous argon sont nombreuses. Les phénomènes observés : recul du bourrelet plus important, moins d'éjections, film de matière plus cohésif, peuvent être attribués à une force de tension superficielle plus importante.

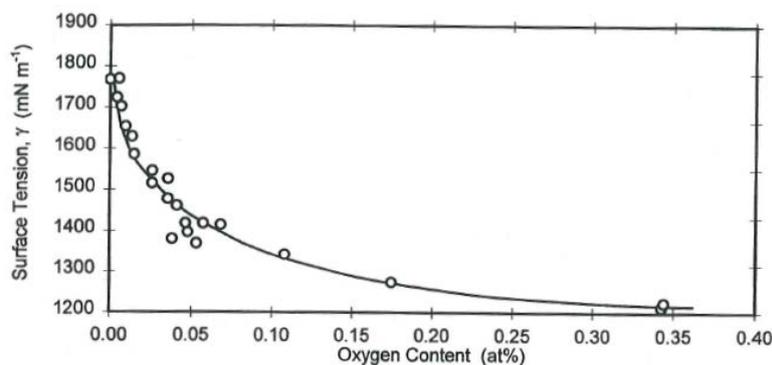


Figure III-63 : Evolution de la tension superficielle en fonction du pourcentage d'oxygène

En effet, la tension superficielle du nickel diminue lorsque la concentration en oxygène augmente (Figure III-63). La forme des lamelles est donc fortement liée aux phénomènes de tension superficielle.

III-3.3 Conclusions

Cette étude à l'échelle millimétrique a permis de visualiser avec précision le phénomène d'étalement, aussi bien pour des particules de céramiques (Al_2O_3) que pour des particules métalliques (NiAl).

III-3.3.1 Cas d' Al_2O_3

Dans le cas de particule d'alumine, la vitesse d'impact sur un substrat de type 304L a été explorée sur une plage de 4 à 10 m/s, ce qui a permis de mettre en évidence le rôle de la vitesse d'étalement de la particule, ainsi que la présence ou non d'un film.

Si le nombre de Weber est inférieur à 500, la matière accumulée en périphérie subit un phénomène de recul important en direction de la zone centrale.

En effet, à partir de 5 m/s ($We_0=500$), sur un substrat froid, commence à apparaître un film de matière entre le centre et la périphérie. Si la vitesse d'impact augmente, le diamètre du film augmente également. Ce film se fragmente sous la forme de morceaux solidifiés partant en tous sens après l'étalement maximal. En périphérie de la lamelle, un bourrelet est également présent, ce qui conduit à un phénomène d'éjections parallèles et angulaires. Les éjections angulaires proviennent de la propagation d'un filament de matière créée au moment de l'impact de la particule sur le substrat

Sur un substrat chaud, plus la vitesse d'impact augmente, plus le diamètre de la lamelle augmente, mais cette lamelle reste homogène à part une accumulation importante de matière en périphérie. Dans le cas d'une particule d'alumine à Weber élevé ($We_0=2500$), le centre de la lamelle se refroidit très vite et est suffisamment adhérent pour résister à la brutale décélération du piston. Ceci témoigne d'une forte amélioration du contact entre la lamelle et le substrat lorsque la température du substrat augmente. De plus, le phénomène d'éjection en périphérie de la lamelle est toujours présent malgré l'élévation de la température du substrat à 400°C. Les essais réalisés, avec la caméra tangentielle, ont permis de montrer la présence de doigts de matière se propageant à la surface du substrat, en conservant un lien avec ce substrat. Ces doigts se détachent au moment de l'étalement maximal. Ce phénomène peut être

comparé à celui rencontré sur une surface froide, mais, ici, les filaments sont beaucoup plus fins et très peu d'éjections sont générées au moment de sa création.

D'une façon générale, à l'échelle millimétrique, la particule sur un substrat froid s'étale plus et se refroidit plus vite que sur un substrat chaud, ce qui est différent du cas de l'échelle micrométrique. Le refroidissement plus rapide sur surface froide est provoqué par une importante perte de matière au cours de l'étalement comparativement au cas d'un substrat chaud.

III-3.3.2 Cas du NiAl

Dans le cas de l'impact de la particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, l'étalement a été étudié sous différentes atmosphères. Lorsque la particule impacte sous air, une coquille solide est présente en périphérie de la goutte. Cette couche solide correspond à un oxyde. Lorsque cette couche solide se casse, elle crée des éjections. Sur un substrat froid ces éjections prennent la forme de triangles du fait de la désorption des adsorbats et des morceaux d'oxydes faisant obstacle à l'écoulement.

Les modifications dans la forme de la lamelle lors du passage sous argon sont nombreuses. Les phénomènes observés : recul du bourrelet plus important, moins d'éjections, film de matière plus cohésif, sont dus à la modification de la tension superficielle lorsque que la particule s'oxyde.

III-4/ Comparaison entre les 2 échelles d'étalement

La comparaison des deux échelles est très instructive, en particulier pour connaître le paramètre prépondérant influençant l'étalement. En effet, l'étude de l'étalement, lors de la modification du diamètre de la goutte d'une taille micrométrique à une taille millimétrique, a montré des similitudes dans l'évolution de la matière sur le substrat, ainsi que dans les processus d'éjection.

Pour prédire l'évolution du diamètre maximal, la plupart des études antérieures se sont focalisées sur la résolution du bilan énergétique de l'impact, ou sur des séries d'expériences avec différents matériaux de propriétés physiques variables et en faisant varier les paramètres la vitesse et le diamètre des particules incidentes. Ces recherches ont permis d'en déduire des évolutions du diamètre d'étalement maximal en fonction des nombres adimensionnels (principalement Re_o , We_o). Ces équations, établies en faisant varier les caractéristiques de la

particule avant l'impact, ne prennent pas en compte les propriétés du substrat ni son état de surface [105]

Dans le cadre de l'étude, les paramètres de la particule incidente ont été maintenus constants autant que faire se peut. Seul l'état de surface est modifié. De ce fait, il n'est pas possible de se servir des relations présentées dans la bibliographie. Les seules expressions utilisables sont celles qui considèrent l'interaction avec le substrat, soit par l'intermédiaire du contact thermique et donc de la résistance thermique (relation de Dhiman [132]), soit par l'intermédiaire de la mouillabilité du liquide sur la surface et donc de l'angle de contact (relation de Pasandihed [67]), soit par le processus d'étalement sur la surface et donc de la vitesse d'étalement (relation de Fukumoto [100]). Cependant ici, il n'est pas possible de remonter facilement à la résistance thermique de contact, ou à l'angle de mouillage de la matière sur le substrat. Le seul paramètre mesurable est la vitesse d'étalement.

Dans une première partie, est présentée l'évolution de la vitesse d'étalement aux deux échelles d'étalement en fonction de l'étalement de la particule et de la température du substrat. Puis dans une deuxième partie, les nombres de Reynolds et de Weber correspondants à la propagation de la matière sur le substrat sont présentés en fonction de l'étalement de la particule.

III-4.1 Vitesse d'étalement

La mesure de la vitesse d'étalement de la matière, à la surface d'un substrat, est complexe. En effet, à l'échelle micrométrique, il n'est pas possible de suivre l'étalement de la particule au cours du temps. Il est donc nécessaire de poser des hypothèses pour pouvoir déterminer cette vitesse d'étalement.

Tout d'abord, est présenté la détermination de la vitesse d'étalement aux deux échelles. Puis, est étudiée l'influence de la température de surface sur la vitesse d'étalement.

III-4.1.1 Mesures

La mesure de la vitesse d'étalement à l'échelle micrométrique est difficile. La seule solution pour connaître le temps d'étalement est de mesurer le temps pour atteindre le maximum de l'étalement. Cela impose de faire l'hypothèse que le refroidissement est négligeable au cours de la phase de montée (correspondant au développement de la lamelle). Pour confirmer cette hypothèse, il faut remarquer sur les images présentées dans les

paragraphes précédents (cas de l'alumine p 107 et du NiAl p 128) que le maximum du signal pyrométrique est atteint au moment de l'étalement maximal. Immédiatement après, se produisent, les éjections et / ou la rupture du film. En mesurant le diamètre d'étalement maximal (D_{\max}), grâce à l'image de la caméra 1 et le temps correspondant au maximum du signal pyrométrique sur une longueur d'onde, il est possible de calculer une vitesse moyenne.

A l'échelle millimétrique, comme il a été montré précédemment, il existe deux vitesses d'étalement (une rapide au moment de l'impact, et une plus lente à la fin du processus d'étalement). Afin de simplifier les comparaisons, seule la vitesse moyenne d'étalement est considérée. En se servant des images de la caméra rapide, il est possible d'en déduire le moment de l'étalement maximal ainsi que le diamètre maximal, pour ensuite remonter à cette vitesse moyenne.

Pour pouvoir comparer les deux échelles, il est nécessaire d'avoir une approche permettant de s'affranchir de l'écart important de diamètre et de vitesse entre les deux échelles. Pour ce faire, les résultats sont normalisés en utilisant les facteurs « ξ_{\max} » et « a », définis par les expressions suivantes :

$$\text{Facteur d'étalement maximal : } \xi_{\max} = \frac{D_{\max}}{D_o}$$

D_{\max} : diamètre d'étalement maximal.

D_o : diamètre de la particule incidente.

$$\text{Vitesse d'étalement normalisée : } a = \frac{v_E}{v_o}$$

v_E : vitesse d'étalement moyenne

v_o : vitesse de la particule incidente

III-4.1.2 Evolution de la vitesse d'étalement en fonction de la température du substrat et du rapport d'étalement.

a) Cas de Al_2O_3 sur 304L

Sur la Figure III-64 sont présentés les résultats du calcul du facteur d'étalement ($\xi_{\max}=D_{\max}/D_o$) et de la vitesse normalisée ($a=v_E/v_o$) pour des substrats chauffés à différentes températures respectivement pour des particules d'alumine de taille micrométrique et de taille millimétrique impactant un substrat en acier inoxydable.

A l'échelle micrométrique, plus le facteur « a » est grand plus la lamelle s'étale, par contre, dans le cas de l'échelle millimétrique, les points expérimentaux sont plus dispersés Figure III-64 (a), dû en partie, à des vitesses d'impact très différentes (de 3 à 10 m/s). Le rapport est conservé mais lorsque l'énergie cinétique d'impact est plus grande, la particule s'étale plus. La vitesse normalisée semble dépendre de la température du substrat. Cela est confirmé sur la Figure III-64 (b) que ce soit pour l'échelle micrométrique ou pour l'échelle millimétrique. Cependant, autant pour une surface à température ambiante, les facteurs « a » sont proches, autant lorsque la surface du substrat est chauffée, le facteur « a » chute beaucoup plus rapidement à l'échelle micrométrique qu'à l'échelle millimétrique. Ceci signifie que sur une surface chaude, la matière s'écoulant à l'échelle micrométrique est plus ralentie que dans le cas d'une particule millimétrique.

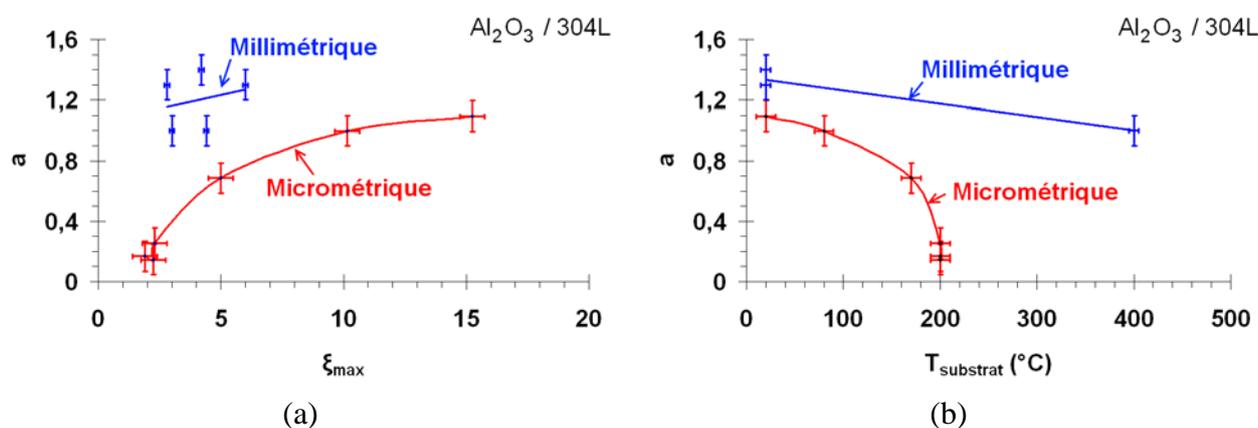


Figure III-64 : Evolutions de la vitesse d'étalement normalisée, notée « a », ($a=v_E/v_0$), pour une lamelle d'alumine sur un substrat en acier inoxydable, en fonction (a) du facteur d'étalement « ξ_{\max} » ($\xi_{\max}=D_{\max}/D_0$), (b) de la température du substrat « T_{substrat} »

De plus, les vitesses de refroidissement ne sont pas identiques entre les deux échelles. La variation de l'énergie cinétique d'une lamelle micrométrique est plus forte du fait de l'augmentation de la viscosité qui participe au ralentissement de l'écoulement. Cela est moins détectable à l'échelle millimétrique, où une plus grande quantité de matière est présente. Ainsi à l'échelle micrométrique, l'étalement est piloté par la couche limite entre la lamelle et le substrat, alors que cette couche limite est négligeable à l'échelle de lamelles millimétriques.

b) Cas de NiAl sur Ti-6242

Sur la Figure III-65, sont présentés les résultats du calcul du facteur d'étalement et de la vitesse normalisée pour des substrats chauffés à différentes températures respectivement

pour des particules de NiAl de tailles micrométrique et millimétrique impactant un substrat en alliage de titane.

Comme les vitesses d'impacts à l'échelle millimétrique sont identiques pour les points présentés, la vitesse d'étalement croît en fonction de l'augmentation du facteur d'étalement et décroît en fonction de l'augmentation de la température du substrat. Cependant, dans le cas de l'impact d'une particule de taille micrométrique sur un substrat d'alliage de titane, aucune réelle évolution dans la valeur du facteur « a » est détectée, aussi bien en fonction du facteur d'étalement, qu'en fonction de la température du substrat. Rappelons que le facteur d'étalement diminue lors de l'augmentation de la température du substrat. Cependant la variation de diamètre est faible, car, au mieux le diamètre d'étalement est divisé par deux lorsque le substrat est chauffé.

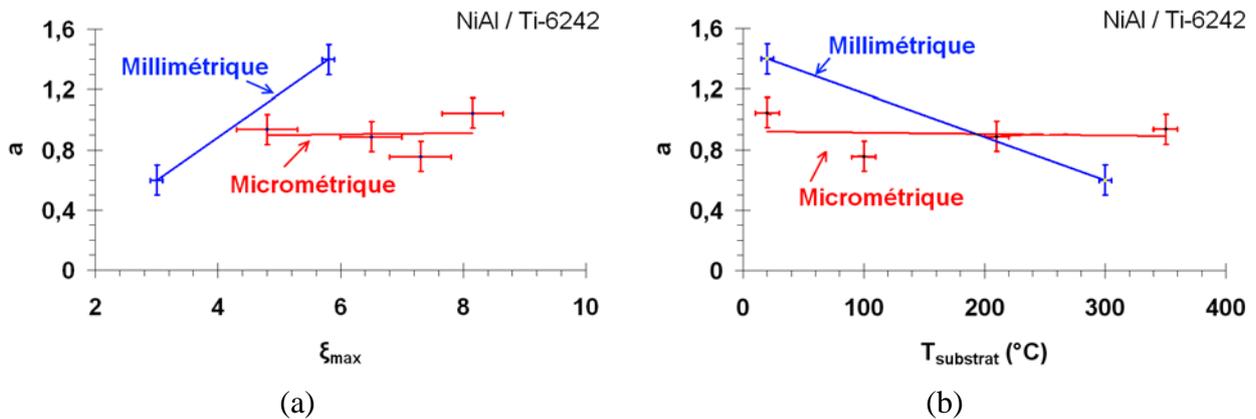


Figure III-65 : Evolutions de la vitesse d'étalement normalisée, notée « a », ($a=v_E/v_o$), pour une lamelle de NiAl sur un substrat en alliage de titane, en fonction (a) du facteur d'étalement « ξ_{max} » ($\xi_{max}=D_{max}/D_o$), (b) de la température du substrat « $T_{substrat}$ »

Un point important à souligner est que, dans le cas de l'impact d'une particule de NiAl sur un substrat en alliage de titane, il n'a pas été possible d'obtenir des lamelles parfaites. Toutes les lamelles présentaient, soit un film, soit un phénomène d'éjection périphérique, indiquant la présence d'un excès d'énergie cinétique, ce qui se traduit ici par une valeur du facteur « a » importante (aux environs de 0,8). Il est probable que s'il avait été possible de chauffer plus haut le substrat, le facteur « a » aurait diminué de façon plus importante.

c) Conclusions

La comparaison des vitesses d'étalement en fonction du diamètre maximum d'étalement et de la température du substrat met à nouveau en évidence, les différences, entre une particule métallique et une particule céramique.

Pour une particule céramique de taille micrométrique, la plage de variation de la vitesse d'étalement normalisée est importante (de 0,2 à 1,1). Alors que celle d'une lamelle de NiAl est faible (de 0,8 à 1,1). La plage de variation importante rencontrée dans le cas de l'alumine peut, là encore, être liée à l'évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de refroidissement. En effet, à l'échelle millimétrique, les cinétiques de refroidissement d'une lamelle d'alumine sur substrat froid et chaud sont globalement proches et la variation de la vitesse d'étalement normalisée « a » est faible (de 1 à 1,3), alors qu'à l'échelle micrométrique, les vitesses de trempe sont très différentes et la variation de « a » est importante (0,2 à 1,1). Donc plus le refroidissement est rapide, plus l'écoulement de la matière sur le substrat est ralenti.

A l'échelle millimétrique, sur un substrat froid, l'alumine et le NiAl possèdent la même vitesse d'étalement, mais ce n'est pas le cas sur un substrat chaud. Or, à l'échelle millimétrique, la lamelle de NiAl est adhérente sur le substrat, alors que ce n'est pas le cas d'une lamelle d'Al₂O₃ : la lamelle d'alumine ne possède pas un contact suffisant avec le substrat, ce qui ne favorise pas la décélération de la matière en écoulement, et ce, malgré la désorption des adsorbats et condensats. En effet, malgré la température de substrat au-delà de la température de transition et l'obtention d'une lamelle circulaire, des éjections sont toujours présentes en périphérie de la lamelle (voir Tableau III-13, Cas 4, p 143)

En conclusion, que ce soit à l'échelle millimétrique ou à l'échelle micrométrique, il semblerait que, pour éviter le phénomène d'éjection périphérique, il soit nécessaire d'obtenir une vitesse d'étalement normalisée inférieure à 0,8.

Dans ce paragraphe, l'évolution de la vitesse d'étalement a été étudiée en séparant les deux types de substrat. Il est maintenant nécessaire de réaliser une approche adimensionnelle de nos résultats.

III-4.2 Evolution de l'étalement en fonction de la tension superficielle, et de la viscosité de la goutte.

Dans cette partie, l'évolution du diamètre d'étalement en fonction des paramètres physiques de la goutte est présentée, afin de trouver un lien entre les échelles millimétrique et micrométrique. Pour ce faire, les nombres de Reynolds et de Weber sont calculés dans le cas de la formation de lamelle (aux deux échelles d'étalement) de NiAl et d'Al₂O₃ impactant des substrats en acier inoxydable et en alliage de titane. Pour ces nombres adimensionnels, il est nécessaire de connaître la dimension caractéristique de l'écoulement. Ici, il est considéré une vitesse moyenne d'écoulement, la dimension caractéristique est alors le diamètre d'étalement maximal divisé par deux. Les courbes présentées sur la Figure III-66 sont alors obtenues.

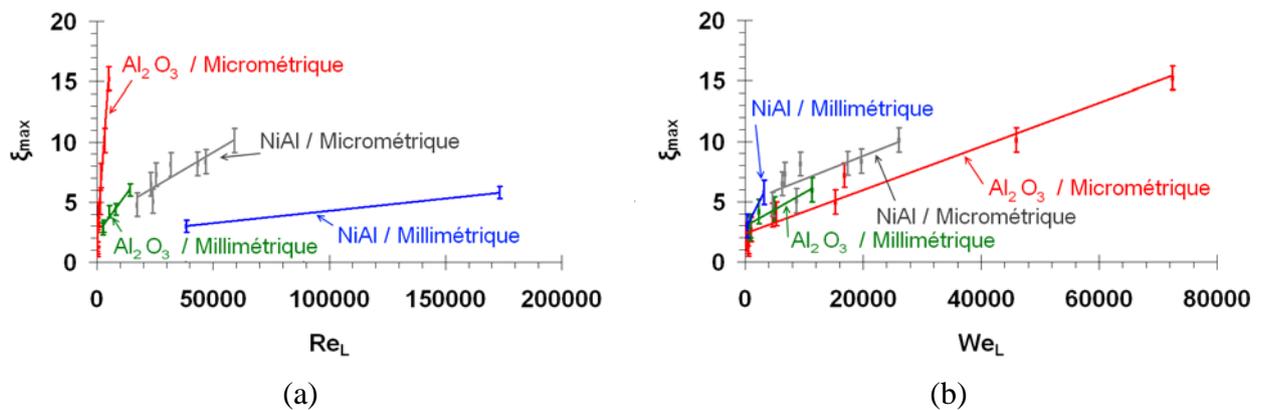


Figure III-66 : Evolutions de l'étalement de gouttes de natures différentes aux deux échelles d'étalement, en fonction (a) du Reynolds ($Re_{L; R_{\max}}$) (b) du Weber ($We_{L; R_{\max}}$), la vitesse prise en compte est celle de la matière sur le substrat et la dimension caractéristique est égale au rayon d'étalement maximal.

Il n'existe aucun lien entre le $Re_{L; R_{\max}}$ et l'étalement maximal lorsque la nature (métallique ou céramique) et la taille ($40 \mu\text{m} \Rightarrow 5 \text{mm}$) de la particule incidente sont modifiées. Par contre, l'évolution du diamètre de la lamelle semble être fortement liée à l'évolution du $We_{L; R_{\max}}$. En effet, les courbes d'étalement correspondant à différentes conditions du substrat (froid, chaud) et de particules (métallique, céramique) sont proches les unes des autres. Ceci signifie que l'étalement maximal est piloté par la compétition entre les forces d'inertie et de tensions superficielles. Cela signifie également que les effets de la tension superficielle sont conservés lors du changement d'échelle, du fait de la faible variation de la tension superficielle en fonction du refroidissement de la goutte. Ce n'est pas le cas des effets visqueux qui sont fortement liés au refroidissement de la goutte.

III-4.3 Comparaison avec la littérature.

Comme introduit précédemment, la seule relation permettant d'avoir un référentiel, par rapport aux résultats présentés par les autres auteurs, est le facteur de Fukumoto noté K_f [183]. Ce critère obéit à l'expression suivante : $K_f = 0,5a^{1,25}Re_o^{-0,3}K$, où K est le paramètre de Sommerfeld. Dans ce cas-là, les nombres adimensionnels sont calculés à partir des paramètres de la particule incidente. Fukumoto s'est servi de l'échelle millimétrique pour permettre de trouver la valeur critique du K_f . Cette valeur critique, notée K_f^c , est définie comme la valeur en dessous de laquelle seule des lamelles circulaires sont obtenues. Il a alors trouvé que $K_f^c = 7$, dans le cas de particules métalliques de taille millimétrique impactant divers matériaux. Cependant, il n'a pas pu confirmer cette valeur pour des particules de taille micrométrique, ne pouvant pas mesurer la vitesse d'étalement à cette échelle. Ici, il est possible de calculer le paramètre K_f aux deux échelles. Les courbes présentées sur la Figure III-67 sont alors obtenues.

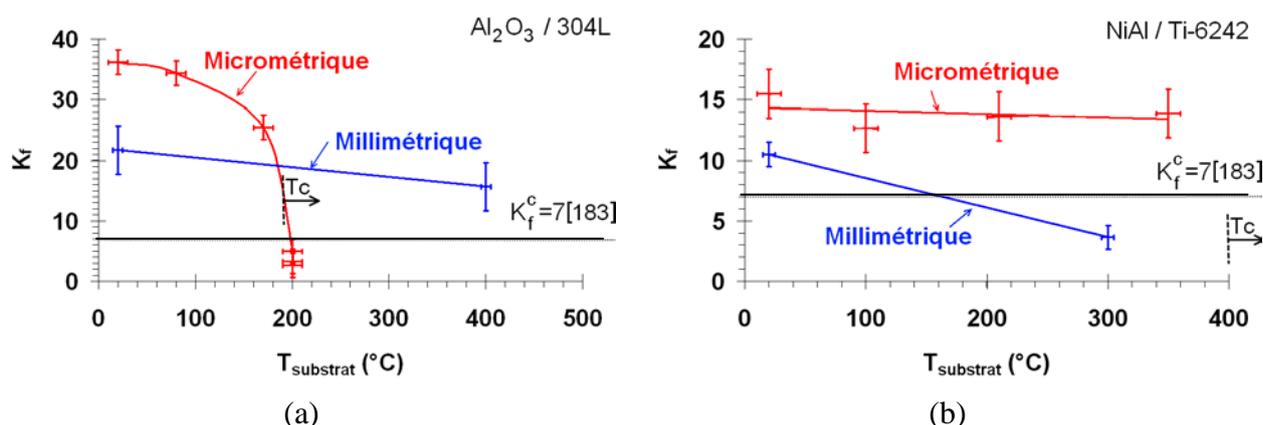


Figure III-67 : Evolutions du facteur K_f en fonction de la température du substrat pour deux types de particules (a) céramique (Al_2O_3) (b) métalliques (NiAl). D'après [183], en dessous de $K_f^c = 7$, seules des lamelles circulaires sont obtenues.

Les lamelles d'alumine de taille micrométrique et de forme circulaire avec pas ou peu d'éjection ($T_{\text{substrat}} = 200^{\circ}\text{C}$) obtenues sur un substrat en acier inoxydable possèdent une valeur de K_f inférieure à 7. A l'échelle millimétrique, pour des particules d'alumine, malgré l'élévation de la température du substrat au-delà de T_t , la valeur de K_f est supérieure à 7, et des lamelles certes circulaires mais avec de nombreuses éjections sont présentes.

Dans le cas d'une particule de NiAl de taille micrométrique impactant un substrat en alliage de titane, la température de transition n'a pas pu être atteinte et la valeur du K_f est supérieure à 7. Cependant, la forme de la lamelle est proche d'une lamelle parfaite (voir

Figure III-38, cas à 350°C, p 125). A l'échelle millimétrique, dans les cas où il fut possible d'obtenir des lamelles avec très peu d'éjections ($T_{\text{substrat}}=300^{\circ}\text{C}$), le paramètre K_f est inférieur à 7.

En conclusion, il semblerait que, lorsque le K_f est inférieur à 7, des lamelles circulaires sont obtenues. Par contre, au-dessus de 7, les lamelles présentent une forme déchiquetée ou des éjections. Ceci conforte donc les résultats trouvés par Fukumoto.

III-5/ Conclusions : *Contribution à la modélisation de l'étalement*

La comparaison des deux échelles d'étalement pour comprendre les phénomènes à l'impact montre de nombreuses similitudes (dans le processus d'étalement et les phénomènes d'éjections), mais également des différences importantes. En effet, l'épaisseur de la couche limite thermique de la lamelle à l'échelle de la particule micrométrique joue un rôle plus important qu'à l'échelle de la particule millimétrique. Cela entraîne naturellement des modifications dans le processus d'étalement qui peuvent être classés suivant la température du substrat :

- pour un substrat froid, la désorption des adsorbats-condensats génère un nuage de gaz à l'interface. Ce nuage de gaz n'est pas perçu de la même façon aux deux échelles. Pour des lamelles micrométriques, le film ne peut se solidifier car il se trouve en sustentation par rapport au substrat. Du fait de la faible épaisseur du film, les gaz générés à l'interface peuvent le traverser, le déstabiliser et provoquer son démouillage. Ce n'est pas le cas à l'échelle millimétrique où l'effet du nuage de gaz se fait moins ressentir du fait de l'épaisseur plus importante de matière, qui se solidifie sans démouillage. Cette différence est présente pour les deux types de matériaux. L'absence de deuxième vague d'éjection, à l'échelle de particule millimétrique, confirme que ces éjections sont provoquées par la rupture du film et le phénomène de démouillage en direction des parties déjà solidifiées.

- pour un substrat chaud, le phénomène de solidification à l'interface permet de dissiper l'énergie d'étalement et d'éviter les éjections. A l'échelle de particules millimétrique, du fait de l'épaisseur importante de la lamelle, la partie supérieure peut être toujours liquide alors que la partie en contact avec le substrat est solide, ce qui induit la présence d'éjection au moment de l'étalement maximal et d'un important phénomène de recul de la matière en

direction du centre. Alors qu'à l'échelle micrométrique, du fait de l'épaisseur de la lamelle et de la vitesse de trempe, une grande partie de la lamelle est probablement solidifiée au moment de l'étalement maximal.

Cependant, cette comparaison des deux échelles a mis en évidence une dépendance entre le processus d'étalement et les conditions de surface, quel que soit l'échelle d'étalement considérée. La vitesse d'étalement normalisée par rapport à la vitesse d'impact semble être fortement liée aux conditions de surface du substrat (présence d'adsorbats-condensats, température, oxydation...). Par ailleurs, il apparaît que le diamètre d'étalement maximal de la particule est plus dépendant du phénomène de tension superficielle que des forces de viscosité. Il semble ainsi que le facteur d'étalement maximal soit fonction du nombre de Weber lié à l'étalement ($We_{L;R_{max}}$).

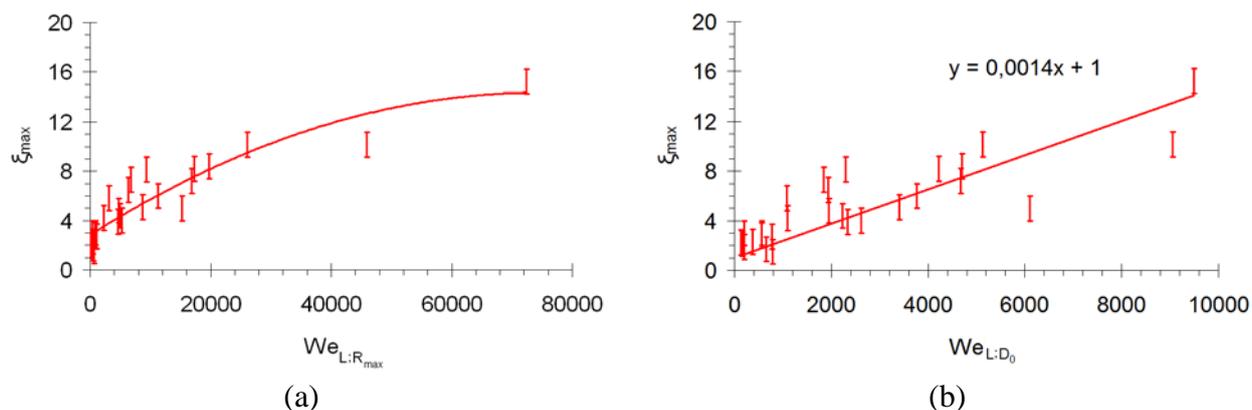


Figure III-68 : Evolution de l'étalement de gouttes en fonction du Weber d'étalement calculé pour différentes dimensions caractéristiques (a) Rayon d'étalement maximal (R_{max}) (b) Diamètre de la particule incidente (D_0)

Or le facteur d'étalement peut être un moyen simple pour confirmer les résultats trouvés par modélisation. Mais pour connaître $We_{L; R_{max}}$ ($We_{L;R_{max}} = (\rho v_E^2 R_{max} / \sigma)$), il est nécessaire d'avoir la vitesse d'étalement (v_E). Cette dernière est obtenue, en prenant en compte la valeur du facteur « a » qui est une constante pour un état de surface donné (Lamelles déchiquetées : $a > 1,2$; Lamelles circulaires : $a < 0,8$) et utilisant la relation suivante : $v_E = v_0 \cdot a$. Cependant, il n'est pas possible de prédire le rayon d'étalement (R_{max}). Pour simplifier, il est donc nécessaire de recalculer le nombre de Weber de l'étalement en considérant le diamètre de la particule incidente comme dimension caractéristique ($We_{L;D_0} = (\rho v_E^2 D_0 / \sigma)$). La Figure III-68 (b) est alors obtenue.

Considérer le diamètre de la particule incidente comme dimension caractéristique, introduit une dispersion des valeurs pour des $We_{L;D_0}$ supérieurs à 5000 (Voir Figure III-68 (b)). Il peut donc être possible d'avoir une idée du degré d'étalement d'une particule en fonction de l'état de surface du substrat grâce à la relation ci-après et donc de pouvoir confirmer les résultats donnés par la modélisation.

$\xi_{\max} = 0,0014 * We_{L;D_0} + 1$	v_0 : vitesse d'impact de la particule a : vitesse d'étalement normalisée par rapport à la vitesse d'impact D_0 : diamètre de la particule incidente
$We_{L;D_0} = \frac{\rho(v_0 * a)^2 D_0}{\sigma} < 5000$	

Pour conclure, dans ce chapitre, il a été analysé finement l'étalement et le refroidissement de gouttes chaudes pour mieux comprendre les phénomènes intervenant aux deux échelles d'étalement. Cela a permis de mettre en évidence des différences entre les deux échelles d'étalements (principalement sur la rupture du film et le refroidissement de la lamelle). Pour approfondir le rôle des gaz générés à l'interface et les effets des gradients thermiques au cours de l'impact et de l'étalement, il est nécessaire d'aborder les processus chimiques se déroulant à l'interface des lamelles. C'est le thème du chapitre suivant, mais du fait des difficultés dans l'observation de l'interface de particules micrométriques, seul le cas des particules millimétriques est développé.

Chapitre IV : Examen physico-chimique de l'interface lamelle / substrat

IV-1/ Introduction

L'étude des phénomènes se produisant à l'interface entre le substrat et la lamelle, à l'échelle micrométrique, impose d'utiliser des moyens de caractérisation chimique et microscopique, avec une résolution de l'ordre du micron, moyens actuellement peu répandus et nécessitant des installations « lourdes ». C'est le cas du FIB (Focused Ion Beam), qui permet d'observer l'interface entre la lamelle et le substrat, mais qui peut induire une fusion locale de la lamelle, en entraînant des modifications de sa structure. Cependant, les études antérieures ont montré qu'il était possible d'observer la section d'une lamelle micrométrique. Ici, les essais de découpe de lamelle micrométrique suivis d'un polissage n'ont pas été couronnés de succès du fait de la fragilité de la céramique. L'étude des phénomènes physico-chimiques aux interfaces substrat / lamelle n'est donc développée qu'à l'échelle millimétrique pour l'alumine et le NiAl.

Dans un premier temps, est donc étudié le cas de l'impact d'une goutte d'alumine de 5 mm de diamètre sur un substrat de 304L du point de vue topographique et chimique, et, dans un second temps, l'interface entre une lamelle résultant de l'impact d'une goutte de NiAl de 5 mm de diamètre sur un substrat d'alliage de titane est présentée.

IV-2/ Cas de l'alumine sur un substrat d'acier inoxydable

Dans le cas de l'impact d'une goutte d'alumine micrométrique sur un substrat de type 304L, les études du chapitre précédent ont montré que des gouttes d' Al_2O_3 sur substrat froid après 10 min, à une température supérieure à la température de transition, conservaient une forme circulaire. Ce substrat est recouvert d'une mince couche d'oxyde, il est donc nécessaire de préciser l'influence de la présence d'une couche d'oxyde sur l'étalement d'une particule d'alumine.

Pour ce faire, la première partie concerne l'étude de l'influence de la topographie de surface sur l'étalement de la particule. La deuxième partie est centrée sur l'étude de la modification de la chimie de surface du substrat due à l'étalement de la particule sur le substrat.

IV-2.1 Examens topographiques

Le but de cette partie est de déterminer la topographie de surface du substrat avant et après l'impact d'une particule d' Al_2O_3 sur des substrats à températures différentes (ambiante et 400°C). Du fait de la valeur de la vitesse d'impact (5 m/s), dans les deux cas, la lamelle n'est pas adhérente et se décolle après refroidissement, bien que sur un substrat chaud le centre soit plus adhérent que sur un substrat froid. Ceci est probablement dû à un manque de liaison chimique avec le substrat, le contact étant seulement mécanique, les contraintes thermiques conduisent au décollement. L'examen porte donc sur la partie en contact avec le substrat, appelée dessous de la lamelle. Puis les topographies de la surface avant l'impact et après l'impact sont présentées pour un substrat à une température à 20°C et un substrat à 400°C .

IV-2.1.1 Examen du dessous de la lamelle d'alumine après décollement

Sur la Figure IV-1 (a), est présentée l'analyse macroscopique du dessous de la lamelle non loin de la zone d'impact pour un substrat froid (20°C). Sur la Figure IV-1 (b), est présenté le cas d'un substrat chaud (400°C).

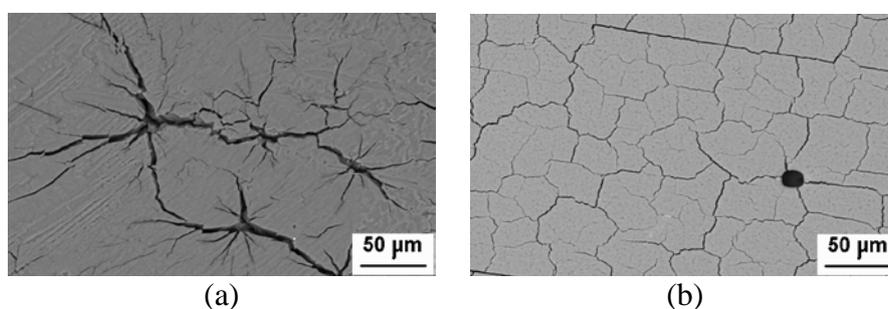


Figure IV-1 : Vues microscopiques du dessous de la lamelle (a) pour un impact sur un substrat froid et (b) pour un impact sur un substrat chaud (400°C)

Sur un substrat froid, un réseau de fractures en forme d'étoiles est observé, alors que sur un substrat chaud, un réseau de fractures interconnectées est présent. Ceci est dû au fait que, sur un substrat froid, seuls quelques points de contact privilégiés existent, induisant des contraintes ponctuelles qui génèrent les fractures en étoiles. La distance moyenne entre chaque point de contact est d'environ $100\ \mu\text{m}$.

Sur un substrat chaud, le contact est meilleur, les contraintes thermiques sont alors bien mieux réparties, ce qui induit la création de fissures interconnectées, dues aux différences

entre les dilations thermiques substrat / lamelles. Le réseau de fissures a une maille d'environ $50 \mu\text{m}$.

Les contraintes thermiques et le réseau de fissuration sont donc très différents à l'interface d'une lamelle d' Al_2O_3 sur substrat froid et sur substrat chaud, du fait de la présence ou non de gaz à l'interface.

IV-2.1.2 Surface du substrat avant et après impact

a) Topographie d'un substrat froid, avant et après l'impact d'une particule d'alumine

Sur la Figure IV-2, est présentée l'allure de la surface avant et après l'impact de la particule. Sur une surface froide et avant impact, la surface du substrat présente un Ra de l'ordre de 8 nm, due au polissage. Le polissage est donc de type poli miroir ($\text{Ra} < 0,05 \mu\text{m}$). La surface du substrat présente, après impact, des pics de l'ordre de 260 nm de haut répartis aléatoirement sur la surface (Figure IV-2, b) et des pics de hauteur plus faible (de l'ordre de 150 nm) répartis de façon uniforme sur toute la surface (Figure IV-2, d). Ces pics n'étaient pas présents avant l'impact (Figure IV-2, c). L'impact a donc modifié la topographie de surface. Cela peut résulter des gaz chauds à l'interface goutte / substrat. En effet, malgré le faible contact thermique de la lamelle d'alumine sur un substrat froid, la température de la goutte est suffisante pour vaporiser les espèces chimisorbées à la surface. Le nuage de vapeur obtenu peut alors oxyder la surface entraînant la croissance des pics d'oxydes observés.

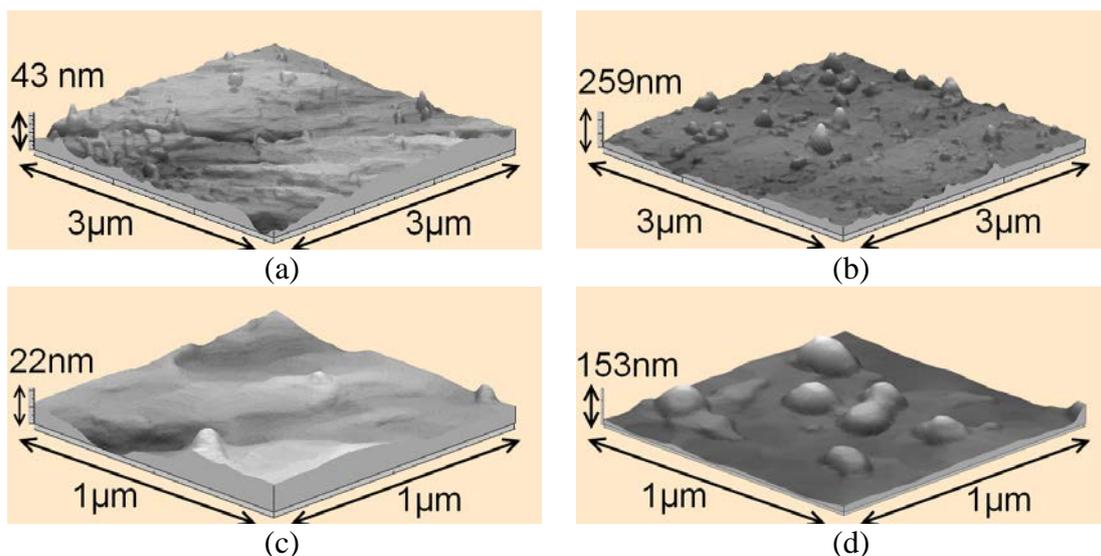


Figure IV-2 : Topographies de surface des substrats à des échelles de rugosité différentes, avant (a, c) et après impact (b, d), substrat froid (20°C)

b) Topographie d'un substrat chaud, avant et après l'impact d'une particule d'alumine

Sur un substrat chaud, avant impact, la surface présente un Ra de 20 nm. Le chauffage du substrat a donc modifié la topographie de surface en induisant la croissance d'une couche d'oxyde à l'échelle nanométrique. Ce phénomène est, d'après de nombreux auteurs favorable à une augmentation de la mouillabilité de la particule sur le substrat [37][170]. Deux échelles de rugosité sont présentes. La première est due à la présence des pics de 100 nm de hauteur qui sont répartis de manière aléatoire sur la surface. Et la deuxième est due à des pics avec une hauteur de l'ordre de 60 nm. Ces derniers sont, par contre, répartis sur toute la surface.

Après impact, la surface présente un Ra plus important, dû à l'apparition de zones de pics de hauteur moyenne de 170 nm, alors que l'échelle de rugosité plus faible ne paraît pas être modifiée, même si elle paraît légèrement moins anguleuse.

L'impact sur un substrat chaud a donc modifié la topographie de surface du substrat, en induisant la croissance de zone de pics de l'ordre de $1,5 \mu\text{m}^2$ (zone cerclée de rouge sur l'image de la Figure IV-3, b).

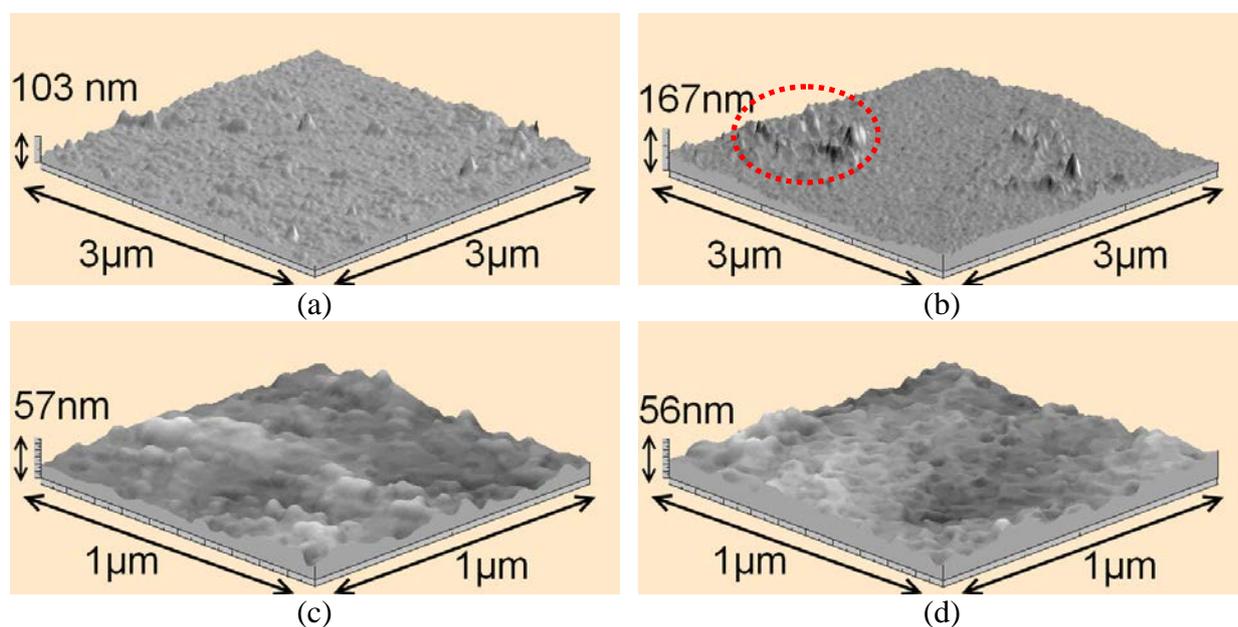


Figure IV-3 : Topographies de surface des substrats à des échelles de rugosité différentes, avant (a, c) et après impact (b, d), substrat chaud (400°C)

IV-2.1.3 Conclusions

Cette partie met donc en évidence le fait que l'impact, suivi de l'étalement de la goutte, modifie la topographie de surface aussi bien sur substrat froid que sur substrat chaud. Afin de connaître précisément les oxydes en présence à la surface du substrat et leur rôle sur l'étalement de la particule, il est nécessaire de caractériser la chimie de surface avant et après impact sur le substrat. Cependant, sur un substrat froid, cette couche d'oxyde n'est pas uniforme sur toute la surface et reste donc difficile à caractériser précisément. Seul le cas d'un substrat chaud est alors présenté.

IV-2.2 Etudes chimiques

Plusieurs types d'analyse peuvent être menés sur la lamelle ou la surface du substrat. Dans cette partie, seules les analyses par EDS et par XPS sont présentées. L'analyse par EDS ne permet pas de déterminer l'état d'oxydation des éléments. Seul le pourcentage massique et atomique des éléments est accessible. Avec l'XPS, l'analyse effectuée ne concerne que les toutes premières couches atomiques du substrat (12 nm) et la taille de la sonde est de $300 \times 700 \mu\text{m}^2$. Il n'est donc pas possible de différencier les compositions pour les deux échelles de rugosité.

IV-2.2.1 Surface du substrat d'acier inoxydable

Le substrat d'acier inoxydable de type 304 L est composé des éléments résumés dans le Tableau IV-1. Les composés majoritaires sont le fer, le chrome, le nickel et le manganèse. Les autres éléments sont considérés comme étant des impuretés et ne sont donc pas pris en compte dans cette étude.

Tableau IV-1 : Composition chimique du substrat d'acier inoxydable de type 304L

éléments	Cr	Ni	C	Si	Cu	P	S	Mo	Al	V	Ti	Mn	Fe
% massique	18,9	9,41	0,04	0,38	0,68	0,03	0,02	0,36	0,02	0,11	0,02	1,43	Bal.

a) Analyse par EDS

Dans le Tableau IV-2 est résumée la proportion des différents éléments présents sur un substrat chaud, avant et après impact.

Tableau IV-2 : Composition chimique du substrat d'acier inoxydable analysée par EDS, avant et après l'impact d'une particule d'alumine.

Eléments	O	Cr	Mn	Fe	Ni
Avant impact	1	16	2	64	8
Après impact	5	17	2	63	7

La seule différence importante provient de la proportion en oxygène de la surface du substrat, qui témoigne d'une modification de l'état d'oxydation de la surface après impact. Les proportions des autres éléments ne varient guère, compte tenu de la précision des mesures et de l'hétérogénéité de la surface. Mais comme souligné précédemment l'EDS, ne permet pas d'en déduire l'état d'oxydation des différents éléments. Seule l'analyse par XPS va permettre de déduire la nature des oxydes présents en surface.

b) Analyse par XPS

L'analyse par XPS ne concerne qu'une zone de $300 \times 700 \mu\text{m}^2$ et d'une profondeur de 3 nm. Les résultats trouvés ne concernent donc que les premières couches du substrat. Sur la Figure IV-4, est résumée la position des différentes zones analysées. Trois zones sont considérées :

- La zone « hors impact » de la particule, zone n'ayant pas subi d'étalement de matière et dite de type : « avant impact », Zone 1
- La zone recouverte par les bords de la lamelle, appelée « zone périphérique », Zone 2
- La zone ayant subi l'impact et l'étalement de matière, nommée « zone d'étalement », Zone 3

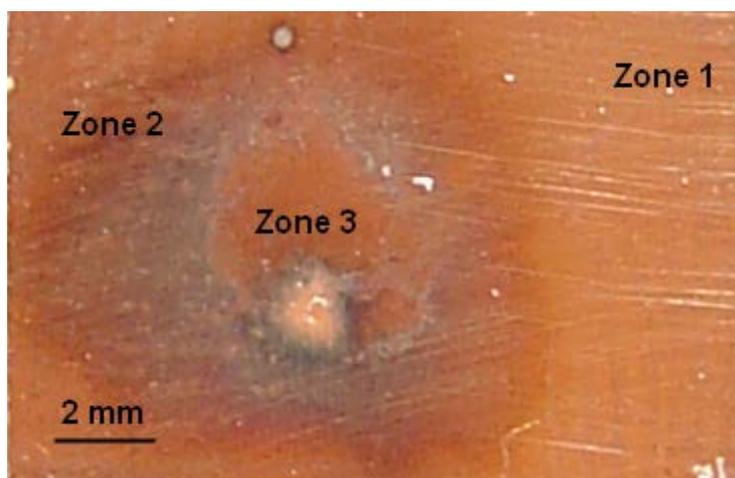


Figure IV-4 : Image du substrat après impact et position des différentes zones analysées.

* Spectre global

Afin de pouvoir observer l'évolution de la chimie de surface en fonction des différentes zones, sur la Figure IV-5 sont superposés les spectres XPS de 0 à 1100 eV pour les trois zones. Il peut alors être observé une évolution de la concentration des différents éléments suivant la zone considérée.

Concernant le pic du fer 2p, une nette augmentation de l'intensité peut être notée. Or l'intensité des raies des spectres XPS est directement liée à la proportion des éléments en surface il y a donc beaucoup plus d'atomes de fer en périphérie de la lamelle que dans la zone d'impact. Lorsque la zone d'impact et la zone d'avant impact sont comparées, la zone d'impact présente une légère augmentation de la concentration en fer.

Les autres éléments détectés en surface sont le manganèse et le chrome mais seulement dans les zones ayant subies l'impact ou l'étalement de la particule. Il est à noter que le nickel n'apparaît pas, du fait de sa diffusion plus lente à travers la couche d'oxyde.

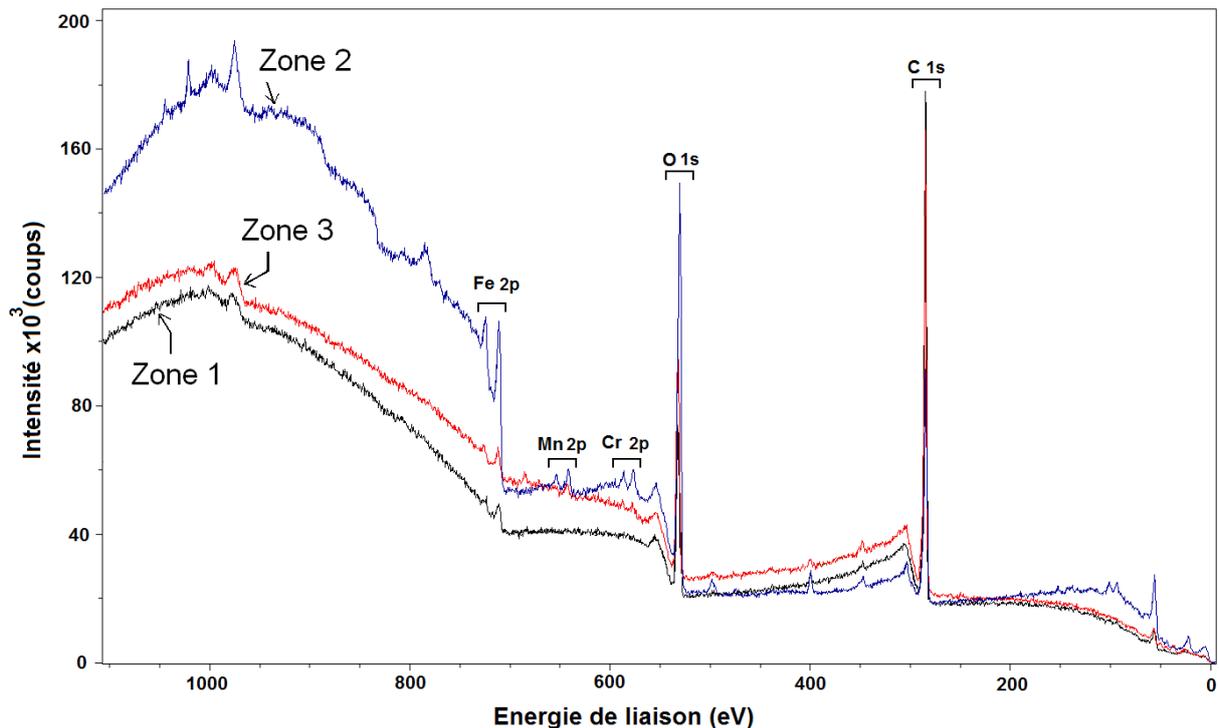


Figure IV-5 : Spectres XPS globaux des différentes zones d'analyses

L'impact de la particule a donc bien un effet sur la chimie de surface. Pour connaître, les oxydes en présence, l'interprétation des spectres haute résolution est nécessaire.

* Energie de liaison du Fe 2p

Comme signalé dans la partie II-5.2 p 76, chaque profil est le résultat de la superposition de plusieurs contributions énergétiques. Cela est particulièrement le cas pour les composés à base de fer pour lesquels différents états d'oxydations peuvent coexister.

En effet, sur la Figure IV-6 est présentée la déconvolution du profil du composé Fe_3O_4 . La contribution des fers trivalents (Fe^{3+}) induit la présence d'un multiplet composé de 4 pics aux alentours de 712 eV (pics colorés). Alors que les ions fer bivalents (Fe^{2+}) induisent seulement la présence de trois pics à une énergie de liaison d'environ 709 eV. Le nombre de pics ainsi que leurs positions peuvent donc permettre de déduire l'état d'oxydation du fer.

La déconvolution de chacun des profils obtenus, donne dans les trois différentes zones, uniquement 4 pics centrés aux alentours de 712 eV (Figure IV-7, pics colorés). Ce qui permet d'en déduire de façon certaine (dans la limite de détection de l'appareil et sur l'épaisseur considérée) que seul l'état d'oxydation Fe^{3+} existe en surface du substrat.

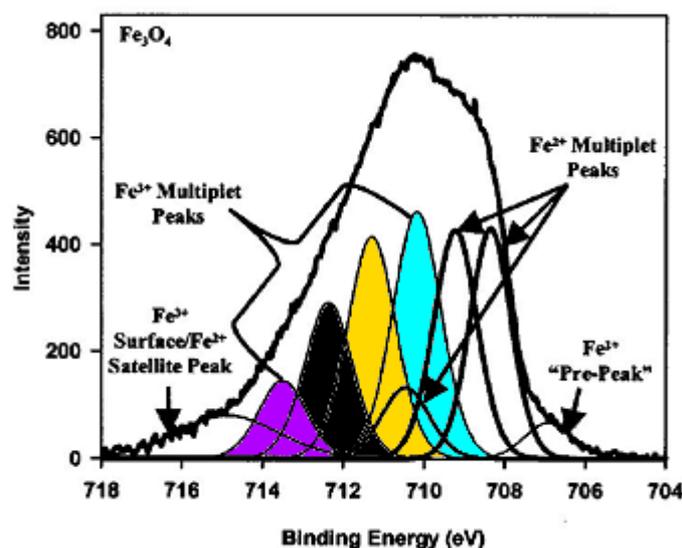


Figure IV-6 : Déconvolution du spectre haute résolution du composé Fe_3O_4 [185]

Il est maintenant nécessaire de connaître les liaisons présentes entre le fer et les autres éléments. En effet, il peut être observé (Figure IV-7) que, suivant la zone considérée du substrat, les pics n'émergent pas forcément aux mêmes énergies, ce qui témoigne d'une modification de l'environnement du fer. L'étude des liaisons entre l'oxygène et les autres éléments est donc nécessaire.

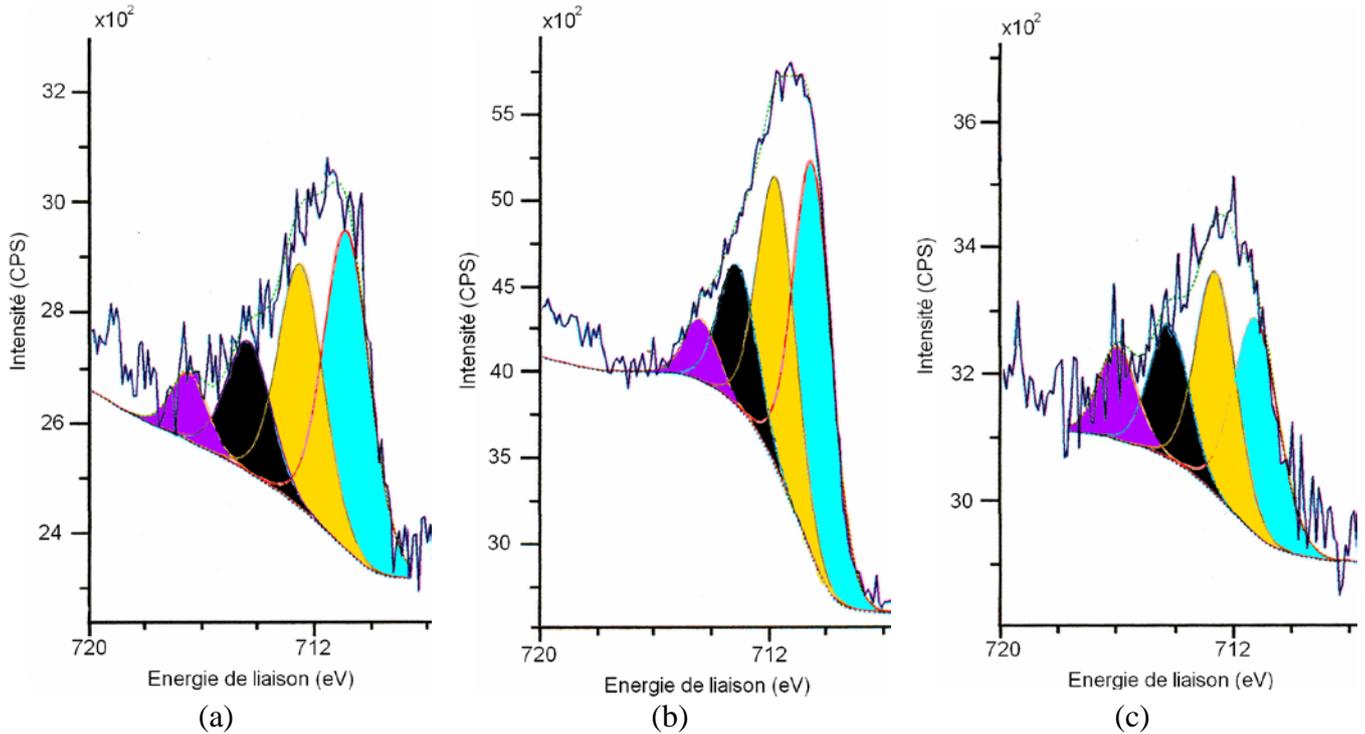


Figure IV-7 : Spectres haute résolution de la liaison Fe2p, (a) zone 1 (hors impact) (b) zone 2 (bords de la lamelle), (c) zone 3 (zone centrale)

* Energie de liaison de O 1s

Sur la Figure IV-8, sont présentés les profils déconvolués pour les trois différentes zones de mesure.

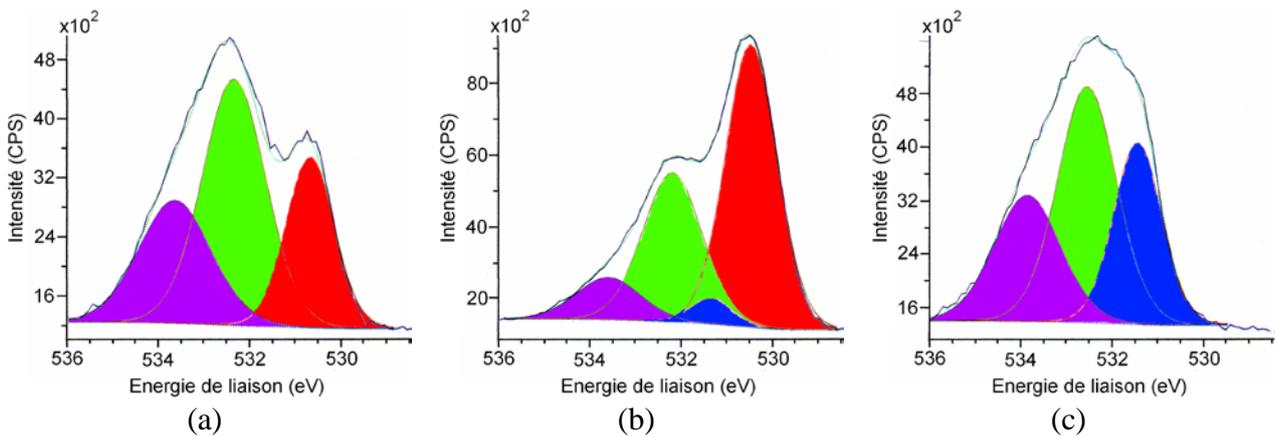


Figure IV-8 : Spectres haute résolution de la liaison O1s, (a) zone 1 (hors impact) (b) zone 2 (bords de la lamelle), (c) zone 3 (zone centrale), les échelles en ordonnées ne sont pas identiques.

Les profils évoluent en fonction des intensités des divers pics. Dans le Tableau IV-3, la position et l'intensité des différents pics sont résumés.

Seuls les deux pics de plus hautes énergies sont présents, avec une intensité proche suivant les zones considérées. Cela indique la présence d'un élément externe au dispositif. Cette « pollution » s'est déposée entre la réalisation de la lamelle et la caractérisation. Le pic de « pollution principal » correspond aux liaisons oxygènes / hydrogènes du composé H₂O. Des molécules d'eau ont donc été adsorbées en surface.

Tableau IV-3 : Positions et intensités des différents pics détectés dans les différentes zones, zone 1 (hors impact), zone 2 (bords de la lamelle), zone 3 (zone centrale), un tiret indique l'absence du pic dans la zone considérée

	Position du pic (eV)	Intensité du pic (CPS)		
		Zone 1	Zone 2	Zone 3
Pic 1 (rouge)	530,5 eV	34	90	-
Pic 2 (bleu)	531,25eV	-	20	40
Pic 3 (vert)	532,2eV	46	55	48
Pic 4 (violet)	533,7	26	25	32

Le pic présent à 530,5 eV correspond à l'énergie des atomes d'oxygène bivalent (O²⁻) alors que le pic à 531,25 eV correspond au groupement hydroxyles (OH⁻). Suivant les zones, sont alors présents :

- Zone « avant impact » : O²⁻
- Zone « périphérique » : O²⁻ et OH⁻
- Zone « impact et étalement » : OH⁻

c) Conclusions sur la chimie de surface du substrat

Au niveau de la zone 1, c'est-à-dire celle qui n'a pas subi l'étalement de la particule et donc pouvant être caractéristique de l'état chimique de la lamelle avant l'impact, les éléments Fe²⁺ et O²⁻ ont été détectés. Le composé le plus probable est donc du Fe₂O₃.

Au niveau de la zone 2, c'est-à-dire au niveau de la périphérie de l'étalement, les éléments Fe²⁺, O²⁻ et OH⁻, mais également les espèces Cr et Mn ont pu être détectés. Les composés les plus probables sont donc du Fe₂O₃, mais également des hydroxydes de Fe, Mn et Cr. Des analyses plus précises sont nécessaires afin de connaître l'état d'oxydation des espèces Cr et Mn. De plus, il faut noter que c'est en périphérie de l'étalement que la quantité de fer est la plus importante

Au niveau de la zone 3, c'est-à-dire au niveau de la zone d'étalement centrale, tous les groupements et espèces détectés dans la zone 2 sont présents hormis O²⁻. Les composés les

plus probables sont donc des hydroxydes de Cr, Mn et Fe. Dans cette zone la concentration de fer est proche de celle de la zone 1.

Les différentes espèces présentes dans les premiers nanomètres de la surface sont résumées sur la Figure IV-9.

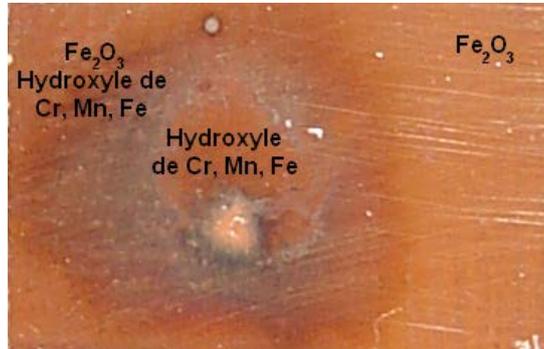


Figure IV-9 : Résumé des différents composés présents dans les zones analysées.

L'impact de la lamelle a donc modifié la chimie de surface du substrat, en augmentant la concentration de fer en périphérie de l'étalement et en permettant la diffusion de Mn et Cr en surface du substrat. Cependant, à quoi est due la présence d'hydroxyle en surface du substrat, aux endroits où la lamelle s'est étalée ?

Les hydroxydes ont tendance à être en grande partie éliminés au-delà de 200°C, ils ne peuvent donc pas être produits au moment de l'étalement, mais ils se sont formés à température ambiante entre la fin du tir et la caractérisation. L'étalement de la particule a donc activé la surface par rapport à la chimisorption d'eau sur la surface, en créant des clusters métalliques par diffusion de ces espèces à travers la couche d'oxyde. Lors du retour à la température ambiante, la lamelle est soumise aux contraintes thermiques qui provoquent sa séparation d'avec le substrat. Les clusters métalliques sont alors exposés à l'humidité de l'air qui s'adsorbe sur la surface.

La quantité de fer en périphérie est plus importante du fait de la présence du bourrelet de matière se refroidissant plus lentement. Par ailleurs, en périphérie le substrat surchauffé par la lamelle est en contact avec l'air ambiant favorisant la création d'une couche d'oxyde épaisse. Pour connaître la quantité d'espèces présente dans les premiers nanomètres de la lamelle, il est maintenant nécessaire d'analyser le dessous de la lamelle en regard de la zone 1 (zone centrale).

IV-2.2.2 Dessous de la lamelle après décolllement

Pour analyser la face de la lamelle en contact avec le substrat, appelée « dessous de la lamelle », seule la technique de l'XPS est utilisée, l'EDS ne permettant pas d'avoir une information suffisamment précise. Du fait des contraintes thermiques lors du refroidissement et du manque de liaison chimique avec le substrat, la lamelle se détache d'elle-même. Il suffit de localiser sur la lamelle la zone en regard de la zone 3 du substrat et de réaliser l'acquisition du spectre global et des spectres haute résolution des espèces qui sont détectées.

a) Spectre global

Afin de connaître les espèces présentes dans les premiers nanomètres du dessous de la lamelle, le spectre XPS de 0 à 1100 eV pour la zone en regard de la zone 3 du substrat est présenté sur la Figure IV-10. Il existe du chrome en faible quantité en plus de l'aluminium et de l'oxygène, ces dernières espèces étant majoritaires au sein de la lamelle. Pour confirmer la présence de chrome, il est nécessaire d'étudier maintenant les spectres hautes résolution de l' Al_{2p} dans le cas de l'alumine, avant et après étalement. Le spectre haute résolution du chrome n'est pas présenté car le signal recueilli est trop faible pour connaître son état d'oxydation.

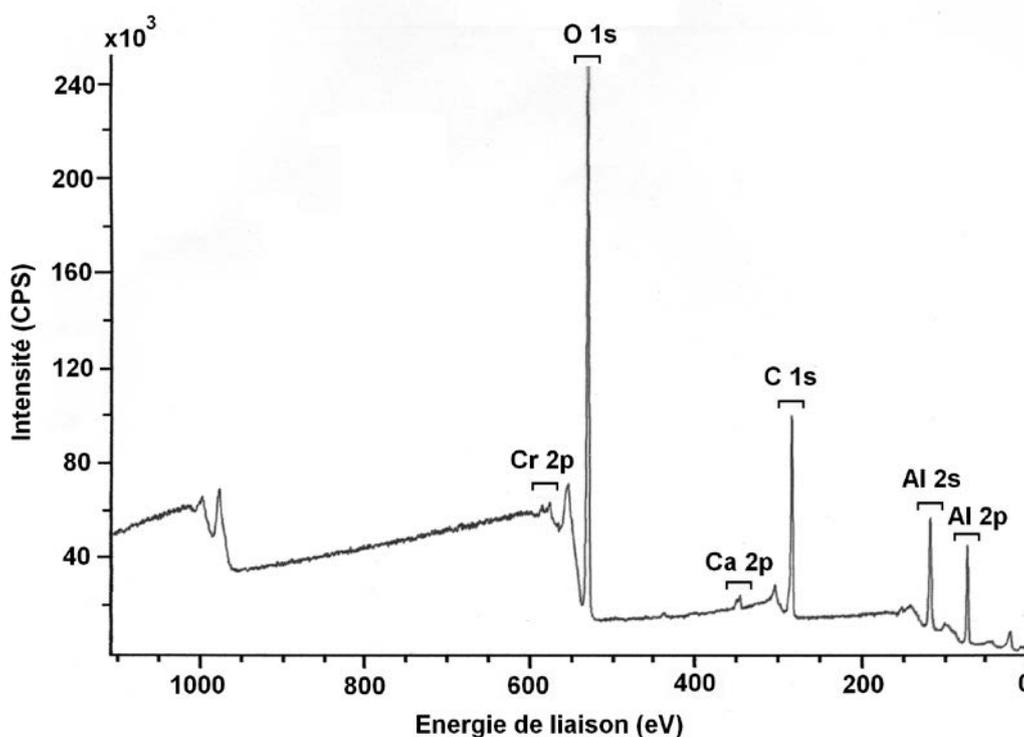


Figure IV-10 : Spectre XPS global de la face de la lamelle en contact avec le substrat.

b) Energie de liaison du Al 2p

Comme signalé précédemment, chaque profil est le résultat de la superposition de plusieurs contributions énergétiques. Dans le cas d'un composé de type Al_2O_3 , seules deux espèces sont présentes de façon majoritaire, il est donc fortement probable de ne rencontrer qu'un seul pic. Ceci est vrai dans le cas de l'alumine initiale, où un seul grand pic est présent à 74,8 eV, le pic d'intensité faible à 76,9 eV résulte d'une pollution de surface. L'énergie correspondant à la liaison Al-O au sein du composé Al_2O_3 est donc de 74,8 eV.

Pour le dessous de la lamelle, un deuxième pic est présent à plus basse énergie indiquant, de manière certaine, une modification de l'environnement chimique de l'aluminium du fait de la présence d'un autre élément au sein du réseau cristallin.

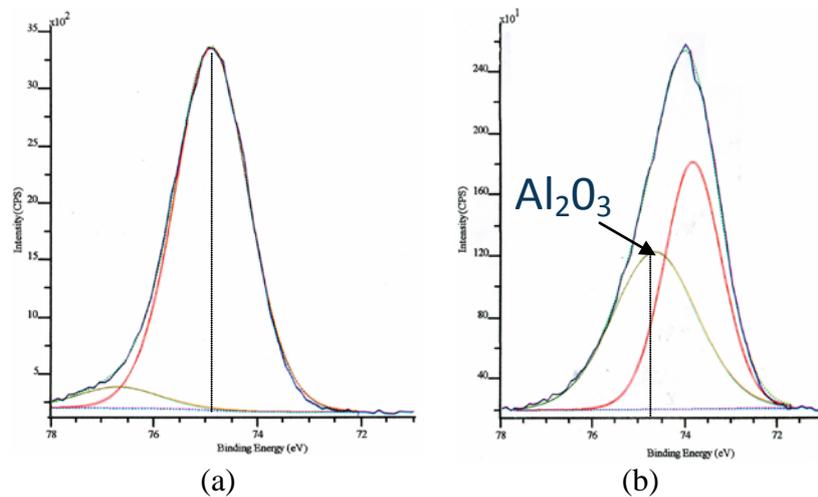


Figure IV-11 : Spectres haute résolution de la liaison Al2p, (a) avant impact (b) après impact

c) Conclusions.

Le spectre global a mis en évidence la présence de chrome, d'aluminium et d'oxygène à la surface du dessous de la lamelle. Les spectres haute résolution ont mis en évidence une modification de l'environnement chimique de l'aluminium. Le chrome a donc pu s'insérer au sein du réseau cristallin de l'alumine, comme c'est le cas pour le rubis. Cela témoigne de la diffusion possible des éléments au sein de la lamelle en cours d'étalement, avec un effet direct sur la nature cristalline de l'alumine. Cependant, le fer et le manganèse n'ont pas été détectés, ceci indique l'absence de diffusion ou une concentration trop faible des éléments dans la première couche du dessous de la lamelle.

IV-3/ Cas du NiAl sur un substrat d'alliage de titane

L'examen de l'étalement d'une particule de NiAl sur un substrat d'alliage de titane, dans différentes conditions de température et d'atmosphère, a mis en évidence des différences entre les divers cas étudiés (cf. paragraphe III-3.2, p 158). Afin d'interpréter au mieux ces différences, il est nécessaire d'étudier l'interface entre la lamelle et le substrat. Pour ce faire, la lamelle est coupée selon un diamètre et ensuite polie afin de l'observer à l'aide d'un microscope Geol Gemini.

Dans une première partie, est présenté le cas de l'impact à l'air pour deux températures de substrat et, dans une seconde partie, le cas de l'impact sous une atmosphère d'argon pour également deux températures de substrat. Toutes les mesures ont été réalisées dans la zone centrale de la lamelle. Les composés proposés sont déduits de la concentration atomique des différents éléments grâce au diagramme de phase présent dans l'Annexe 6.

Ces caractérisations ont été réalisées en partenariat avec le docteur Manjusha Battabyal au sein du laboratoire du Pr. Uta Klement de l'université de Göteborg (Suède).

IV-3.1 Impact d'une particule millimétrique de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous air

IV-3.1.1 Substrat à température ambiante (20°C).

Dans le cas d'un substrat froid, il existe des couches intermédiaires entre la lamelle et le substrat. Du fait de l'utilisation du microscope en mode BSE, le contraste différent entre les couches permet de mettre en évidence les compositions différentes de ces couches au niveau de la zone centrale.

Il y a donc eu diffusion à l'interface durant le temps d'étalement. Globalement deux couches intermédiaires sont visibles. De plus, au sein de ces couches des fractures perpendiculaires au substrat sont visibles, ces fractures ne se propageant pas à la lamelle.

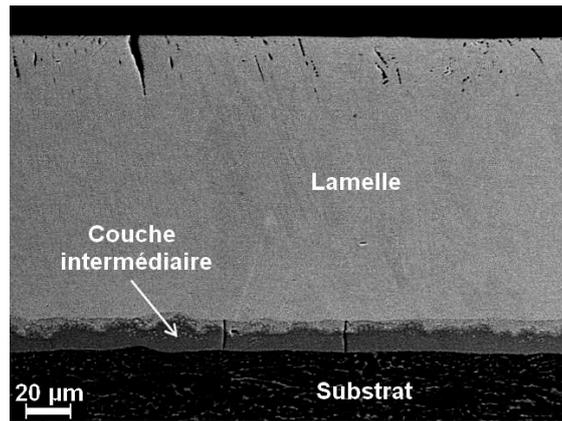


Figure IV-12 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de NiAl sur un substrat de Ti-6242 à température ambiante (diamètre initial de la particule 5 mm)

La première couche, celle en contact avec le substrat (flèche 1, Figure IV-13), possède une très bonne continuité avec le substrat et une épaisseur moyenne de 12 µm. De plus, il peut être noté la présence de filament de matière provenant de cette couche et en direction du substrat (zone entourée, Figure IV-13). Ceci témoigne d'une fusion locale et donc d'un bon contact avec le substrat. La composition chimique de cette couche est donnée dans le Tableau IV-4. D'après ces compositions, le composé le plus plausible est le NiTi₂, avec probablement du NiAl₃. La structure de cette couche est colonnaire, les colonnes étant orientées en direction du substrat.

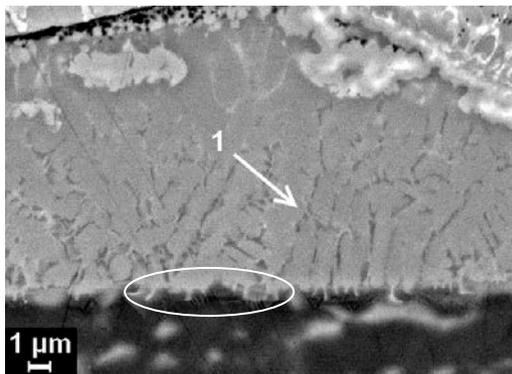


Figure IV-13 : Vue microscopique de la couche 1 située en contact du substrat

Tableau IV-4 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 1

	%masse	%atomique
Al	5,17	9,47
Ti	56,40	58,19
Ni	38,43	32,34

La deuxième couche (6 µm d'épaisseur) est constituée à la fois d'un eutectique et d'une structure cellulaire, et contrairement à la couche précédente, celle-ci présente des défauts sous la forme de porosité et plus particulièrement dans la zone de l'eutectique. Cette couche n'est, de plus, pas uniforme en épaisseur. La composition chimique de cette couche est donnée dans le Tableau IV-5. D'après ces compositions, les composés présents dans la

zone eutectique sont du Ni_3Ti et du NiTi , et le composé situé dans la zone cellulaire est le AlNi_2Ti .

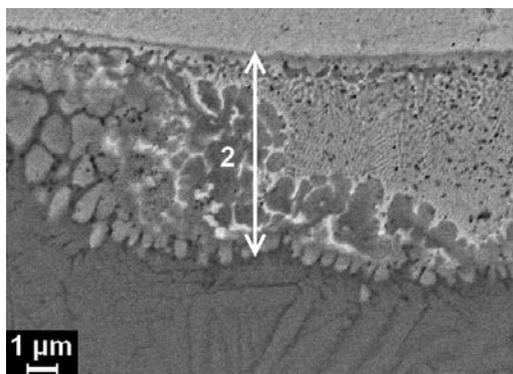


Figure IV-14 : Vue microscopique de la couche 2 composée d'une structure eutectique et cellulaire

Tableau IV-5 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 2 pour les deux différentes zones

	Zone eutectique		Zone cellulaire	
	%masse	%atomique	%masse	%atomique
Al	5,59	8,14	8,62	12,53
Ti	21,18	24	23,67	26,23
Ni	73,23	67,85	67,70	61,24

Ici, une troisième couche d'épaisseur inférieure à $1\ \mu\text{m}$ permet la transition entre les deux premières couches et le reste de la lamelle. Cette couche est beaucoup trop fine pour être caractérisée par EDS (résolution de $3\ \mu\text{m}$). La composition du reste de la lamelle (flèche 4, Figure IV-15) est donnée dans le Tableau IV-6. Cette partie est donc composée d'une phase unique ($\gamma\text{-Ni}$) et d'aluminium.

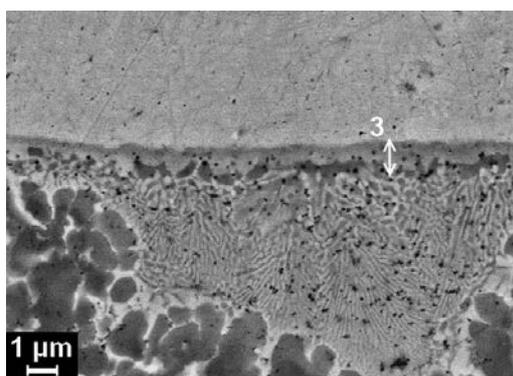


Figure IV-15 : Vue microscopique de la couche 3 et du reste de la lamelle (flèche 4)

Tableau IV-6 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein du reste de la lamelle

	%masse	%atomique
Al	5,24	10,60
Ti	0,66	0,82
Ni	94,1	88,58

IV-3.1.2 Substrat chauffé à 300°C

Pour un substrat chaud, il existe également trois différentes couches au niveau de l'interface. Ces couches sont globalement homogènes mis à part, de temps en temps, la

disparition de la deuxième couche en partant du substrat. De plus, aucune fracture n'est visible dans ces couches.

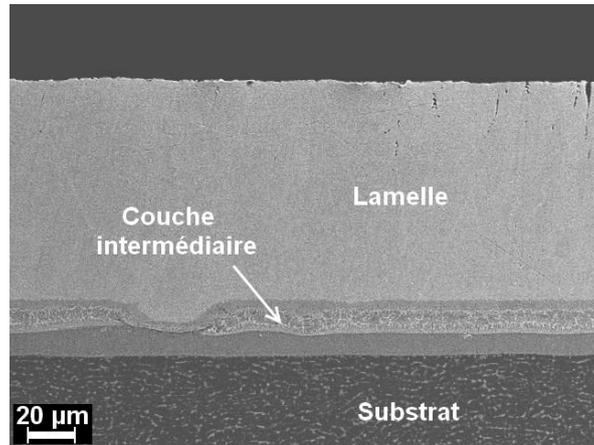


Figure IV-16 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de NiAl sur un substrat de Ti-6242 chauffé à 300°C

Les première et deuxième couches possèdent la même composition et la même structure que dans le cas d'un substrat froid. La seule différence à noter est la diminution de la proportion de la zone eutectique par rapport à la zone colonnaire au sein de la deuxième couche, la zone eutectique est située majoritairement à l'interface avec la première couche. La première couche a une épaisseur moyenne de 12 µm et la deuxième couche une épaisseur de 10 µm. La deuxième couche possède de plus, une porosité importante dans sa partie supérieure.

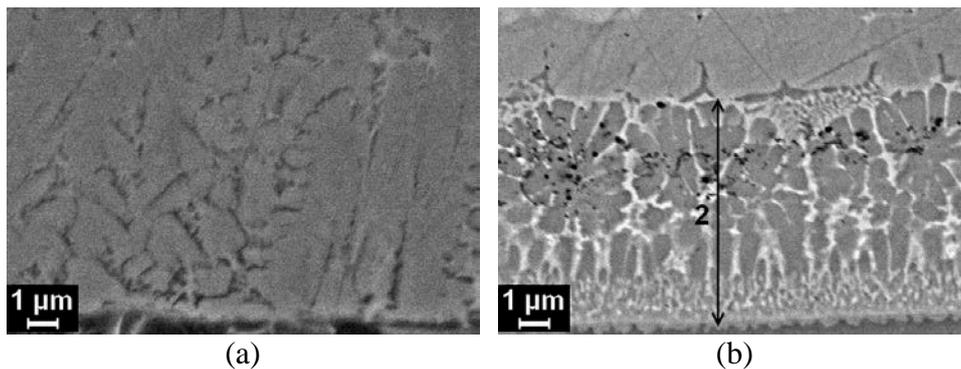


Figure IV-17 : (a) Couche 1 et (b) Couche 2

La troisième couche d'épaisseur 5 µm est homogène et dense, et permet une transition avec le reste de la lamelle. La composition de cette troisième couche est résumée dans le Tableau IV-7. Cette couche se compose donc d'une phase unique constituée d'une solution solide de $Ni_3(TiAl)$.

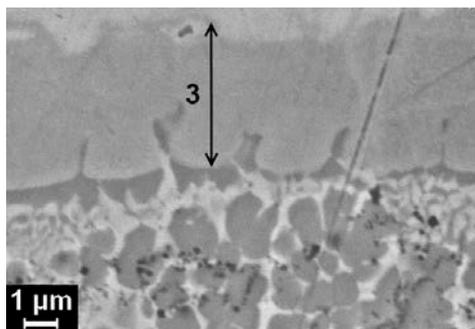


Figure IV-18 : Couche 3

Tableau IV-7 : Compositions chimiques mesurées par EDS au sein de la couche 3

	% masse	% atomique
Al	7,56	14,89
Ti	6,82	7,57
Ni	85,63	77,54

IV-3.1.3 Conclusions

La composition chimique à l'interface entre une lamelle impactant un substrat à température ambiante et un substrat chauffé à 350°C est globalement identique. Les seules différences proviennent de l'homogénéité des différentes couches, les couches étant plus régulières sur un substrat chaud. Cependant, l'épaisseur des deux premières couches ne varie pas en fonction de la température du substrat. Seule la troisième couche possède une épaisseur légèrement supérieure dans le cas de l'impact sur un substrat chaud. Par ailleurs, sur un substrat froid les couches intermédiaires possèdent des fractures perpendiculaires au substrat.

La première couche est composée de NiTi_2 avec probablement du NiAl_3 , et sa structure est colonnaire, les colonnes étant orientées en direction du substrat.

La deuxième couche est composée d'une structure eutectique (Ni_3Ti et du NiTi) et d'une structure colonnaire (AlNi_2Ti), dont les colonnes sont orientées dans le sens parallèle au substrat. La proportion entre les deux structures varie en fonction de la température du substrat. Et cette couche possède une porosité plus élevée que les autres couches.

La troisième couche est composée d'une phase unique constituée d'une solution solide de $\text{Ni}_3(\text{TiAl})$.

IV-3.2 Impact d'une particule millimétrique de NiAl sur un substrat d'alliage de titane sous argon

IV-3.2.1 Substrat froid

Dans ce cas-là, une seule couche d'épaisseur 12 µm est visible, cette couche possède une composition chimique identique à celle de la couche 1 du cas précédent. Elle possède

également des fractures perpendiculaires au substrat ne se propageant pas au reste de la lamelle.

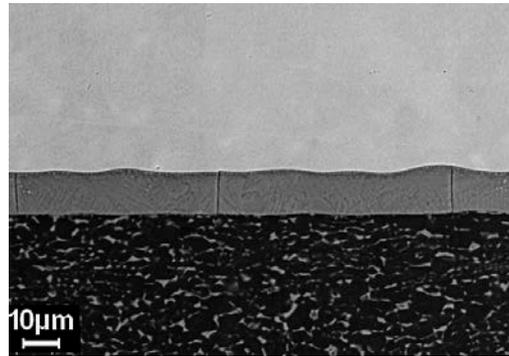


Figure IV-19 : Vue globale de la tranche d'une lamelle millimétrique de Ni5Al sur un substrat de Ti-6242 à température ambiante lors de l'impact de la particule de diamètre 5 mm

A l'interface entre cette couche et le reste de la lamelle, il existe une ligne de colonne de direction parallèle au substrat pouvant correspondre à la couche 2 du cas précédent. Par ailleurs, dans certaines zones de la couche 1, des cristaux sont présents mais ne peuvent pas être caractérisés du fait de leur petite taille ($1\mu\text{m}^2$). Ces cristaux sont accompagnés de porosités circulaires. La structure de cette couche est là encore colonnaire même dans la zone présentant les petits cristaux.

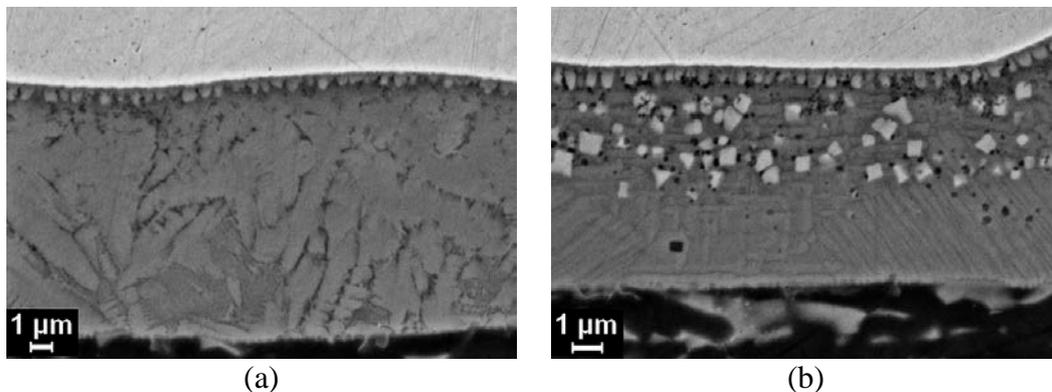


Figure IV-20 : Vues microscopiques de la couche 1 (a) pour une zone homogène et (b) pour une zone présentant des cristaux.

IV-3.2.2 Substrat chaud

Dans le cas de l'impact sur un substrat chaud, l'interface entre la lamelle et le substrat possède le même arrangement que dans le cas de l'impact sous air. La non régularité des différentes couches et l'épaisseur de la couche 3 indiquent de grandes ressemblances avec le

cas de l'impact sous air sur un substrat froid. Ici encore la porosité est située au sein de la deuxième couche.

Cependant, ici, aucune fracture perpendiculaire n'est présente dans les couches intermédiaires, et la zone globale de la lamelle présente une structure colonnaire. Par ailleurs, la proportion de zone eutectique par rapport à la zone colonnaire au sein de la couche 2 est globalement identique à celle obtenue sur un substrat chaud sous air, mais la répartition est plutôt sous forme de zones ponctuelles.

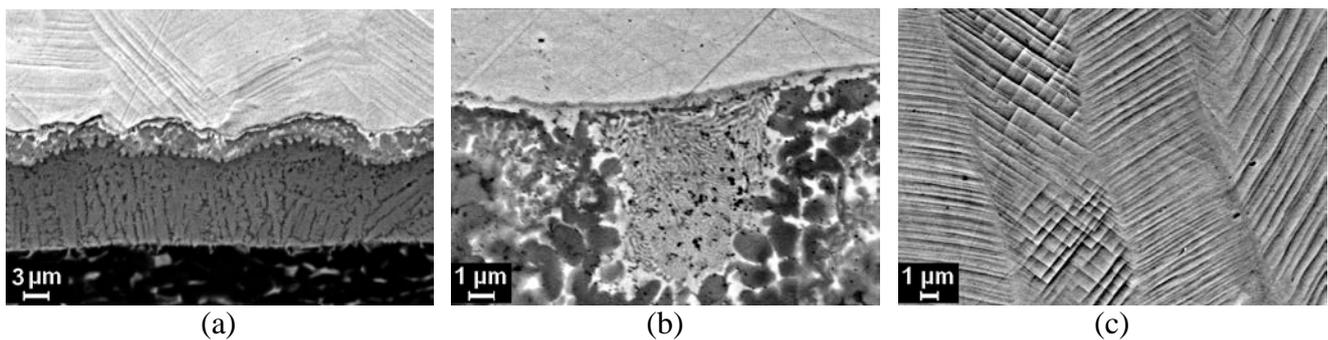


Figure IV-21 : Vues microscopiques de l'interface dans le cas de l'impact sous argon sur une surface chauffée à 350°C, (a) vue globale des différentes couches intermédiaires, (b) vue de la couche 2 et (c) vue de la zone 4

IV-3.3 Discussions et conclusions.

La comparaison de l'interface entre la lamelle et le substrat dans le cas de l'impact dans différentes conditions de température et d'atmosphère a mis en évidence une diffusion importante du titane au sein de la lamelle sur une distance pouvant varier de 10 à 20 μm.

Cette diffusion entraîne l'apparition de différentes couches parallèles à l'interface. Ces couches ne semblent pas être liées directement aux conditions de chauffage et d'atmosphère, puisque la composition des différentes couches est identique suivant les conditions. Cependant, sur substrat froid, cette couche est plus contrainte puisque des fractures perpendiculaires au substrat sont présentes, ce qui n'est pas le cas pour un substrat chaud.

La couche 1 est présente dans tous les cas, et son épaisseur est toujours identique (12 μm). Elle est toujours composée de NiTi₂ avec probablement du NiAl₃ et sa structure est colonnaire, les colonnes étant orientées en direction du substrat. La seule différence a été notée dans le cas de l'impact sur un substrat froid sous argon où la présence de petits cristaux a été détectée au niveau de zones poreuses.

La couche 2 est rencontrée dans tous les cas sauf dans le cas de l'impact sur un substrat froid sous argon où son épaisseur est très faible (1µm). Dans les autres cas, son épaisseur est d'environ 10 µm et elle est composée d'une structure eutectique (Ni₃Ti et NiTi) et d'une structure colonnaire (AlNi₂Ti) dont les colonnes sont orientées parallèlement au substrat. La quantité d'eutectique par rapport à la zone colonnaire est plus faible lorsque la lamelle s'étale sur un substrat chaud. Cette couche possède une porosité plus élevée que les autres couches.

La couche 3 possède une épaisseur faible. L'épaisseur la plus importante (5 µm) est obtenue dans le cas de l'impact sous air sur substrat chaud. Dans le cas de l'impact sous argon sur substrat chaud l'épaisseur est identique aux autres cas, c'est-à-dire de 1 µm. Dans le cas sous argon sur substrat froid, cette couche n'est pas détectée.

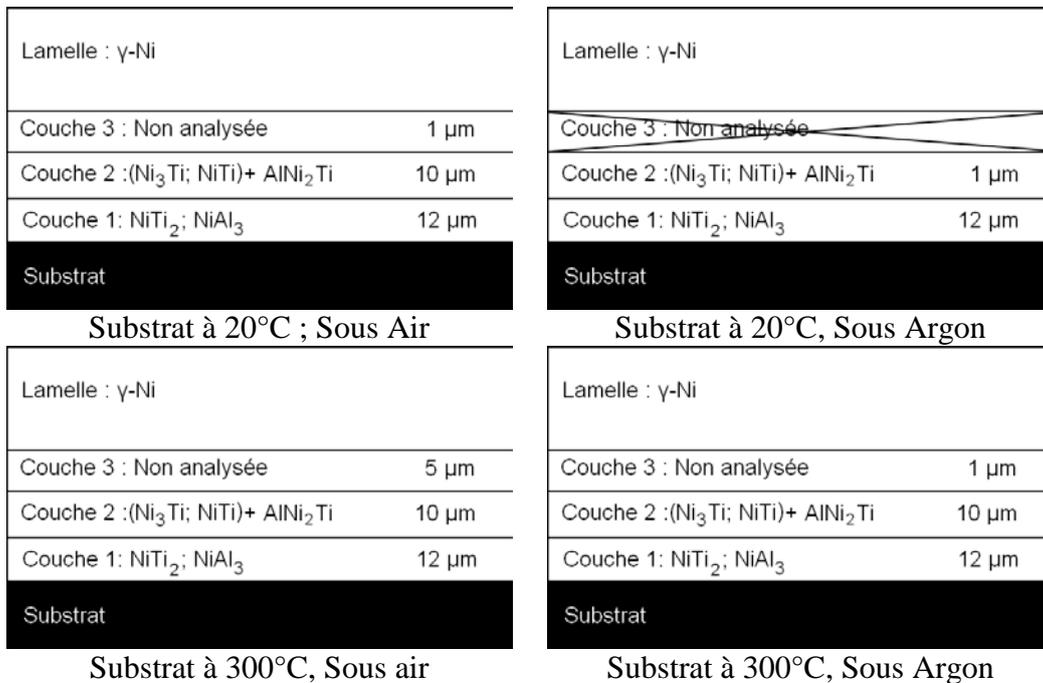


Figure IV-22 : Schéma récapitulatif des différentes couches trouvées à l'interface lamelle / substrat.

Le reste de la lamelle, qui consiste en une phase de γ -Ni avec 5% (masse) d'aluminium, est globalement homogène. La présence d'une structure colonnaire a été détectée dans le cas de l'impact sous argon sur substrat chaud mais pas dans les autres cas.

Sur la Figure IV-23, est présenté le profil de concentration typique des éléments Ti, Ni, Al, O au sein des différentes couches. Il peut alors être remarqué que la concentration de chaque couche est bien définie car il est possible d'observer des plateaux de concentration. De

plus, si le titane a fortement diffusé au sein de la lamelle, le nickel lui n'a pas diffusé au sein du titane. Le profil de concentration présenté est celui de l'impact sur une surface chaude sous air, et paradoxalement la concentration en oxygène à l'interface se trouve en dessous du seuil de détection.

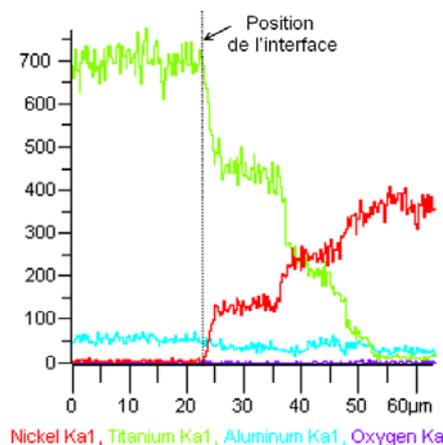


Figure IV-23 : profil de concentration des différentes espèces à l'interface lamelle substrat.

Cependant, ici seul le cas de la partie centrale est étudié, et comme dans le cas de l'impact de l'alumine sous air sur substrat chaud, aucun oxyde n'a pu être détecté à l'interface. Cela peut être dû à une quantité d'oxyde inférieure au seuil de détection de l'appareil, ou à l'éjection de la couche d'oxyde du substrat lors de l'impact.

Les études réalisées par les autres auteurs sur les lamelles de taille micrométrique, [125], ont montré que dans le cas de l'impact de particules de NiAl sur des substrats de Ti-Al-V, il existait deux micro-constituants : des grains de pro-eutectique de Nickel, et une structure eutectique comprenant du Ni et du Ni₃Al lorsqu'un phénomène de délamination se produisait. Dans le cas d'une bonne liaison avec le substrat, la structure consistait en une solution solide de nickel et d'une autre couche d'épaisseur variable. Les études MET ont montré que la couche interfacielle était nanocristalline et que la taille des grains se situait dans une gamme de 10 à 100 nm. Les analyses EDS ont montrés qu'une inter diffusion se produisait à l'interface de la lamelle. Cette inter diffusion se propage sur une distance de 1 à 2 µm et cette distance est plus importante que l'épaisseur de la couche interfacielle. Cette dernière étant constituée principalement de Ni et de Ti, la présence d'une phase métastable ou d'une phase intermétallique n'étant pas confirmée mais fortement probable selon l'auteur.

Les mêmes phénomènes sont donc retrouvés, mis à part qu'ici, les couches sont bien définies et qu'il n'existe pas de réelles différences entre les différents cas étudiés. De plus, l'épaisseur totale de toutes les couches correspond, ici, à la distance de diffusion du titane. Il est donc fortement probable que la diffusion du titane et la présence d'un gradient de température au sein de la lamelle ont permis de créer ces différentes couches. La présence de cette diffusion permet par ailleurs d'augmenter le contact entre la lamelle et le substrat car des liaisons chimiques entre la lamelle et le substrat sont créés, ce qui n'était pas le cas pour une lamelle d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable.

**Conclusion générale
et
perspectives**

Conclusion générale

D'une façon générale, cette étude expérimentale sur l'étalement d'une particule liquide chaude qui se refroidit et se solidifie, a permis de mieux comprendre les phénomènes influençant le processus d'étalement. En effet, de nombreux paramètres entrent en jeu au cours de l'impact d'une particule sur une surface. Ces paramètres sont liés à l'état de la goutte avant son impact (température, vitesse, diamètre, état d'oxydation), et également à l'état de surface du substrat (lisse, rugueux, froid, chaud, pollué ou non, état d'oxydation). Pour différencier la contribution de chaque phénomène, il a été nécessaire de ne considérer que les particules avec des conditions initiales identiques, autant que faire se pouvait. Cette étude s'est centrée principalement sur l'influence de l'état de surface du substrat sur la forme de la lamelle. Pour ce faire, il a été décidé de réaliser l'étude à deux échelles d'étalement :

La première, appelée échelle micrométrique, concernait l'étude de l'impact d'une particule de taille micrométrique (40 μm) fondue et accélérée par une torche à plasma.

La deuxième, appelée échelle millimétrique, utilisait un dispositif de chute libre amélioré permettant d'étudier l'impact de particules de taille millimétrique sur une gamme de vitesse large (1 à 10 m/s), boostée, par l'intermédiaire d'un substrat mobile verticalement.

Jusqu'à présent une seule étude [117] avait permis de mettre en évidence la chronologie de l'étalement de la matière à l'échelle micrométrique, et cela pour un seul matériau et une seule condition de substrat (ZrO_2 / acier inoxydable à 20°C). Les autres études permettaient seulement de remonter au diamètre d'étalement maximal de la particule et non à la répartition de la matière sur le substrat.

Grâce aux deux dispositifs développés dans cette étude, il a été possible d'observer les modifications pendant le processus d'étalement suivant la nature de la particule incidente. En effet, chaque dispositif possède des systèmes pyrométriques et d'imagerie permettant de connaître la vitesse, le diamètre et la température de la particule à l'impact et au cours de l'étalement. Cependant, ces dispositifs ne sont pas identiques et sont plus ou moins complexes.

A l'échelle micrométrique, du fait de la taille (40 μm) et de la vitesse (de 100 à 200 m/s) de la particule, le processus d'étalement se déroule en moins de 1 μs et la phase de

solidification en moins de 10 μ s. Du fait de ces temps très brefs, il n'a pas été possible de suivre de façon continue l'étalement d'une particule. Il a donc été décidé de visualiser la chronologie de l'étalement par un décalage temporel des prises de vue, et cela pour différentes particules, en considérant que les particules sélectionnées dans une gamme resserrée de vitesse et de température avaient le même état thermique et cinétique. Cela a permis d'observer la répartition de la matière à la surface du substrat, ainsi que le processus d'éjection au moment de l'impact et au cours de l'étalement, ce qui n'avait encore jamais été observé dans le cas de particule micrométrique. Enfin grâce aux signaux pyrométriques, il a été possible de lier l'étalement au processus de solidification.

A l'échelle millimétrique, du fait de l'augmentation du diamètre, la cinétique d'étalement est de l'ordre de la milliseconde. Ceci permet de suivre le processus d'étalement en utilisant une caméra rapide (4000 images/s). La principale difficulté de ce dispositif était d'obtenir des « grosses » gouttes liquides de céramique et d'étudier l'impact de ces particules avec différentes vitesses d'impact. Pour obtenir les gouttes de céramique, le choix s'est porté sur la fusion de l'extrémité d'un barreau au sein d'un arc électrique. Le manque de vitesse à l'impact a été solutionné par la mise en mouvement du substrat par le biais d'un piston pneumatique. Ce dispositif permet d'avoir une énergie cinétique d'impact peu différente de celle obtenue pour des particules micrométriques et donc permet de lier les deux échelles afin de mieux comprendre comment se déroule l'impact.

Cette étude s'est donc focalisée, dans un premier temps, sur l'impact des particules à l'échelle micrométrique afin de connaître les différents phénomènes pouvant être rencontrés. Puis, dans un deuxième temps, l'échelle millimétrique a permis d'expliquer au mieux certaines observations faites à l'échelle micrométrique. Finalement, la dernière partie a permis de s'approcher, à l'échelle de particules millimétriques, des phénomènes chimiques se déroulant à l'interface. Ces différentes études successives ont permis de tirer les conclusions suivantes :

Influence de la vitesse d'impact à l'échelle millimétrique :

Lorsqu'une particule impacte sur la surface d'un substrat, avec une vitesse inférieure à 5 m/s, cas de l'alumine pour un nombre de Weber incident inférieur à 500, la particule commence à s'étaler puis subit un phénomène de recul total en direction de la partie centrale. Pour que la matière reste au final étalée, il faut, dans le cas de l'alumine, étudier l'étalement

des particules pour un nombre de Weber supérieur à 500, et non en égalisant les nombres de Reynolds d'avant impact.

Influence de la couche d'oxyde de la particule incidente, sur les éjections de matière :

Lorsque la particule impacte sous air, du fait de l'oxydation, une coquille solide se développe en périphérie de la goutte. Cette couche d'oxyde perturbe l'écoulement en créant des obstacles conduisant à la création de doigts de forme triangulaire si la pression de l'écoulement est suffisamment forte, ou à de simples bâtonnets pour des écoulements à plus basse vitesse. Ceci perturbe la forme finale de la lamelle du fait du mauvais contact de ces doigts et leur éjection diminue le rendement du dépôt.

Influence des adsorbats sur le processus d'étalement :

A température ambiante, pour un échantillon non préchauffé, de nombreuses espèces peuvent être présentes à la surface du substrat, ce qui induit un nuage de gaz à l'interface lamelle / substrat, réduisant le transfert thermique mais également les frottements avec le substrat. De ce fait, la goutte perd très peu de son énergie cinétique et s'étale largement sous la forme d'un film, induisant la présence de nombreuses éjections au moment de l'étalement maximal. Par contre, les éjections centrales perpendiculaires sont attribuées à la présence d'un cœur solide au sein de la particule et non à la désorption des gaz à l'impact.

Au fur et à mesure de l'élévation en température du substrat lors d'un préchauffage, les adsorbats présents en surface s'évaporent. Ce « nettoyage » de surface augmente le transfert thermique et les frottements avec la surface, et permet donc de former des lamelles circulaires sans éjections.

Influence de la température du substrat sur la mouillabilité :

Pour un substrat préchauffé selon des conditions optimales pour obtenir des lamelles circulaires puis pour ce même substrat refroidi à température ambiante, le seul cas où il a été possible de réobtenir des lamelles circulaires, est celui correspondant à l'impact d'une particule d'alumine sur un substrat d'acier inoxydable 304L. Il a été montré que le substrat en acier inoxydable s'oxydait plus que celui en alliage de titane. Cette légère oxydation augmente la mouillabilité de la lamelle sur le substrat. Comme la mouillabilité d'un liquide sur une surface augmente en fonction de la température, cela signifie que la mouillabilité, en

augmentant les frottements avec la surface du substrat, influence la valeur de la température de transition.

Pour une surface dépourvue d'adsorbats et de condensats, la température de transition ne dépend, a priori, que de la mouillabilité. Il est donc possible, suivant les valeurs de la température de transition, de classer les couples particule / substrat par mouillabilité croissante : NiAl / Ti-6242 ($T_t > 400^\circ\text{C}$); NiAl / 304L ($T_t = 300^\circ\text{C}$); Al_2O_3 / Ti-6242 ($T_t = 300^\circ\text{C}$); Al_2O_3 / 304L ($T_t = 200^\circ\text{C}$).

Relation entre la tension superficielle et le facteur d'étalement :

La comparaison entre les deux échelles d'étalement et les différents types de matériaux constituant la goutte et le substrat a mis en évidence une dépendance entre la vitesse d'étalement normalisée « a » et l'état de surface du substrat. Par ailleurs, il apparaît que le diamètre d'étalement maximal de la particule est fortement dépendant de la tension superficielle plus que de la viscosité. Il est ainsi possible d'avoir une idée du degré d'étalement d'une particule en fonction de l'état de surface du substrat (à travers « a »), et de la tension superficielle (au travers du Weber d'étalement noté $We_{L;D_0}$) grâce à la relation suivante, établie à partir de résultats expérimentaux aux deux échelles d'étalement et pour différents couples particule / substrat.

$$\xi_{\max} = 0,0014 * We_{L;D_0} + 1$$

où $We_{L;D_0} = \frac{\rho(v_0 * a)^2 D_0}{\sigma}$ et $We_{L;D_0} < 5000$

v_0 : Vitesse d'impact de la particule

a : Valeur de la vitesse d'étalement normalisée par rapport à la vitesse d'impact :

Lamelle déchetée : a = 1,2 ;

Lamelle circulaire : a < 0,8

Par exemple, il est actuellement impossible de suivre expérimentalement le processus d'étalement d'une particule de taille nanométrique (200 nm de diamètre). Or, la compréhension de l'étalement est, là encore, nécessaire pour étudier la construction du dépôt. Les recherches les plus récentes ont pu mettre en évidence que les lamelles à l'échelle nanométrique présentaient un facteur d'étalement faible (1,2 à 2,3) [186] pour les premières couches en bon contact thermique avec le substrat et que de petites sphères étaient présentes dans le dépôt au fur et à mesure de l'augmentation de son épaisseur [186]. Si la relation

trouvée ci-dessus est utilisée, en considérant une particule d'alumine de 200 nm de diamètre avec une vitesse d'impact de 500 m/s, les facteurs d'étalement trouvés sont les suivants :

Mauvais contact thermique : $a = 1,2 \Rightarrow We_{L;Do} = 335 \Rightarrow \xi_{\max} = 1,5$

Bon contact thermique : $a = 0,8 \Rightarrow We_{L;Do} = 150 \Rightarrow \xi_{\max} = 1,2$

Cela confirme le faible facteur d'étalement, malgré les vitesses plus élevées, des particules à l'échelle nanométrique. Par ailleurs, le calcul du nombre de Weber de la particule d'alumine incidente donne $We_0 = 232$, ce qui est largement inférieur au nombre de Weber critique de 500, en dessous duquel se produit un phénomène de recul total de la matière en direction du centre. Donc si la lamelle nanométrique ne se solidifie pas rapidement du fait d'un mauvais contact thermique, elle aura tendance à reformer une sphère et peut être à s'agglomérer avec ses plus proches voisines pour former la structure observée à l'échelle nanométrique.

Formation des filaments de matière observés en périphérie d'une zone centrale de matière :

Lorsque la forme finale de la lamelle est observée, il peut être noté, dans certains cas ($T_{\text{substrat}} < T_t$) la présence de filaments de matière. L'étude a montré que, dans la majorité des cas, ces filaments ne correspondaient pas à un phénomène d'éjection mais résultaient de la cassure du film par un phénomène de démouillage en direction des zones déjà solidifiées, formant ainsi les filaments de matière observés. L'étalement maximal de ces particules peut alors être alors 10 fois plus important que le diamètre de la lamelle finale.

Réactivité chimique entre la goutte et le substrat

Les analyses chimiques sur les lamelles de taille millimétrique ont montré que l'impact de la goutte modifiait la chimie de surface du substrat, d'une part par réaction chimique entre les gaz présents à l'interface et la surface du substrat, et d'autre part, par diffusion des éléments constituant le substrat en direction de la lamelle. Dans le cas d'une lamelle de NiAl, plusieurs couches inter lamellaires présentant des composés bien distincts au fur et à mesure de l'éloignement de la surface du substrat apparaissent :

- Couche 1 : NiTi₂ ; NiAl₃
- Couche 2 : (Ni₃Ti ; NiTi) + AlNi₂Ti
- Couche 3 : non analysée (trop fine)

Ceci peut être provoqué par la présence d'un fort gradient thermique et la diffusion du titane au sein de la lamelle. Les analyses chimiques menées par d'autres laboratoires, sur des lamelles de taille micrométriques, ont également mis en évidence la présence d'une couche intermédiaire ayant la même composition que la deuxième couche, rencontrée à l'échelle millimétrique (Ni_3Ti ; NiTi). Cela met en évidence la diffusion beaucoup moins importante des éléments à l'échelle micrométrique du fait du refroidissement plus rapide.

Limites de la comparaison entre les deux échelles d'étalement :

Cette étude a montré qu'il pouvait exister des similitudes entre les deux échelles d'étalement. Cependant, du fait de l'augmentation du volume de matière lors du passage à l'échelle millimétrique, les cinétiques de refroidissement n'évoluent plus de la même manière. En effet, à l'échelle micrométrique les lamelles se refroidissent plus vite sur un substrat chaud alors qu'à l'échelle millimétrique, c'est sur un substrat froid que la cinétique de refroidissement est plus rapide. Ce phénomène met en évidence la limite de la comparaison des étalements entre les deux échelles, d'un point de vue thermique.

De plus, l'effet d'un nuage de gaz à l'interface lamelle / substrat n'a pas le même effet aux deux échelles, puisqu'à l'échelle micrométrique la lamelle est beaucoup plus influencée par ce gaz, qui peut traverser le film de matière et induire son démouillage, alors qu'à l'échelle millimétrique ce phénomène est absent.

Perspectives

Dans les futurs travaux, il serait intéressant d'étudier :

La mouillabilité des gouttes sur la surface des substrats utilisés dans cette étude :

Il a été montré que la qualité de surface du substrat est un facteur majoritaire qui affecte la mouillabilité des gouttes. Il serait donc nécessaire d'étudier avec précision la mouillabilité. Cependant, du fait des températures de fusion des différents matériaux utilisés, il est impossible d'étudier la mouillabilité statique de l'alumine sur un substrat en acier inoxydable. Une solution pour résoudre ce problème est d'inverser les matériaux et d'étudier la mouillabilité de l'acier inoxydable sur un substrat en alumine. Mais, il n'est alors plus possible d'observer l'évolution de la mouillabilité en fonction de la température du substrat, et cela ne permet plus de conclure sur l'évolution de la mouillabilité entre un substrat à 20°C et

un à 400°C. Une solution serait de se servir du banc d'étalement de goutte millimétrique et d'étudier, pour une vitesse d'impact très faible, l'évolution de l'angle d'avancée et de reculée de la goutte lors de l'étalement de la particule sur des substrats chauffés à différentes températures, ces angles dynamiques dépendant du mouillage de la particule [114]

L'influence de la diffusivité thermique du substrat sur l'étalement :

Dans l'étude réalisée, le choix s'est porté sur des substrats de diffusivités variant dans un rapport de deux, mais cette variation a entraîné peu de modification sur la vitesse de trempe des lamelles. Il serait donc nécessaire de choisir des types de substrats de diffusivité thermique très différentes. Cependant, le choix devra se porter sur des substrats possédant une résistance à l'oxydation élevée, afin de s'affranchir de la croissance d'une couche d'oxyde. Un substrat en cuivre aurait été un bon choix pour bénéficier d'une bonne diffusivité, mais chauffé, ce matériau s'oxyde très vite. Une solution serait de recouvrir la surface de ce substrat, par pulvérisation, d'une mince pellicule d'or et éviter ainsi l'oxydation de la surface du substrat lors de la montée en température, comme souligné dans les travaux de Fukumoto [183].

L'influence de la vitesse et du diamètre de la particule à l'échelle micrométrique :

Dans cette étude, l'évolution du facteur d'étalement en fonction de l'état de surface a été tracée pour une granulométrie de particules et une gamme resserrée de vitesses. En vue de confirmer la relation sur une variabilité plus large, il est nécessaire de faire varier le diamètre des gouttes et leurs vitesses d'impact. Cependant, cette variation de vitesse et de diamètre devra se faire dans des conditions permettant de conserver des particules fondues car plus la vitesse des particules augmente, plus le temps de séjour est réduit, et moins les particules sont chauffées [99]. De plus, pour un diamètre de particule plus important, la température de la particule est plus faible.

L'interface lamelle / substrat à l'échelle micrométrique :

L'examen de l'interface lamelle / substrat a été effectué uniquement sur des lamelles millimétriques. A l'échelle micrométrique, ceci ne peut se faire qu'en utilisant des techniques de caractérisations fines, en collaboration avec des laboratoires spécialisés. Ces analyses fines permettront de relier la qualité de l'interface aux paramètres d'impact des particules et à leur dynamique d'étalement [156][157]. Pour pouvoir ainsi étudier les conditions qui conduisent à

la meilleure interface et au meilleur rendement de dépôt, il sera nécessaire de faire varier l'état de surface du substrat, soit en le pré-oxydant sous atmosphère de CO₂ pour développer une couche d'oxyde favorable à une bonne adhésion du dépôt [130], soit en faisant varier la rugosité du substrat par sablage et méthode électrolytique.

La formation de la deuxième couche de lamelles et des suivantes :

Les études précédentes ont porté sur la première couche de lamelles, en contact avec le substrat. Il est indispensable de poursuivre l'étude sur une deuxième couche. Pour ce faire, il sera nécessaire, dans un premier temps, de projeter des lamelles de façon la plus homogène possible et sans chevauchement, en utilisant une torche plasma en mouvement et en ajustant au mieux le débit de poudre. Dans un deuxième temps, il faudra utiliser ces échantillons et observer le comportement d'une particule sur ce type de surface. Tout cela afin d'améliorer la cohésion du dépôt et diminuer le taux de porosité.

L'étalement de particules dans un état semi fondu :

Tous les essais ont été réalisés avec des particules sélectionnées sur la trajectoire moyenne, donc des particules bien traitées thermiquement. Cependant, lors de la construction d'un dépôt, de nombreuses particules impactent sur le substrat et toutes ne sont pas forcément bien traitées thermiquement. Il sera donc intéressant d'étudier le comportement de ces particules au moment même de l'impact. Pour ce faire, il faudra sélectionner les particules sur une trajectoire périphérique ou diminuer la puissance de la torche pour obtenir des particules dans un état semi fondu. Par ailleurs, il serait très intéressant d'observer la dynamique d'étalement de particules de taille micrométrique présentant une partie centrale nano structurée non fondue et ainsi d'améliorer la cohésion de ce type de dépôts. Mais travailler avec des particules moins chaudes est loin d'être facile car le rayonnement de ces particules est naturellement plus faible.

Ces suggestions de poursuite de travaux doivent s'accompagner d'améliorations nécessaires sur les différents montages expérimentaux:

A l'échelle micrométrique, il serait souhaitable d'augmenter :

- Le grandissement optique : Utilisation de caméras avec une sensibilité lumineuse plus importante pour étudier des particules de diamètre plus faible.

- La plage de mesure de température des particules : Utilisation de détecteurs sensibles dans l'infrarouge.

- Les possibilités de chauffage du substrat.

A l'échelle millimétrique, il serait souhaitable d'augmenter :

- La température des gouttes avant leur chute : Amélioration du contrôle de la goutte pour éviter un détachement trop prématuré.

- La vitesse d'impact de la goutte sur le substrat : Amélioration du système pneumatique pour éviter une décélération trop brutale

- La précision sur la localisation de l'impact : Meilleur contrôle des fluctuations de la goutte induites par l'arc électrique.

Cette étude originale, de par son large facteur d'échelle et son diagnostic précis composé de pyrométrie et d'imagerie rapide ($<2\mu\text{s}$) sur des microgouttes isolées et à haute température, peut ainsi être prolongée et développée pour assurer « in fine » la validité des futurs codes de calculs et la reproductibilité des dépôts par le contrôle des interfaces lamelle / substrat et lamelle / lamelle.

Annexes

Annexe 1

Composition chimique et propriétés physiques des substrats utilisés dans le cadre de cette étude.

Substrat en acier inoxydable 304 L

- *Composition chimique*

Eléments	Cr	Ni	C	Si	Cu	P	S	Mo	Al	V	Ti	Mn	Fe
% masse	18,9	9,41	0,04	0,38	0,68	0,03	0,02	0,36	0,02	0,11	0,02	1,43	Bal.

- *Propriétés physiques*

Masse volumique : 8000 kg/m³

Température de fusion 1375°C

Chaleur spécifique : 500 J.Kg⁻¹.°C⁻¹

Conductivité thermique 16,3 W.m⁻¹.K⁻¹

Substrat en alliage de titane Ti 6242

- *Composition chimique*

Eléments	Al	Sn	Zr	Mo	O2	Fe	H2	C	N2	Ti
% masse	6±0,5	2±0,2	4±0,4	2±0,2	0,15	0,25	0,0125	0,05	0,05	Bal.

- *Propriétés physiques*

Masse volumique : 4500 kg/m³

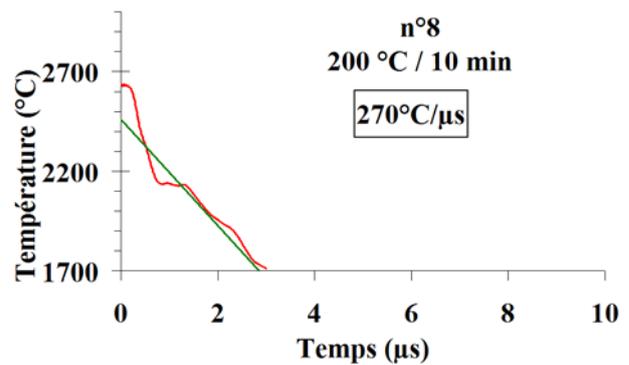
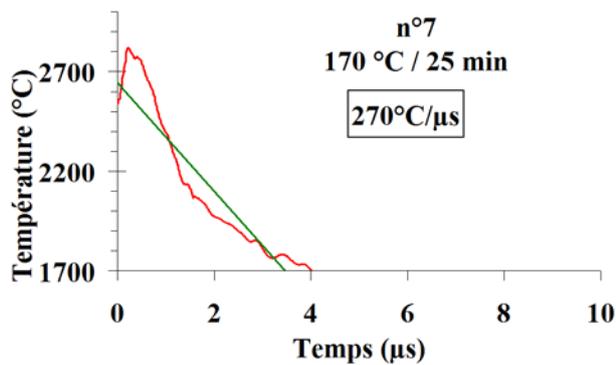
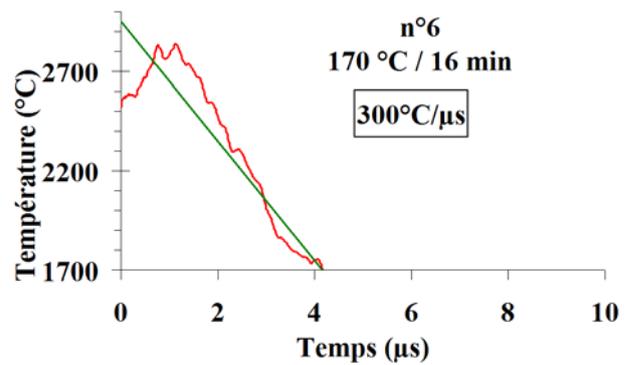
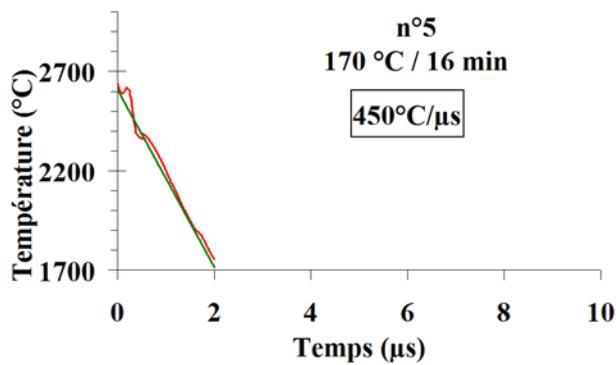
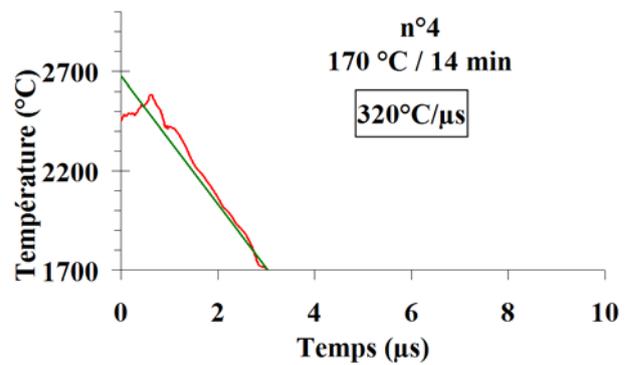
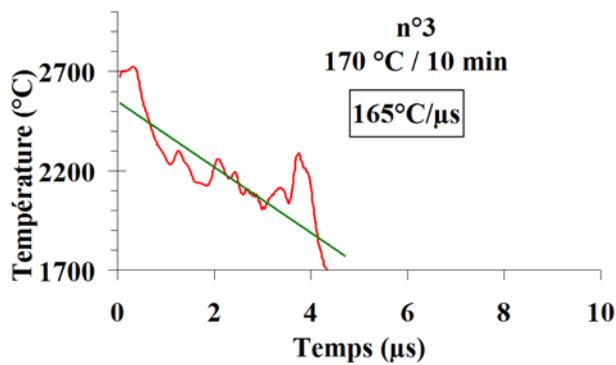
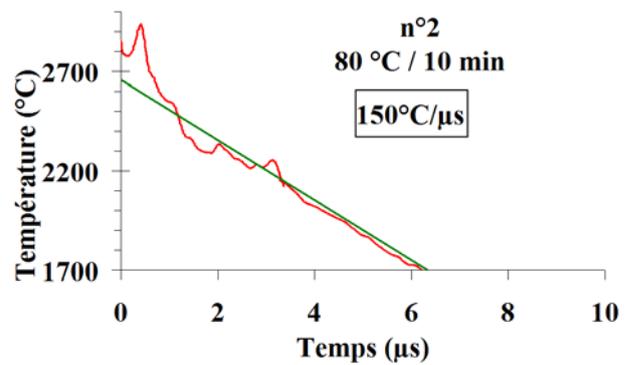
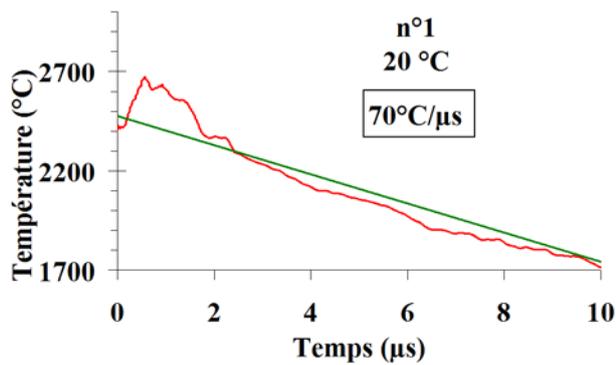
Température de fusion 1650°C

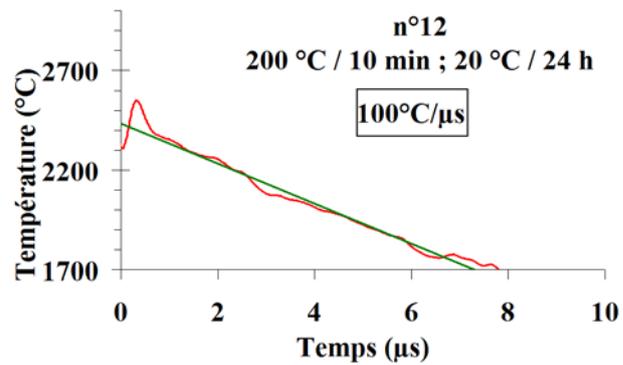
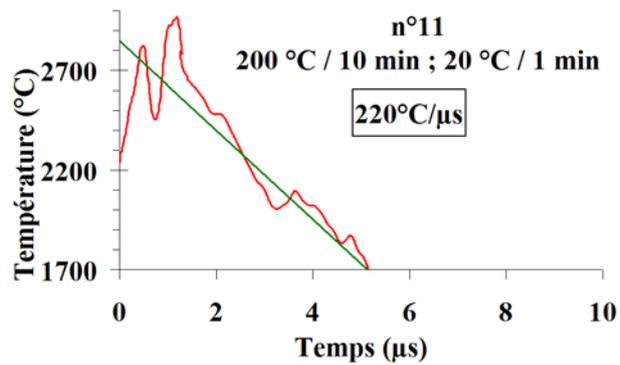
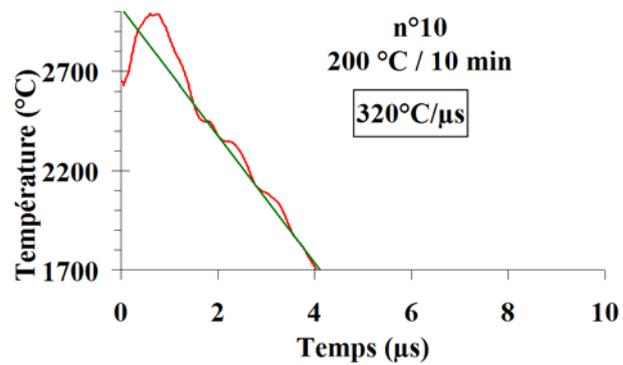
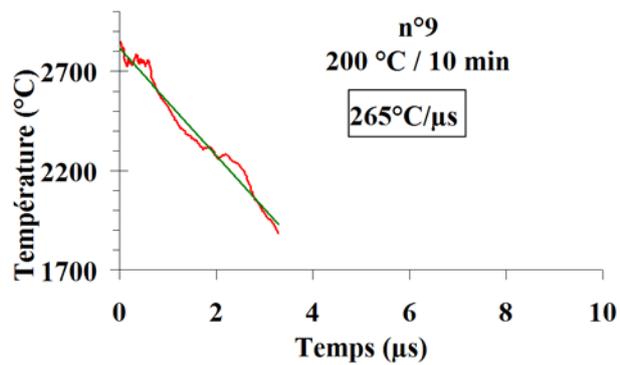
Chaleur spécifique : 420 J.Kg⁻¹.°C⁻¹

Conductivité thermique : 6 W.m⁻¹.K⁻¹

Annexe 2

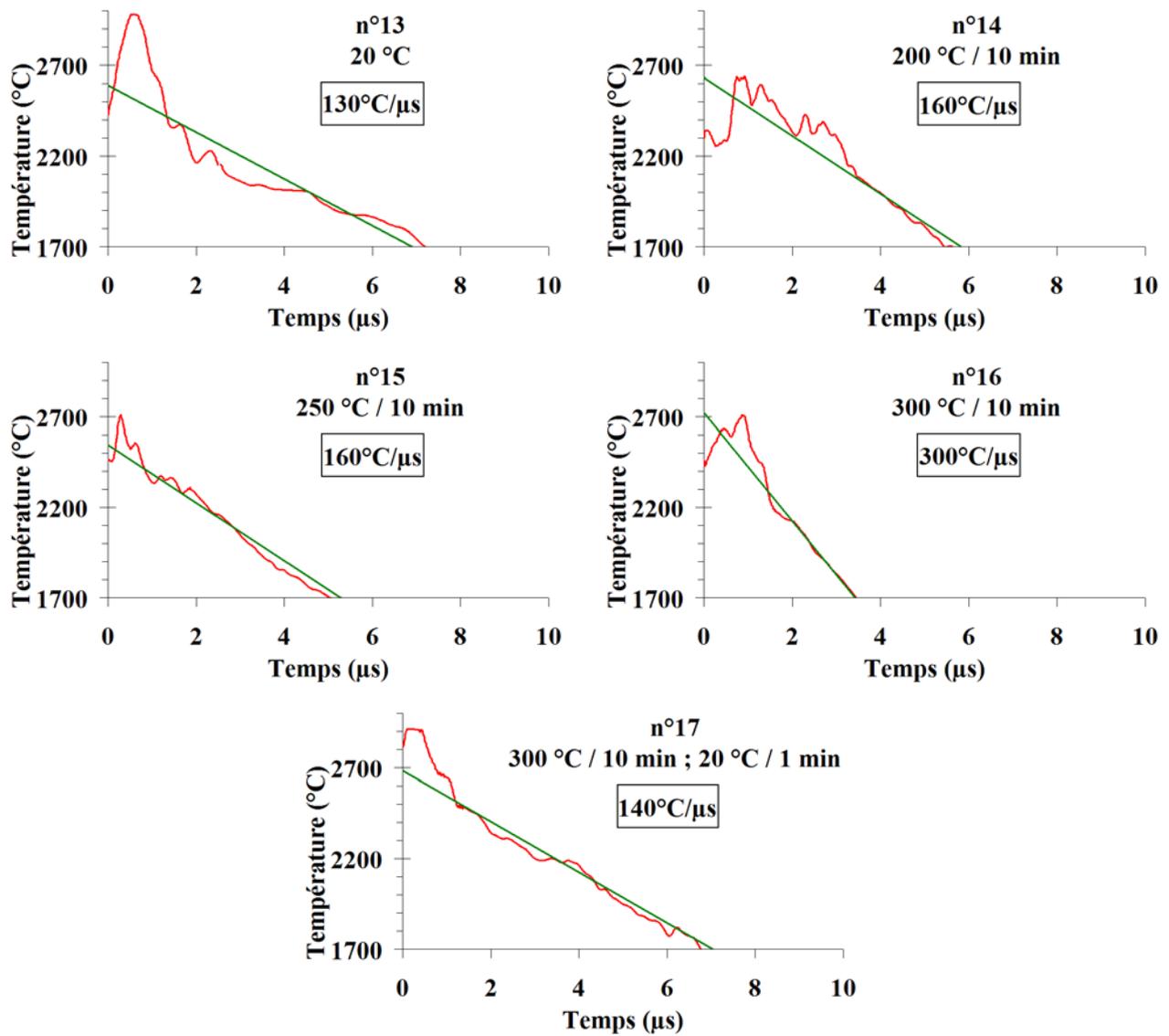
Courbes de refroidissement au cours de l'étalement d'une particule d' Al_2O_3 impactant un substrat de **304 L** chauffé dans différentes conditions, le nombre encadré correspond à la vitesse de trempe moyenne de la lamelle.





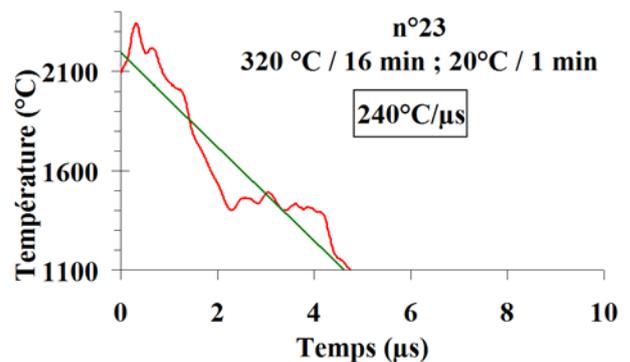
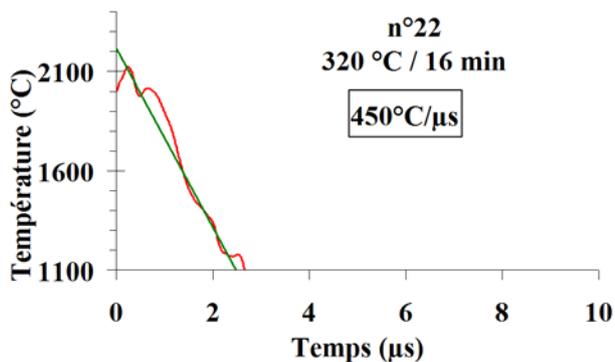
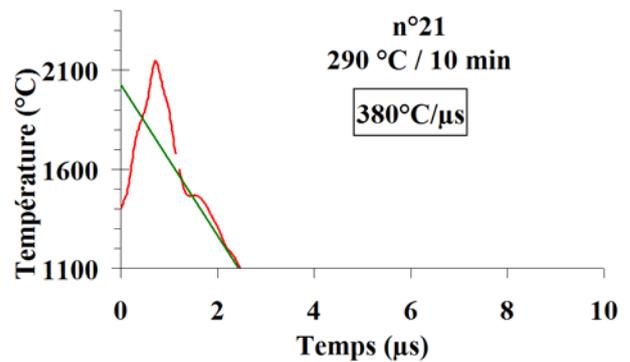
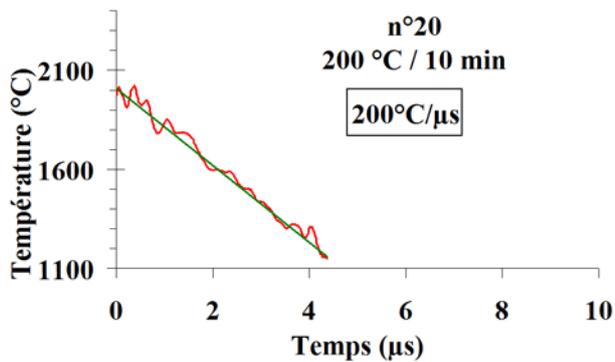
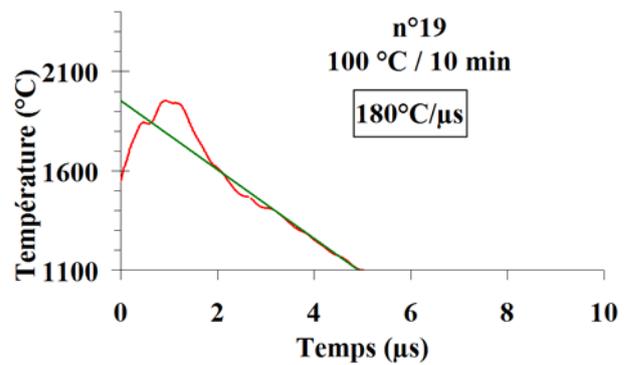
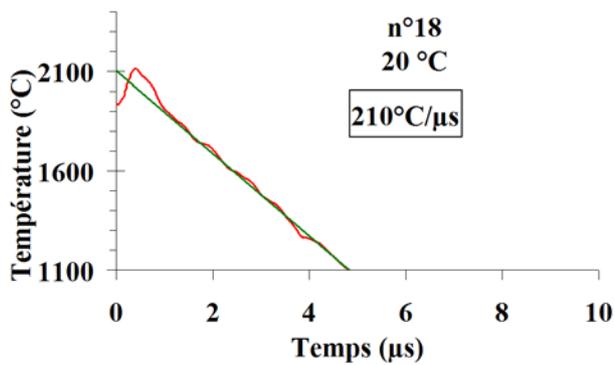
Annexe 3

Courbes de refroidissement au cours de l'étalement d'une particule d' Al_2O_3 impactant un substrat de **Ti-6242** chauffé dans différentes conditions, le nombre encadré correspond à la vitesse de trempe moyenne de la lamelle.



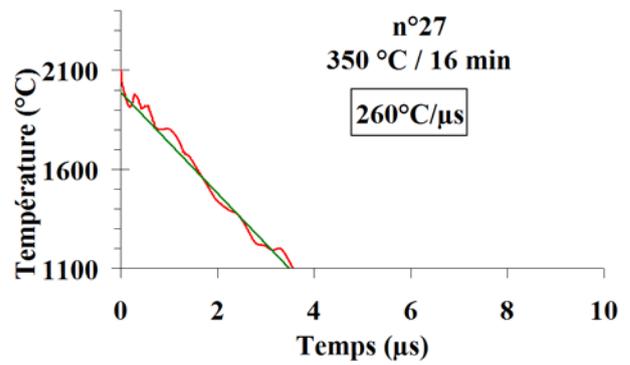
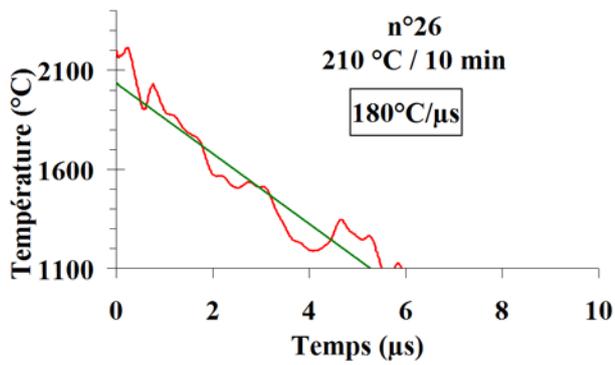
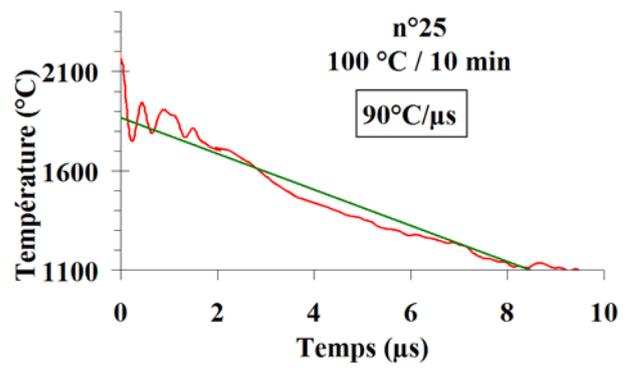
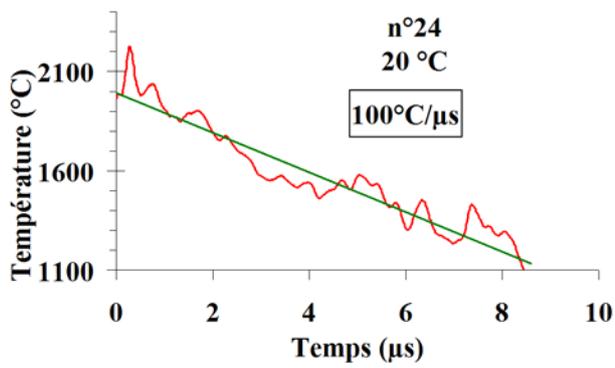
Annexe 4

Courbes de refroidissement au cours de l'étalement d'une particule d'**NiAl** impactant un substrat de **304L** chauffé dans différentes conditions, le nombre encadré correspond à la vitesse de trempe moyenne de la lamelle.



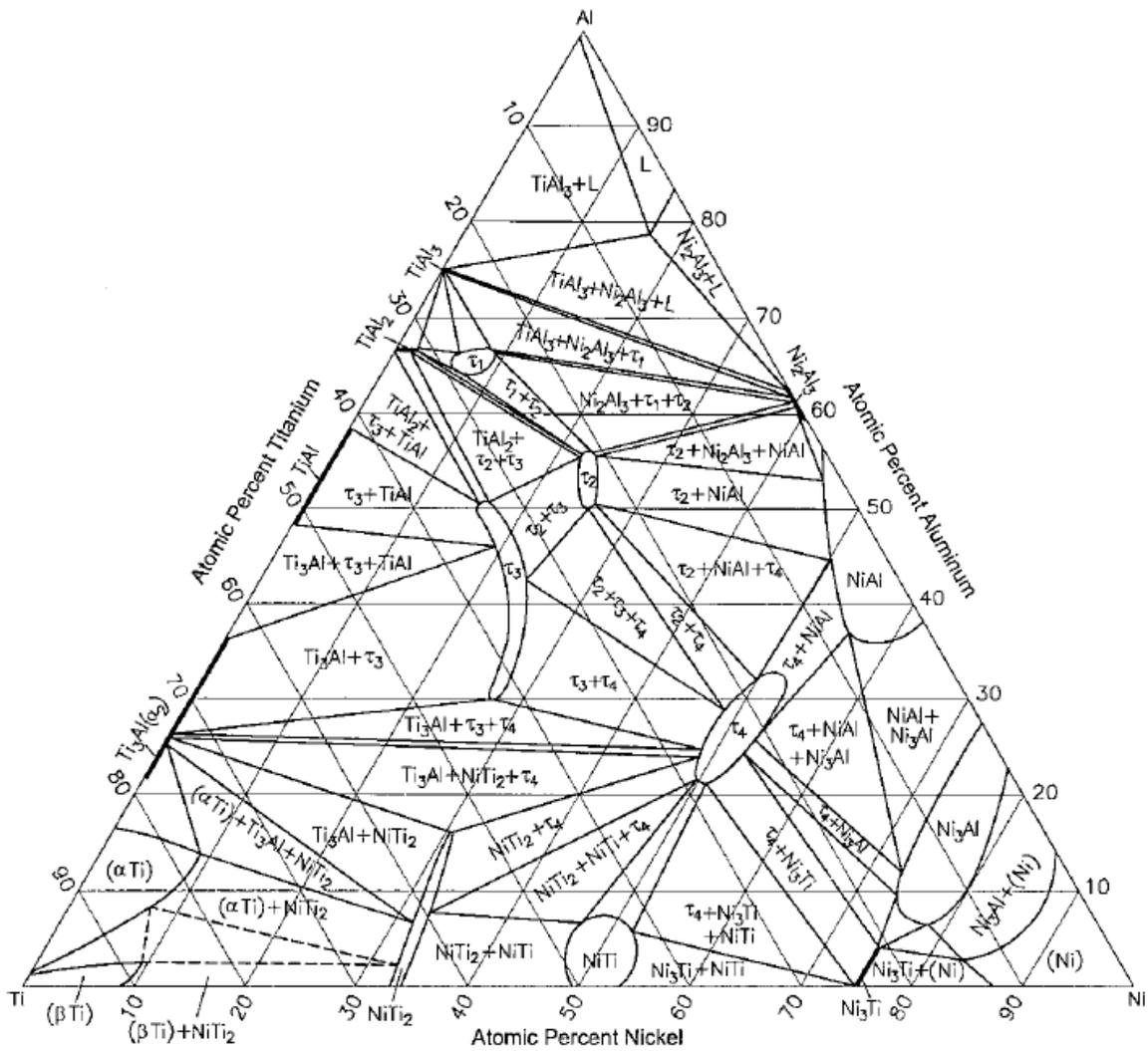
Annexe 5

Courbes de refroidissement au cours de l'étalement d'une particule d'**NiAl** impactant un substrat de **Ti-6242** chauffé dans différentes conditions, le nombre encadré correspond à la vitesse de trempe moyenne de la lamelle.



Annexe 6

Diagramme de phase ternaire des éléments Ti, Al, Ni à 900°C [187]



Références bibliographiques

- [1] **Ahmed K, McCallum D, Sheldon DF**, *Multiphase micro-drop interaction in inkjet printing of 3D structures for tactile maps*, Modern Physics Letters B. (2005), volume 19, issue 28-29, pp. 1699-1702.
- [2] **Engel Olive G**, *Waterdrop collisions with solid surfaces*, Journal of research of the national bureau of standards, (1955), volume 54, issue 5, pp. 281-298
- [3] **Van Dam D, Le Clerc C**, *Experimental study of the impact of an ink-jet printed droplet on a solid substrate*. Physics of Fluids, (2004), volume 16, pp. 3403-3414.
- [4] **Mehdizadeh N, Lamontagne M, Moreau C, Chandra S, and Mostaghimi J**, *Photographing impact of molten molybdenum particles in a plasma spray*, Journal of Thermal Spray Technology, (2005), volume 14, issue 3, pp. 354-361.
- [5] **Smith H, Levy G, and Shainberg I**, *Water-droplet energy and soil amendments: effect on infiltration and erosion*, Soil Science Society of America Journal, (1990), volume 54, pp. 1084-1087.
- [6] **Rozhkov A, Prunet-Foch B, and Vignes-Adler M**, *Impact of water drops on small targets*, Physics of Fluids, (2002), volume 14, pp. 3485-3501.
- [7] **Manzello S, Yang J**, *An experimental study of a water droplet impinging on a liquid surface*, Experiments in Fluids, (2002), volume 32, pp. 580-589.
- [8] **Kannangara D, Zhang H, and Shen W**, *Liquid-paper interactions during liquid drop impact and recoil on paper surfaces*, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, (2006), volume 280, pp. 203-215.
- [9] **Bolledula D, Berchielli A, and Aliseda A**, *Impact of a heterogeneous liquid droplet on a dry surface: Application to the pharmaceutical industry*, Advances in Colloid and Interface Science, (2010), volume 159, pp. 144-159.
- [10] **Dykhuzen R.C**, *Review of impact and solidification of molten thermal spray droplets*. Journal of Thermal Spray Technology, (1994), volume 3, issue 4, pp. 351-361.
- [11] **Dzur B and Al**, *Impact Deformation and Cooling Down of Atmospheric Introduction Plasma Sprayed Ceramic Particles and their Influence on Coating Properties*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (2001), pp. 859-863
- [12] **Fauchais P, Fukumoto M, Vardelle A, and Vardelle M**, *Knowledge concerning splat formation*, Journal of Thermal spray Technology, (2004), volume 13, issue 3, pp. 337-360
- [13] **Fauchais P, Vardelle A, Dussoubs B**, *Quo Vadis Thermal Spray*, Journal of Thermal Spray Technology, (2001), volume 10, issue 1, pp. 44-66.
- [14] **Wang Z, Kulkarni A, Deshpande S, Nakamura T, and Herman, H**, *Effects of pores and interfaces on effective properties of plasma sprayed zirconia coatings*, Acta Materialia, (2003), volume 51, issue 18, pp. 5319-5334.
- [15] **Fukumoto M, Shiiba M**, *Dependence of Thermal Sprayed Particle/substrate Interface Microstructure on Substrate Temperature*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (2003), pp. 1047-1052.
- [16] **Bianchi L, Denoirjean A, Blein F and Fauchais P**, *Microstructural investigation of plasma-sprayed ceramic splats*, Thin Solid Films, (1997), volume 299, pp. 125-135.

- [17] **Roberts K, and Clyne T**, *A simple procedure for the characterization of spray deposition processes - The linescan test*, Surface and Coatings Technology, (1990), volume 41, pp. 103-115.
- [18] **Madejski J**, *Solidification of Droplets on a Cold Surface*, Int J. Heat Mass, (1976), volume 19, pp. 1009 -1013.
- [19] **Bianchi L, Denoirjean A, Blein F, Fauchais P**, *Microstructural investigation of plasma-sprayed ceramic splats*, Thin Solid Film, (1997), volume 299, pp. 125-135.
- [20] **Pasandideh-Fard M, Pershin V, Chandra S and Mostaghimi J**, *Splat shapes in a thermal spray coating process: Simulations and experiments*, Journal of thermal spray technology, (2002), volume 11, issue 2, pp. 206-217.
- [21] **Trapaga G, Lavernia E, Grant N**, *A Mathematical Model of the Spray Deposition Process*, Metallurgical Transactions, (1989), Volume 20A, pp. 71-85.
- [22] **Thoroddsen ST, and al**, *Evolution of the Fingering Pattern of an Impacting Drop*. Journal of Physics of Fluids, (1998), volume 10, issue 6, pp. 1359-1374
- [23] **Vardelle A, Courtadon A, and Gobin D**, *Simulation of Droplet Solidification after impact under Plasma Spraying Conditions*, Eurotherm 69: Heat and Mass Transfer in Solid-Liquid Phase Change Processes, Lubljana Slovenia, (2003)
- [24] **Pasandideh-Fard M, Chandra S and Mostaghimi J**, *A three-dimensional model of droplet impact and solidification*, International Journal of Heat and Mass Transfer, (2002), volume 45, pp. 2229-2242.
- [25] **Zhao Z, Poulikakos D and Fukai J**, *Heat transfer and fluid dynamics during the collision of a liquid droplet on a substrate - I. Modeling*. International Journal of Heat and Mass Transfer, (1996), volume 39, pp. 2771-2789.
- [26] **Rioboo R, Marengo M and Tropea C**, *Time evolution of liquid drop impact onto solid, dry surfaces*, Experiments in fluids, (2002), volume 33, pp. 112-124.
- [27] **McDonald A, Xue M, Chandra S, Mostaghimi J, and Moreau C**, *Modeling fragmentation of plasma-sprayed particles impacting on a solid surface at room temperature*, Comptes rendus Mécanique, (2007), volume 335, pp. 351-356.
- [28] **Bussmann M, Chandra S, and Mostaghimi J**, *Modeling the splash of a droplet impacting a solid surface*. Physics of Fluids, (2000), volume 12, pp. 3121-3132.
- [29] **Fukumoto M, and al**, *Investigation of dominating factors on flattening behaviour of plasma sprayed ceramic particles*. Surface and Coatings Technology, (1999), volume 120-121, pp. 124-130.
- [30] **Heichal Y, Chandra S, Mostaghimi J**, *Measuring thermal contact resistance between molten aluminum droplets and a steel plate*. Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (2005)
- [31] **Worthington AM**, *On the form assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate*, Proc.R.Soc.Lond, (1876), volume 25, pp. 261-271.
- [32] **Leger AC, Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P, Sampath S, and al**, *Plasma sprayed zirconia: Relationships between particles parameters, splat formation and deposit generation. Part I: Impact and solidification*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (1996)

- [33] **Moreau C, Lamontagne M, and al**, *Influence of Substrate Preparation on the Flattening and the Cooling of Plasma-Sprayed Particles*, Journal of Thermal Spray Technology, (1995), volume 4, issue 1, pp 25-33.
- [34] **Escure C**, *Etude de l'impact de gouttes d'alumine sur une cible chaude ou un film d'alumine liquide*, Thèse, (2000), Université de Limoges, France
- [35] **Moreau C, Cielo P, Lamontagne M, Dallaire S, Krapez JC, Vardelle M**, *Temperature evolution of plasma-sprayed niobium particles impacting on a substrate*, Surface and Coatings Technology, (1991), volume 46, pp. 173-187.
- [36] **McDonald A, Chandra S, Moreau C**, *Photographing impact of plasma-sprayed particles on rough substrates*, Journal of Materials Science, (2008), volume 43, pp. 4631-4643.
- [37] **Cedelle J, Vardelle M, Fauchais P**, *Influence of stainless steel substrate preheating on surface topography and on millimeter and micrometer-sized splat formation*, Surface and Coatings Technology, (2006), volume 201, pp. 1373-1382.
- [38] **Cedelle J, Vardelle M, Pateyron B and Fauchais P**, *Investigation of plasma sprayed coatings formation by visualization of droplet impact and splashing on a smooth substrate*, Plasma Science, IEEE, (2005), volume 33, pp. 414-415.
- [39] **Cedelle J, Vardelle M, Pateyron B, and Fauchais P**, *Study of droplet behaviour at impact in plasma spraying*, High Temperature Material Processes, (2004), volume 8, pp. 353-379.
- [40] **Cedelle J, Vardelle M, Pateyron B and Fauchais P**, *Experimental investigation of the splashing processes at impact in plasma sprayed coating formation*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (2004).
- [41] **Fauchais P, Vardelle A and Dussoubs B**, *Quo Vadis thermal spraying?*, Journal of Thermal Spray Technology, (2001), volume 10, pp. 44-66.
- [42] **Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P, Li KI, Dussoubs B, Themlis NJ**, *Controlling particle injection in plasma spraying*. Journal of Thermal Spray Technology, (2001), volume 10, pp. 267-286.
- [43] **Vardelle M, Vardelle A, Dussoubs B, Fauchais P, Roemer T, Neiser RA, Smith MF**, *Influence of injector geometry on particle trajectories: Analysis of particle dynamics in the injector and plasma jet*. Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (1998).
- [44] **Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P**, *Study of the trajectories and temperatures of powders in a D.C. plasma jet: Correlation with alumina sprayed coatings*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (1983)
- [45] **De Gennes PG, Brochard W. F., Quéré D** *Gouttes, Bulles, Perles et Ondes*, livre, (2002)
- [46] **Allen R**, *The role of surface tension in splashing*, Journal of Colloid And Interface Science, (1975), volume 51, pp. 350-351.
- [47] **Mundo C, and al**, *Droplet-wall collisions : experimental studies of the deformation and break-up process*, International Journal of Multiphase Flow, (1995), volume 21, issue 2, pp 151-173.
- [48] **Kudinov VV, P. P. Y., Saffialin V.A**, *Forming of the structure of plasma- sprayed materials*, High Temp. Dust laden Jets, (1989), pp 381-410.

- [49] **Bianchi L, Léger AC, Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P**, *Splat formation and cooling of plasma-sprayed zirconia*, Thin Solid Films, (1997), volume 305, pp 35-47.
- [50] **Bianchi L, Leger A, Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P**, *Splat formation and cooling of plasma-sprayed zirconia*, Thin Solid Films, (1997), volume 305, pp. 35-47.
- [51] **Bianchi L, Grimaud A, Blein F, Lucchese P, Fauchais P**, *Comparison of plasma-sprayed alumina coatings by RF and DC plasma spraying*, Journal of thermal spray technology (1995), volume 4, pp. 59-66.
- [52] **Vardelle M, Vardelle A, Leger A, Fauchais P, Gobin D**, *Influence of particle parameters at impact on splat formation and solidification in plasma spraying processes*, Journal of thermal spray technology, (1995), volume 4, issue 1, pp. 50-58.
- [53] **Escure C, Vardelle M, and Fauchais P**, *Experimental and Theoretical study of the impact of alumina droplet on cold and hot substrates*. Plasma Chem. Plasma Process, (2003), volume 23, issue 2, pp. 185-221
- [54] **Escure C, Vardelle M, Fauchais P**, *Experimental and Theoretical Study of the Impact of Alumina Droplets on Cold and Hot Substrates*, Plasma Chem. Plasma Process, (2003), volume 23, pp. 185-221.
- [55] **Escure C, Vardelle M, Vardelle A, Fauchais P**, *Visualization of the Impact of Drops on a Substrate in Plasma Spraying: Deposition and Splashing Modes*, Proceedings of the international thermal spray conferences, (2001)
- [56] **Escure C, Vardelle M, Fauchais P, Grimaud A**, *Visualization of Particle Impact in Thermal Spray*, Proceedings of the international thermal spray conferences, (2000)
- [57] **McDonald A, Moreau C, Chandra S**, *Effect of substrate oxidation on spreading of plasma-sprayed nickel on stainless steel*, Surface & Coatings Technology, (2007), volume 202, pp. 23-33.
- [58] **McDonald A, Lamontagne M, Moreau C, Chandra S**, *Impact of plasma-sprayed metal particles on hot and cold glass surfaces*, Thin Solid Films, (2006), volume 514, pp. 212-222.
- [59] **McDonald A, Lamontagne M, Chandra S, Moreau C**, *Photographing impact of plasma-sprayed particles on metal substrates*, Journal of thermal spray technology, (2006), volume 15, pp. 708-716.
- [60] **Fukumoto M, Nishioka E, Matsubara T**, *Effect of substrate temperature on flattening and solidification of freely fallen metal droplet*, Welding Research Abroad, (1999), volume 17, pp. 243-250.
- [61] **Ghafouri A, Yang Z, Chandra S**, *Impact of molten metal droplets on the tip of a pin projecting from a flat surface*, International journal of heat and fluid flow, (2005), volume 26, pp. 334-347.
- [62] **Sivakumar D, Nishiyama H**, *Numerical analysis on the impact behaviour of molten metal droplets using a modified splat quench solidification model*, Journal of heat transfer, (2004), volume 126, pp. 1014-1022
- [63] **Fukumoto M, Nishioka E, Matsubara T**, *Effect of interface wetting on flattening of freely fallen metal droplet onto flat substrate surface*, Journal of Thermal Spray Technology, (2002), volume 11, issue 1, pp. 69-74.

- [64] **Mehdizadeh N, Raessi M, Chandra S, Mostaghimi J**, *Effect of substrate temperature on splashing molten tin droplets*, Journal of Heat Transfer, (2004), volume 126, pp. 445-452.
- [65] **Fukumoto M, Nishioka E, Matsubara T**, *Flattening and solidification behavior of a metal droplet on a flat substrate surface held at various temperatures*, Surface and Coatings Technology, (1999), volume 120-121, pp. 131-137.
- [66] **Houben JM**, *Relation of the adhesion of plasma sprayed coatings to the process parameters: size, velocity and heat content of the spray particle*, Thesis, (1988), Eindhoven University.
- [67] **Pasandideh-Fard S, Chandra S, Mostaghimi J**, *Capillarity effect during droplet impact on a solid surface*, Physics of Fluids, (1996), pp. 650-660
- [68] **Vardelle A, Vardelle M, Fauchais P**, *Influence of velocity and surface temperature of alumina particles on the properties of plasma sprayed coatings*, Plasma Chemistry and Plasma Processing, (1982), volume 2, pp. 255-291.
- [69] **Syed A, Denoirjean A, Hannoyer B, Fauchais P, Denoirjean P, Khan AA, Labbe JC**, *Influence of substrate surface conditions on the plasma sprayed ceramic and metallic particles flattening*, Surface & Coatings Technology, (2005), volume 200, pp. 2317-2331.
- [70] **Syed A, Denoirjean A, Denoirjean P, Labbe JC, Fauchais P**, *Investigation of phenomena influencing properties of plasma sprayed ceramic-metal composite deposits*, High Temperature Material Processes, (2004), volume 8, pp. 253-272.
- [71] **Syed A, Denoirjean P, Denoirjean A, Labbe JC, Fauchais P**, *Influence of substrate surface oxidation stage on the morphology and flattening of splats*, High Temperature Material Processes, (2003), volume 7, pp. 195-203.
- [72] **Li C, Li J, Wang W, Ohmori A, Tani K**, *Effect of particle-substrate materials combinations on morphology of plasma sprayed splats*. Proceedings of the international thermal spray conference, (1998)
- [73] **Jiang X, Matejcek J, Sampath S**, *Substrate temperature effects on the splat formation, microstructure development and properties of plasma sprayed coatings: Part II: case study for molybdenum*, Materials Science and Engineering A, (1999), volume 272, pp. 189-198.
- [74] **Rioboo R, Bauthier C, Conti J, and al**, *Experimental investigation of splash and crown formation during single drop impact on wetted surfaces*, Experiments in Fluids, (2003), volume 35, pp. 648-652.
- [75] **Pershin V, Pasandideh-Fard M, Mostaghimi J, Chandra S**, *Effect of Substrate Properties on the Formation of Plasma Sprayed Alumina Splats*. Proceedings of the international thermal spray conferences, (2001)
- [76] **Kim H, Chun J**, *The recoiling of liquid droplets upon collision with solid surfaces*. Physics of Fluids, (2001), volume 13, pp. 643-659
- [77] **Jiang X, W. Y, Herman H, Sampath S**, *Role of condensates and absorbates on substrate surface on fragmentation of impinging molten droplets during thermal spray*, Thin solid Films, (2001), volume 385, issue 1-2, pp 132-141

- [78] **Li CJ, L. J. L., Wang WB**, *The effect of substrate preheating and surface organic covering on splat formation*, Proceedings of the international thermal spray conferences, (1998)
- [79] **Morks M, Tsunekawa Y, Okumiya M, Shoeib MA**, *Splat microstructure of plasma sprayed cast iron with different chamber pressures*, Journal of thermal spray technology, (2003), volume 12, pp. 282-289.
- [80] **Mehdi-Nejad V, Mostaghimi J, Chandra S**, *Air bubble entrapment under an impacting droplet*, Physics of Fluids, (2003), volume 15, pp. 173-183.
- [81] **Li CJ, Li JL**, *Evaporated-gas-induced splashing model for splat formation during plasma spraying*, Surface and Coatings Technology, (2004), volume 184, pp. 13-23.
- [82] **Sobolev V, Guilemany JM, Martin AJ**, *Influence of surface roughness on the flattening of powder particles during thermal spraying*, Journal of thermal spray technology (1996), volume 5, pp. 207-214.
- [83] **Wang G, Prasad V, Sampath S**, *Rapid solidification in thermal spray deposition: Microstructure and modelling*, Sadhana, (2001), volume 26, pp. 35-57.
- [84] **Pasandideh-Fard M, Mostaghimi J**, *On the spreading and solidification of molten particles in a plasma spray process: Effect of thermal contact resistance*, Plasma Chemistry and plasma Processing, (1996), volume 16, pp. 83S-98S
- [85] **McDonald A, Moreau C, Chandra S**, *Thermal contact resistance between plasma-sprayed particles and flat surfaces*, International Journal of Heat and mass transfer, (2007), volume 50, pp. 1737-1749.
- [86] **Fukumoto M., O. I., Shiiba M, and Yasui T**, *Effect of substrate surface change by heating on transition in flattening behavior of thermal sprayed particles*, Proceedings of the international thermal spray conferences, (2004)
- [87] **Pech J, Hannoyer B**, *Influence of oxide layer promoted by d.c. plasma preheating on the adhesion coating and role of the initial surface pre-treatment*, Surface and Interface Analysis, (2000), volume 30, pp 585-588.
- [88] **Maître A, Denoirjean A, Fauchais P, Lefort P**, *Plasma jet coating of preoxidized XC38 steel: influence of the nature of oxide layer*, Physical Chemistry Chemical Physics, (2002), volume 4, issue 15, pp. 3887-3893.
- [89] **Espié G**, *Oxydation de particules de fer dans un plasma d'arc Ar-H₂; Influence sur les propriétés du dépôt*, (2000), thèse, Université de Limoges.
- [90] **Espie G, Denoirjean A, Fauchais P, Labbe J, Dubsky J, Schneeweiss O, Volenik K**, *In-flight oxidation of iron particles sprayed using gas and water stabilized plasma torch*, Surface and Coatings Technology, (2005), volume 195, pp. 17-28.
- [91] **Espie G, Fauchais P, Hannoyer B & Labbe, JC & Vardelle, A.** *Effect of metal particles oxidation during the APS on the wettability*, Annals New York Academy of Sciences, (1999), volume 891, pp. 143-151.
- [92] **Espie L, Drevet B, Eustathopoulos N**, *Experimental study of the influence of interfacial energies and reactivity on wetting in metal/oxide systems*, Metallurgical and Materials Transactions A, (1994), volume 25A, pp. 599-605.
- [93] **Syed A, Denoirjean A, Fauchais P, Labbe JC**, *On the oxidation of stainless steel particles in the plasma jet*, Surface and Coatings Technology, (2006), volume 200, pp. 4368-4382.

- [94] **Sobolev VV, Guilemany JM**, *Effect of oxidation on droplet flattening and splat-substrate interaction in thermal spraying*, Journal of thermal spray technology, (1999), volume 8, issue 4, pp. 523-530.
- [95] **Morks MF, Tsunekawa Y, Okumiya M**, *Characterization and properties of splats sprayed with different cast iron powders*, Materials Letters, (2004), volume 58, pp. 2481-2485.
- [96] **Sobolev VV, Guilemany JM**, *Influence of oxidation on coating formation in thermal spraying*, Journal of Materials Processing and Manufacturing Science, (1999), volume 7, pp. 271-286.
- [97] **Sobolev V V, Guilemany J M**, *Oxidation of coatings in thermal spraying*. Materials Letters, (1998), volume 37, pp. 231-235.
- [98] **Armster SQ, D. JP, Rein M, and Lavernia EJ**, *Thermo-fluid mechanisms controlling droplet based materials processes*, International Materials Reviews, (2002), volume 47, issue 6, pp. 265-304.
- [99] **Fantassi S, Vardelle M, Vardelle A, and Fauchais P**, *Influence of the Velocity of Plasma Sprayed Particles on Splat Formation*, Journal of Thermal Spray Technology, (1993), volume 2, issue 4, pp. 379-384.
- [100] **Fukumoto M, N. E, Nishiyama T**, *New criterion for splashing in flattening of thermal sprayed particles onto flat substrate surface*, Surface and Coatings Technology, (2002), volume 161, pp. 103-110.
- [101] **Kim H.Y., F. ZC, and Chun GH**, *Instability of a liquid jet emerging from a droplet upon collision with a solid surface*, Physics of Fluids, (2000), volume 12, issue 3, pp. 531-541.
- [102] **Schiaffino S., S. A. A.**, *Molten droplet deposition and solidification at low Weber numbers*, Physics of Fluids, (1997), volume 9, pp. 3172-3187.
- [103] **Stout J., K. T. G.** (1977). "*Analytical Techniques in Surface Topography and Their Application to a Running-in Experiment.*", Wear, (1977), volume 43, pp. 99-115.
- [104] **Young T.** (1805). Philos. Trans. R. Soc.95. 65.
- [105] **Werner S, Jones J, Paterson A, Archer RH, Pearce DL**, *Droplet impact and spreading: Droplet formulation effects*, Chemical Engineering Science (2007), volume 62, pp. 2336-2345.
- [106] **Wang W, Qiu HH, Cheng P**, *Deformation and solidification of droplet impact with variable thermal contact resistance*, Summer heat transfer conference, (2003)
- [107] **Wan Y, Zhang H, Jiang X, Sampath S, Prasad V**, *Role of solidification, substrate temperature and reynolds number of droplet spreading in thermal spray deposition: Measurements and modeling*, Journal of heat transfer, (2001), volume 123, pp. 382-389.
- [108] **Syed A, Denoirjean A, Denoirjean P, Labbe JC, Fauchais P**, *Influence of plasma spraying parameters on the in-flight oxidation of stainless steel particles*, In Proceedings of the international thermal spray conference, (2004)
- [109] **Sobolev VV, Guilemany JM**, *Effect of wave processes on splat formation during thermal spraying*, Materials Letters, (2000), volume 42, pp. 321-325.

- [110] **Sobolev VV, Guilemany JM**, *Influence of wetting and surface effects on splat formation during thermal spraying*, Materials Letters, (1998), volume 37, pp. 132-137.
- [111] **Sobolev VV, Guilemany JM**, *Influence of solidification on the flattening of droplets during thermal spraying*, Materials Letters, (1996), volume 28, pp. 71-75.
- [112] **Robert C, Vardelle A, Wang G, Jiang XY, Sampath S**, *Microstructure development during plasma spraying of molybdenum part 1: Splat solidification*. Proceedings of the international thermal spray conference, (1998)
- [113] **Robert C, Vardelle A, Gobin D, Fauchais P**, *Modeling of rapid solidification in plasma spray deposition*, High Temperature Material Processes, (1998), volume 2, pp. 225-244.
- [114] **Bayer Ilker S, Megaridid CM**, *Contact angle dynamics in droplets impacting on flat surfaces with different wetting characteristics*, Journal fluid Mech, (2006), volume 558, pp. 415-449
- [115] **Yarin AL**, *Drop impact dynamics: Splashing, Spreading, Receding, Bouncing...*, Annu Rev Fluid Mech, (2006), volume 38, pp 159-192.
- [116] **Dhiman R, Chandra S**, *Freezing-induced splashing during impact of molten metal droplets with high weber numbers*, International journal of heat and mass transfer, (2005), volume 48, pp 5625-5638.
- [117] **Shinoda K, Murakami H and al**, *High-speed thermal imaging of yttria-stabilized zirconia droplets impinging on a substrate in plasma spraying*, Applied Physics Letters, (2007), volume 90, pp 194103-1 / 3.
- [118] **Salimijazi HR, Pershin L, and al**, *Effect of droplet characteristics and substrate surface topography on the final morphology of plasma-sprayed zirconia single splats*, Journal of thermal spray Technology, (2007), volume 16, issue 2, pp 291-299
- [119] **Wu Y, Qu M, Giannuzzi LA, and al**, *Focused ion beam study of Ni5Al single splat microstructure*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., (2007), volume 983, pp 1-5
- [120] **Tanaka Y, Fukumoto M**, *Investigation of dominating factors on flattening behaviour of plasma sprayed ceramic particles*, Surface and coatings technology, (1999), volume 120-121, pp 124-130
- [121] **Brossard S, Munroe PR, Tran ATT, Hyland MM**, *Study of the effects of surface chemistry on splat formation for plasma sprayed NiCr onto stainless steel substrates*, Surface and Coatings Technology, (2010), volume 204, pp 1599-1607
- [122] **Brossard S, Munroe PR, Tran ATT, Hyland MM**, *Study of the microstructure of NiCr splats plasma sprayed on to stainless steel substrates by TEM*, Surface and Coatings Technology, (2010), volume 204, pp 1608-1615
- [123] **Tran ATT and Hyland MM**, *The role of substrate surface chemistry on splat formation during plasma spray deposition by experiments and simulations*, Journal of Thermal Spray Technology, (2010), volume 19, issue 1-2, pp 11-23
- [124] **Tran ATT, Hyland MM, and al**, *Effects of surface chemistry on splat formation during plasma spraying*, Journal of thermal spray technology, (2007), volume 17, issue 5-6, pp 637-645
- [125] **Klement U, Yao Y, and Chen LY**, *Characterization of single splats produced by plasma spraying*, Chalmers University of Technology, 41296 Gothenburg, Sweden, uta.klement@chalmers.se.

- [126] **Paredes RSC, Amico SC, and al**, *The effect of roughness and preheating of the substrate on the morphology of aluminum coatings deposited by thermal spraying*, Surface and Coatings Technology, (2005), volume 200, pp 3049-3055
- [127] **Wang W, Lambert R A and al**, *Parametric study of multi-splat solidification / remelting including contact resistance effects*, International journal of heat and mass transfer, (2008), volume 51, pp 4811-4819
- [128] **Qu M, Gouldstone A**, *On the role of bubbles in metallic splat nanopores and adhesion*, Journal of Thermal Spray Technology, (2008), volume 17, pp 486 – 494
- [129] **Bogaard RH, Desai PD, and al**, *Thermophysical properties of stainless steels*, Thermochemica Acta, (1993), volume 218, pp 373 – 393
- [130] **Valette S, Troliard G, and al**, *Iron Wustite magnetite alumina relation ships in plasma coated steel: a TEM study*, Solid State Ionics, (2007), volume 178, pp 429-437
- [131] **Dong H, Carr Wallace W, Morris JF**, *Visualisation of drop on demand inkjet: drop formation and deposition*, Review of Scientific Instruments, (2006), volume 77, 085101
- [132] **Dhiman R, McDonald AG, Chandra S**, *Predicting splat morphology in a thermal spray process*, Surface and Coating technology, (2007), volume 201, pp 7789-7801
- [133] **Xue M, Chandra S, Mostaghimi J**, *Investigation of splat curling up in thermal spray coatings*, Journal of Thermal Spray Technology (2006), volume 15, pp 531-536
- [134] **Nagashio K, Kodaira K, Kuribayashi K, and al**, *Spreading and solidification of a highly undercooled γ -Al₂O₃ droplet impinging on a substrate*, International journal of heat and mass transfer, (2008), volume 51, pp 2455-2461
- [135] **Amada S, Ohyagi T, Haruyama M**, *Wettability effect on the flattening ratio of molten metal droplets*, Surface and Coatings Technology, (2001), Volume 138, pp 211-219
- [136] **Yang W**, *Theory on vaporization and combustion of liquid drops of pure substances and binary mixtures on heated surfaces*, Institute of Space and Aeronautical Science, University of Tokyo Report No. 535, (1975), pp 423-455
- [137] **Ukiwe C, Kwok DY**, *On the maximum spreading diameter of impacting droplets on well-prepared solid surfaces*, Langmuir, (2005), Volume 21, pp 666-673
- [138] **Mao T, Kuhn DCS, Tran H**, *Spread and Rebound of Liquid Droplets upon Impact on Flat Surfaces*, AIChE Journal, (1997), volume 43, pp. 2169-2179.
- [139] **Collings E, Markworth A, McCoy JK, and Saunders JH**, *Splat-quench solidification of freely falling liquid-metal drops by impact on a planar substrate*, Journal of materials sciences, (1990), volume 25, pp. 3677-3682.
- [140] **Chandra S and Avedisian CT**, *On the collision of a droplet with a solid surface*, Proc. R. Soc. Lond. A, (1991), volume 432, pp. 13-41.
- [141] **Jones H**, *Cooling, freezing and substrate impact of droplets formed by rotary atomization*, J. Phys. D: Appl. Phys., (1971), volume 4, pp. 1657-1660.
- [142] **Pasandideh-Fard M, Qiao Y, Chandra S, and Mostaghimi J**, *Capillary effects during droplet impact on a solid surface*. Phys. Fluids, (1996), volume 8, pp. 650-659.

- [143] **Dussoubs B, Vardelle A, Gobin D, Fauchais P**, *Solidification et refroidissement d'une gouttelette projeté par plasma : détermination de la vitesse de trempe*, Congrès Français de Thermique, SFT96, (1996), pp 361-366
- [144] **Aigle C, Clanet C, Provansal M**, *Etude expérimentale de la dissipation d'énergie lors de l'impact d'une goutte sur une surface solide*, Congrès Français de Thermique, (1998), pp 353-358
- [145] **Fukumoto M, Yamaguchi T, Yamada M, Yasui T**, *Splash Splat to Disk Splat Transition Behavior in Plasma-Sprayed Metallic Materials*, Journal of Thermal Spray Technology, (2007), volume 16, issue (5-6), pp 905-912
- [146] **Robert C, Vardelle A, Fauchais P, Gobin D**, *Etude numérique de la solidification et de l'oxydation de particules métalliques projetées par plasma après leur impact sur un substrat*, SFT 96, (1996), pp 209-214
- [147] **Gobin D, Bejan A**, *Dynamique d'étalement de gouttelettes : transition déposition-éclatement*, Congrès Français de Thermique, SFT 2006, Ile de Ré, 16-19 mai 2006, pp 155-160
- [148] **Bahbou MF, Nylen P**, *On line Measurement of Plasma-Sprayed Ni-Particles during Impact on a Ti-Surface : Influence of Surface Oxidation*, Journal of thermal spray technology, (2007), volume 16, issue 4, pp 506-511
- [149] **Christoulis DK, Pantelis DI, De Dave-Fabrègue N, Borit F, Guipont V, Jeandin M**, *Effect of substrate temperature and roughness on the solidification of copper plasma sprayed droplets*, Materials Science and Engineering A, (2008), Volume 485, pp 119-129
- [150] **Hofmeister W, and al**, *Observation of thermal profiles during impact and solidification of nickel droplets*, The minerals Metals and Materials Society, (1998), pp 375-387
- [151] **Wang GX, Matthys EF**, *Modelling of Heat Transfer and Solidification during Splat Cooling: Effect of Splat Thickness and Splat/Substrate Thermal Contact*, International Journal of Rapid Solidification, (1991), volume 6, pp 141-174
- [152] **Redon C, Brochard-Wyart F, Rondelez F**, *Dynamics of Dewetting*, Physical Review Letters, (1991), volume 66, number 6, pp 715-718
- [153] **Deevi SC, Sikka VK, Swindeman CJ, Seals RD**, *Reactive Spraying of Nickel-Aluminide Coatings*, Journal of Thermal Spray Technology, (1997), Volume 6, issue 3, pp 335-344
- [154] **Zeng Z, Kuroda S, Era H**, *Comparison of oxidation behavior of Ni-20Cr alloy and Ni-base self-fluxing alloy during air plasma spraying*, Surface and Coatings Technology, (2009), volume 204, pp 69-77
- [155] **Volenik K, Ctibor P, Dubsky J, Chraska P**, *Oxidation of nickel during plasma spraying and some properties of nickel oxide*, Czechoslovak Journal of Physics, (2004), Volume 54, pp c889-c895
- [156] **Li L, Kharas B, Zhang H, Sampath S**, *Suppression of crystallization during high velocity impact quenching of alumina droplets : Observations and characterization*, Materials Science and Engineering A, (2007), volume 456, pp 35-42
- [157] **Burden MH, Jones H**, *Determination of cooling rate in splat cooling from scale of microstructure*, Journal of the institute of metals, (1970), volume 98, pp 249-252

- [158] **Raessi M, Mostaghimi , Bussmann M**, *Effect of surface roughness on splat shapes in the plasma spray coating process*, Thin Solid Films, (2006), volume 506-507, pp 133-135
- [159] **Friis M, Persson C, Wigren J**, *Influence of particle in-flight characteristics on the microstructure of atmospheric plasma sprayed yttria stabilized ZrO₂*, Surface and Coatings Technology, (2001), Volume 141, pp 115-127
- [160] **Li H, Costil S, Liao HL, Li CJ., Planche M, Coddet C**, *Effects of surface conditions on the flattening behaviour of plasma sprayed Cu splats*, Surface and Coatings Technology, (2006), volume 200, pp 5435-5446
- [161] **Sampath S, Jiang XY, Matejicek J, Prchlik L, Kulkarni A, Vaidya A**, *Role of thermal spray processing method on the microstructure, residual stress and properties of coatings: an integrated study for Ni-5 wt.%Al bond coats*, Materials Science and Engineering, (2004), volume A364, pp 216-231
- [162] **Shinoda K, Yamada A, Kambara M, Kojima Y, and Yoshida T**, *Deformation of Alumina Droplets on Micro-Patterned Substrates Under Plasma Spraying Conditions*, Journal of thermal Spray Technology, (2007), volume 16, issue 2, pp 300-305
- [163] **Liu H, Lavernia EJ, and al**, *Deformation and interaction behaviour of molten droplets impinging on a flat substrate in plasma spray process*, Proceedings of the National Thermal Spray Conference, (1993), pp 457-462
- [164] **Costil S, Liao H, Gammoudi A, Coddet C**, *Influence of Surface Laser Cleaning Combined with Substrate Preheating on the Splat Morphology*, Journal of Thermal Spray Technology, (2005), volume 14, issue 1, pp 31-38
- [165] **Dhiman R, Chandra S**, *Effect of substrate temperature on splashing of molten metal droplets*, Proceedings of HT-FED04 2004 ASME Heat Transfer/Fluids Engineering Summer Conference, (2004), pp 71-78
- [166] **Mehdizadeh NZ, Chandra S, Mostaghimi J**, *Splashing of a small molten tin droplet impinging on a solid surface at high velocity*, , Proceedings of NHTC'01 35th National Heat Transfer Conference, (2001), pp 503-510
- [167] **Vardelle M, Léger AC, Vardelle A, Fauchais P**, *Nouveau dispositif expérimental pour l'étude de l'impact de particules projetées par plasma*, SFT 96, (1996), pp 215-220
- [168] **Glorieux B, Rifflet JC, Pulvin C, Millot F, Coutures JP**, *Propriétés thermophysiques de l'alumine liquide*, Note Technique, NT1-PhC-ASSM6, (1997), 8 pages.
- [169] **Li CJ, Li CX, Yang GJ, Wang YY**, *Examination of substrate Surface Melting-Induced Splashing During Splat Formation in Plasma Spraying*, Journal of thermal spray technology, (2006), volume 15, issue 4, pp 717-724
- [170] **Fukumoto M, Nagai H, Yasui T**, *Influence of surface character change of substrate due to heating on flattening behaviour of thermal sprayed particle*, Proceedings of the International Thermal Spray Conference, (2006)
- [171] **Christoulis DK, Pantelis DI, Borit F, Guipont V, Jeandin M**, *Effect of substrate Roughness and temperature on splat formation in plasma sprayed aluminium bronze*, Surface Modification Technologies, (2006), volume XVIII, pp 73-83

- [172] **Chandra S, Fauchais P**, *Formation of solid splats during thermal spray deposition*, Journal of thermal spray technology, (2009), volume 18, issue 2, pp 148-180
- [173] **Liu W, Wang G, Matthys E**, *Thermal analysis and measurements for a molten metal drop impacting on a substrate: cooling, solidification and heat transfer coefficients*, International Journal of Heat and Mass Transfer, (1995), volume 38, issue 38, pp 1387-1395
- [174] **Wang GX and Matthys EF**, *Experimental determination of the interfacial heat transfer during cooling and solidification of molten metal droplets impacting on a metallic substrate: effect of roughness and superheat*, International Journal of Heat and Mass transfer, (2002), volume 45, issue 25, pp 4967-4981
- [175] **Wang GX and Matthys EF**, *Modeling of nonequilibrium surface melting and resolidification for pure metals and binary alloys*, Journal Heat Transfer, (1996), volume 6, issue 2, pp 944-951
- [176] **Wang SP, Wang GX, and Matthys EF**, *Melting and resolidification of a substrate in contact with a molten metal: operational maps.*, International Journal of Heat and Mass transfer, (1998), volume 41, issue 10, pp 1177-1188
- [177] **Wang XY, Zhang H, Zheng LL, and Sampath S**, *An integrated model for interaction between melt flow and non-equilibrium solidification in thermal spraying*, International Journal of Heat and Mass Transfer, (2002), volume 45, issue 11, pp 2289-2301
- [178] **Gougeon P, Moreau C**, *Simultaneous independent measurement of splat diameter and cooling time during impact on a substrate of plasma-sprayed molybdenum particles*, Journal of Thermal Spray Technology, (2001), volume 10, pp 76-82
- [179] **Heichal Y, Chandra S**, *Predicting thermal contact resistance between molten metal droplets and a solid surface*, Journal of Heat Transfer, (2005), volume 127, pp 1269-1275
- [180] **Moreau C, Cielo P, Lamontagne M, Dallaire S, Vardelle M**, *Impacting particle temperature monitoring during plasma spray deposition*, Measurement Science and Technology, (1990), volume 1, pp 807-814
- [181] **Cedelle J**, *Etude de la formation de lamelles résultant de l'impact de gouttes millimétrique et micrométrique : application à la réalisation d'un dépôt par projection plasma*, Thèse, 2005, Université de Limoges, France.
- [182] **Shirley DA**, *High-resolution X-ray photoemission spectrum of the valence bands of gold*, Phys. Rev. B, (1972), volume 5, issue 12, pp 4709-4714
- [183] **Fukumoto M, Huang Y**, *Flattening mechanism in thermal sprayed nickel particle impinging on flat substrate surface*, Journal of thermal spray technology, (1999), volume 8, issue 3, pp 427-432
- [184] **Li C, Li J**, *Transient contact pressure during flattening of thermal spray droplet and its effect on splat formation*. Journal of Thermal Spray Technology, (2004), volume 13, pp. 229-238
- [185] **A.P. Grosvenor and Al**, Surf. Interface Anal, (2004), volume 36, pp 1564-1574
- [186] **Fazilleau J**, *Contribution à la compréhension des phénomènes impliqués dans la réalisation de dépôts finement structurés d'oxydes par projection de suspensions par plasma.*, Thèse, 2003, Université de Limoges, France

- [187] **Raghavan V**, *Al-Ni-Ti (Aluminium Nickel Titane)*, Journal of Phase Equilibria and Diffusion Vol. (2009), volume 30, issue 1, pp 77-78
- [188] **Baudry C**, *Contribution à la modélisation instationnaire et tridimensionnelle du comportement dynamique de l'arc dans une torche de projection plasma et image de la torche*, Thèse, (2003), Université de Limoges, France
- [189] **Egry, I., Brillo, J., Holland-Moritz, D., Plevachuk, Yu.**, The surface tension of liquid aluminium-based alloys, Materials Science and Engineering A, (2008), volume 495 (1-2), pp. 14-18
- [190] **Mills, K.C., Youssef, Y.M., Li, Z., Su, Y.**, *Calculation of thermophysical properties of Ni-based superalloys*, ISIJ International,(2006), volume 46, issue 5, pp. 623-632
- [191] **Lyubov Nikolova, Zornitsa Angelova, Zoya Naydenova**, *Investigations of fatigue behaviour and microstructure of titanium alloy and low-carbon steel*, Revue de génie industriel, (2010), volume 5, pp 80-88

Titre :

Etude expérimentale de l'impact et de la solidification de gouttes céramiques et métalliques de tailles micrométrique et millimétrique sur différents types de substrats : Compréhension du mécanisme de formation des dépôts par projection thermique.

Mots-clés :

- Projection thermique-Torche à plasma
- Etalement de particules-Mouillabilité-Tension de Surface-Viscosité
- Traitement de surface-Dépôts épais
- Diagnostics sur phase particulaire-Pyrométrie-Vélocimétrie-Imagerie

Résumé :

La projection plasma permet de fondre des particules micrométriques dont l'écrasement sur le substrat (en 1 μ s) forme le dépôt par empilement de lamelles. L'adhésion du dépôt est primordiale et ce travail est consacré à la forme des lamelles sur un substrat lisse. Les paramètres étudiés sont d'une part la vitesse, la température, l'influence de l'oxydation de la particule en vol thermique et d'autre part les caractéristiques du substrat (température, oxydation, propriété du substrat). Nous avons utilisés deux matériaux projetés (Al_2O_3 , NiAl) et deux substrats dont les couches d'oxydes sont de quelques dizaines de nanomètre : 304L et Ti-6242. Pour les particules micrométriques, des photos sont prises à différents temps d'étalement et différentes particules avec des caractéristiques proches. Un dispositif de chute libre modifié (plage de vitesse augmentée) est utilisé pour générer des particules millimétriques et ainsi observer avec plus de précision l'étalement.

Il a été mis en évidence la répartition de la matière sur la surface. Une loi d'étalement a été déduite de tous les résultats pour prédire le diamètre maximum d'étalement suivant l'état de la surface. L'étude chronologique de l'étalement a mis en évidence différents types d'éjections, soit à l'impact, soit au cours de l'étalement. Dans le cas d'un substrat froid, les éjections à l'impact (angle d'éjection maximal de 45°) résultent de la désorption des espèces présentes à la surface du substrat. Les éjections perpendiculaires résultent du rebond d'un cœur solide au moment du contact avec le substrat. Les études chimiques ont mis en évidence la modification de la chimie de surface du substrat du fait de l'impact et de l'étalement de la particule.

Abstract:

The plasma spray allows melting micrometric particles which flatten on one μ s onto the substrate to build the coating by pile of lamellae. The coating adhesion is essential and this work is centred on the lamellae shape onto a smooth substrate. The studied parameters are on one hand the speed, the temperature, the influence of the oxidation of the particle in flight and on the other hand the substrate characteristics (temperature, oxidation, and substrate properties). We used two sprayed materials (Al_2O_3 , NiAl) and two substrates which the oxide layers are some tens of nanometre: 304L and Ti-6242. For the micrometric particles, photos are taken at different spreading time and various particles with close characteristics. A free-fall device modified, to increase impact velocity, is used to generate millimetre scale particles and so observe with more precision the particle flattening.

The matter distribution on the surface was brought to light. A spreading law was deduced from all results to predict the maximum spreading diameter following the substrate surface state. The chronological study of the spreading brought to light various types of ejection, either at the impact, or during the spreading. In the case of a cold substrate, the ejection at the impact (maximal ejection angle of 45°) result from the desorption of adsorbats and condensates present on the substrate surface. The perpendicular ejection result from the rebound of a solid heart at the impact. The chemical studies brought to light the chemistry modification of substrate surface during the particle flattening.