

Influence de différents paramètres métallurgiques sur la conductivité thermique des métaux

Isabelle Ranc Darbord, Julie Cedelle, Danièle Wagner

Université Paris Ouest Nanterre La Défense,
Laboratoire LEME, Energétique, Mécanique, Electromagnétisme,
50 rue de Sèvres, 92410 Ville d'Avray, France

Résumé

Dans ce travail, nous nous sommes intéressées à l'influence de la microstructure sur la conductivité thermique. Les paramètres étudiés sont la nature et la proportion des phases en présence et le taux d'écroutissage à froid. Les mesures de conductivité thermique ont été effectuées par la méthode de la source plane, à température ambiante avec une précision inférieure à 5%. Dans les métaux, la conductivité thermique est essentiellement due aux électrons libres. L'interprétation de nos résultats est discutée en fonction du libre parcours moyen des électrons qui varie selon les paramètres métallurgiques étudiés.

Nomenclature

a diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$

D diamètre de l'échantillon, mm

e épaisseur de l'échantillon, mm

k conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$

t durée de la mesure, s

T température, K

1. Introduction

La compréhension des mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture des matériaux s'est enrichie de la mesure du champ de température en surface des éprouvettes au cours des essais mécaniques [1]. La détermination et l'explication des sources de chaleur à l'origine de l'élévation de température observée dans un essai mécanique nécessitent une bonne connaissance de la conductivité thermique des matériaux étudiés et idéalement de son évolution lors de l'essai. Dans ce travail, nous nous sommes intéressées à l'influence de la microstructure sur la conductivité thermique des aciers d'usage courant dans l'industrie et du fer pur à l'état recuit et écroui à froid. Les paramètres étudiés sont la nature et la proportion des phases en présence et le taux d'écroutissage à froid.

La conductivité thermique des différents matériaux a été mesurée par la méthode de la source plane transitoire. Les résultats sont positionnés par rapport à la bibliographie et sont discutés en fonction de la microstructure des échantillons et des mécanismes de diffusion de la chaleur expliqués dans la littérature [2][3].

2. Technique expérimentale

La méthode de la source plane transitoire a été utilisée pour déterminer la conductivité thermique de nos échantillons. Dans cette méthode, développée par Gustafsson [4], un capteur plan transitoire (la sonde Hot Disk) est placé entre deux échantillons identiques du matériau à caractériser. Cette sonde fournit à la surface des échantillons une puissance constante pendant une durée t . Les propriétés thermiques (conductivité, diffusivité thermique et capacité calorifique) sont obtenues à partir de l'analyse de la réponse en température de la surface des échantillons, pendant le chauffage. L'augmentation de température, de l'ordre de quelques degrés Celsius, est mesurée à partir de la variation de la résistance électrique de la sonde. Le modèle thermique utilisé pour l'identification des propriétés thermiques est détaillé dans [4].

Afin de ne pas introduire une incertitude liée aux conditions aux limites radiatives et convectives à la surface de l'échantillon, le modèle et l'expérience se placent dans les conditions d'une géométrie semi-infinie. Cette hypothèse nécessite des dimensions de l'échantillon bien choisies. Il faut donc vérifier une épaisseur minimale de l'échantillon et un diamètre minimal permettant de rester dans les conditions d'utilisation des solutions en milieu semi-infini soit environ $3,6\sqrt{at}$ avec a la diffusivité thermique du matériau. Pour chaque essai, cette condition a été vérifiée a posteriori. Nous avons utilisé l'analyseur TPS2500 commercialisé par la société Hot Disk [5] (ISO 2007-2 :2008). Les sondes utilisées se composent d'une double spirale de Nickel de 10 μ m d'épaisseur sérigraphiée sur une feuille mince de Kapton. Les gammes de mesure et la précision annoncées par le constructeur sont données ci-dessous :

Echantillon	α ($mm^2.s^{-1}$)	k ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	c ($MJ.m^{-3}.K^{-1}$)	T (K)	t (s)	Précision sur k en %
Standard	0,1-100	0,005-400	0,1-5	218-1273	1-1280	± 5
Plaque mince	4-120	5-500	2-5	218-973	0,5-10	± 2

Tableau 1 : Gamme de mesure et précision du Hot Disk®

3. Matériaux étudiés

Les métaux étudiés ici sont tous des matériaux ferreux de structure cubique centrée. Le fer Armco est un fer pur, monophasé. Bien que dit « pur », sa teneur en carbone est égale à 0,0087%. En dessous de 912°C, sa phase stable est la ferrite α .

3.1. Aciers non alliés

Les aciers non alliés C12, C22, C35, C48, C65 sont des aciers hypoeutectoïdes avec des teneurs en carbone croissantes (respectivement de 0,12%, 0,22%, 0,35%, 0,48%, 0,65%). Leur teneur en carbone détermine des microstructures variées correspondant à des duretés différentes. Ils ont été approvisionnés sous forme de barres de diamètres suffisants pour respecter les conditions de la mesure thermique. Le dernier traitement thermique de qualité effectué a été une normalisation, c'est-à-dire une austénitisation suivie d'un refroidissement lent à l'air. Dans ces conditions, les microstructures obtenues sont composées de ferrite proeutectoïde et de perlite à l'équilibre prévues par le diagramme de phases Fer-Carbone [6].

La ferrite est une solution solide de carbone en insertion dans le Fer α et résulte de la transformation avec diffusion de l'austénite à la température frontière entre le domaine γ (austénite) et le domaine $\alpha + \gamma$ du diagramme Fer-Carbone. La perlite résulte de la transformation avec diffusion de l'austénite restante à la température de 727°C. C'est un mélange des deux phases ferrite (α) et cémentite (Fe_3C) de composition constante, celle de l'acier eutectoïde soit 88% de ferrite et 12% de Fe_3C . On rappelle que l'acier eutectoïde est l'acier allié à 0,77% de carbone. Il présente une structure uniquement perlitique, issue de la décomposition de l'austénite solide en deux phases, la ferrite à 0,022% de carbone et la cémentite à 6,67% de carbone. La répartition des deux phases peut être lamellaire ou globulaire. Dans nos aciers non alliés, la perlite est de type lamellaire. Elle se présente sous la forme de lamelles de cémentite alternant avec des lamelles de ferrite. L'espacement entre les lamelles est de l'ordre de 0,1 μ m-1 μ m [7].

La proportion des deux phases présentes dans nos aciers non-alliés, ferrite proeutectoïde et perlite varie avec le pourcentage de carbone. Plus le pourcentage de carbone est élevé, plus la proportion de perlite est importante. Ces proportions ont été calculées par la règle des segments inverses (à la température de 727°C + ϵ) à partir du diagramme de phases Fer-Carbone et de la composition chimique en Fer et Carbone donnée par les fournisseurs. Les impuretés ont été

négligées. Les proportions en masse sont données dans le tableau 2 et correspondent bien aux microstructures observées (Figure 1). Les taux de perlite dans les aciers non alliés étudiés vont de 12 à 81%. Dans la perlite, la phase cémentite Fe_3C qui correspond au carbure de fer est une phase dure. Donc plus la teneur en carbone est importante, plus l'acier sera résistant.

Acier	Diamètre (mm)	Microstructure (% en masse des deux phases, ferrite et perlite)	Microstructure (% calculés en masse ferrite – cémentite)	% Fe*
C12	28	88% ferrite +12% perlite	98,56% ferrite + 1,44% Fe_3C	99,58
C22	40	74% ferrite +26% perlite	96,88% ferrite + 3,12% Fe_3C	98,90
C35	40	58% ferrite +42% perlite	94,96% ferrite +5,04% Fe_3C	97,10
C48	30	41% ferrite +59% perlite	92,92% ferrite + 7,08% Fe_3C	97,89
C65	18	19% ferrite +81% perlite	90,28% ferrite + 9,72% Fe_3C	98,48

tableau 2 : Microstructures obtenues sur les aciers non alliés (*en prenant en compte les impuretés)

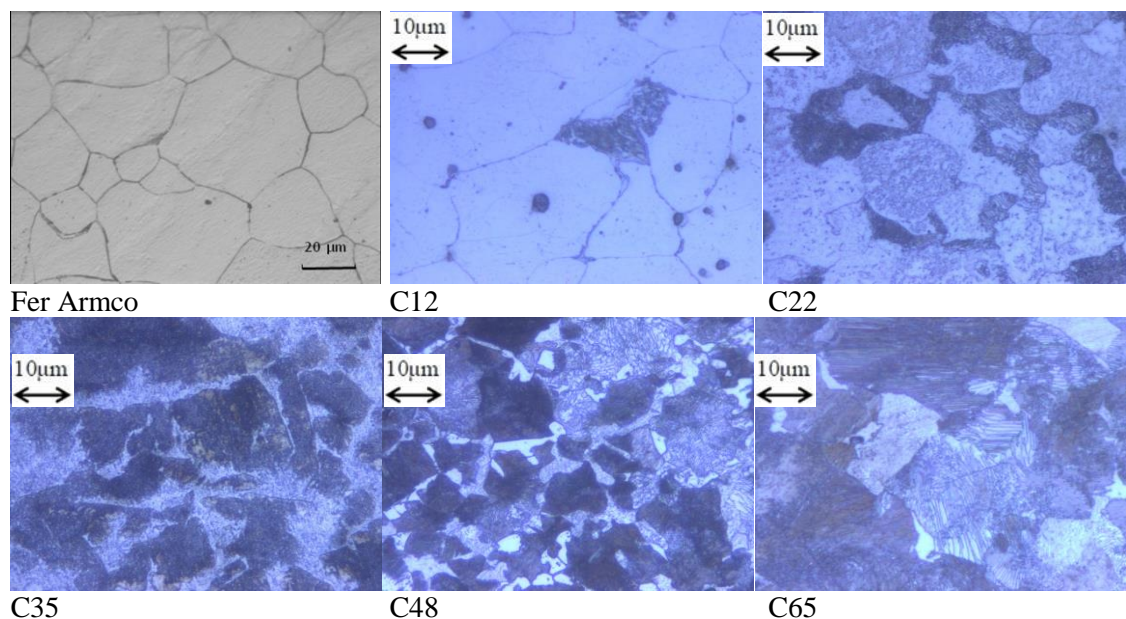


Figure 1: Microstructures des aciers non alliés étudiés

3.2. Fer écroui

L'écrouissage est une opération consistant à modifier l'état structural d'un métal par déformation dans le domaine plastique. Il agit sur la structure du métal par déformation plastique en augmentant la densité de dislocations. Il est utilisé pour augmenter le durcissement du matériau et sa limite d'élasticité. Les échantillons de fer ont été écrouis à froid par traction, sous la forme de plaques de 1 mm d'épaisseur. Les dimensions des éprouvettes étaient suffisantes pour obtenir des mesures valables de la conductivité thermique. Le taux d'écrouissage étant mesuré par traction, il est assimilé à l'allongement relatif de l'éprouvette $\Delta l/l_0$. Trois allongements relatifs ont été effectués (10, 20 et 30%).

4. Mécanismes de diffusion de la chaleur

Plusieurs ouvrages de référence expliquent le rôle des différents porteurs d'énergie dans un solide [2][3][8]. Deux contributions participent à la conductivité thermique : les électrons libres présents dans les métaux et les phonons, quasi-particules liées aux vibrations du réseau cristallin.

La structure de nos aciers est cubique centrée constituée d'un empilement de compacité 0,68 d'ions Fe^{3+} liés par la liaison métallique et entre lesquels les électrons libres circulent. Dans

les métaux purs, la transmission de la chaleur est principalement assurée par les collisions électrons libres-phonons, quelle que soit la température. Lorsque la température augmente, les vibrations thermiques augmentent, les collisions sont plus nombreuses et réduisent le libre parcours moyen des électrons libres [9]. Cela se traduit par une diminution de la conductivité thermique en fonction de la température que l'on observe pour la majorité des métaux purs.

D'autres phénomènes influencent le libre parcours moyen des électrons et modifient la conductivité thermique : l'introduction d'atomes étrangers qui déforment le réseau cristallin, la présence de défauts tels que les lacunes ou les dislocations du réseau cristallin, vont dégrader la conductivité thermique due aux électrons libres. Par exemple, Delomel [9] donne des valeurs de la résistivité électrique des aciers ; elle augmente en fonction du pourcentage de carbone dans le fer. On peut traduire cet effet sur la résistivité électrique en terme de conductivité thermique due aux électrons à l'aide de la loi de Wiedemann-Franz [2][10].

$$k_{el} = LT\sigma_{elec} \quad (1)$$

où L est le nombre de Lorentz ($2,45 \cdot 10^{-8} \text{ W} \cdot \Omega/\text{K}$), T est la température et σ_{elec} la conductivité électrique.

La conductivité thermique due aux électrons k_{el} est calculée sur la Figure 2 à partir de (1) avec $T=300 \text{ K}$ et les résistivités électriques données par [9]. Elle diminue donc lorsque le taux de carbone augmente.

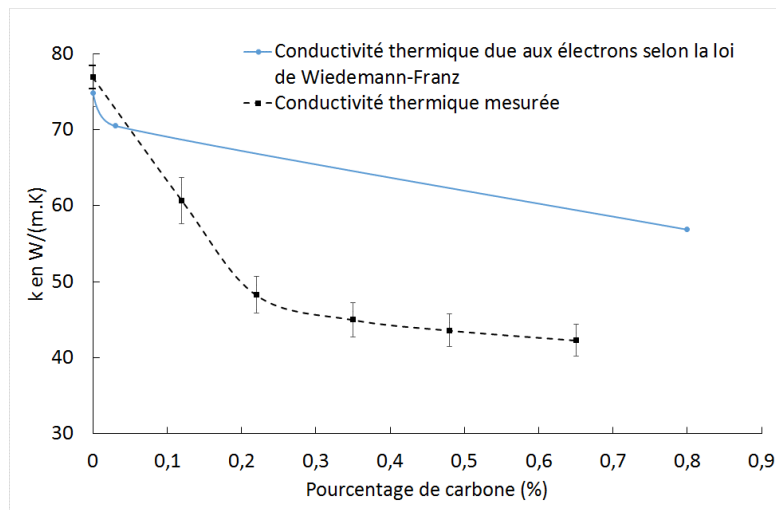


Figure 2 : Conductivité thermique due aux électrons (k_{el}) donnée par la loi de Wiedemann-Franz et conductivité thermique mesurée au LEME. L'incertitude sur le fer pur (0% de carbone) est de 2%. Elle est de 5% pour les autres points.

Les ions participent également à la transmission de la chaleur par leurs vibrations autour de leur position d'équilibre. Ces vibrations conduisent à la propagation dans le réseau cristallin, d'ondes de pulsation quantifiée, que l'on nomme phonon (vibration du réseau). D'une façon générale, on peut donc écrire la conductivité thermique à l'aide de la somme des deux contributions :

$$k = k_{el} + k_{ph} \quad (2)$$

De même que dans le cas des électrons libres, plusieurs facteurs peuvent faire varier le libre parcours moyen des phonons et modifier la conductivité thermique due aux phonons ainsi que l'importance relative de k_{ph} et k_{el} . Par exemple, l'introduction d'atomes étrangers ou de défauts dans le métal, augmente la contribution de la diffusion phonon-phonon. La présence d'impuretés, de défauts isotopiques ou encore celle de joints de grains sur lesquels il y a chocs

des phonons sont également des facteurs influençant la conductivité thermique, notamment à basse température (inférieure à la température de Debye).

5. Résultats et discussion

Le tableau 3 présente les propriétés thermiques des échantillons obtenues ainsi que les données expérimentales et géométriques, vérifiant l'hypothèse du milieu semi-infini.

Echantillon	k (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	ρc _p (MJ.m ⁻³ .K ⁻¹)	D (mm)	e (mm)	t (s)	3,6√at (mm)	Nombre d'essais*
Fe	76,92	3,55	plaque 50×100	1	1 ou 2	16	10
C12	60,7	3,53	28	20	1	14	3
C22	48,26	3,45	40	20	1	14	2
C35	45	3,3	40	20	1 ou 2s	19	4
C48	42,8-44,4	3,6	30	20	1 ou 2s	18	2
C65	42,29	3,5	18	20		13	3

*conservés pour le calcul de la moyenne

tableau 3 : Données et conductivités thermiques mesurées pour les échantillons d'aciers non alliés. Le rayon de la sonde utilisée est 3,189 mm pour l'ensemble des aciers et 6,4 mm pour le fer pur. Pour tous les échantillons, la répétabilité obtenue est inférieure à l'incertitude annoncée par le constructeur (Tableau 1).

5.1. Influence de la proportion des phases présentes

La Figure 3 montre nos résultats en fonction du taux de carbone. Sur cette figure, nous comparons nos résultats à un extrait de la base de données publiée par Peet [12] correspondant aux aciers que nous étudions. L'évolution de la conductivité thermique est similaire. Cependant, pour un taux de carbone supérieur à 0,35%, nos valeurs sont en dessous des résultats de la bibliographie reportée sur la figure. Les valeurs rassemblées par Peet ne sont pas toujours données à 20°C, mais à 0°C ou 100°C (nous avons fait une interpolation linéaire dans ce cas). Peet précise que l'historique des matériaux n'est pas toujours connue.

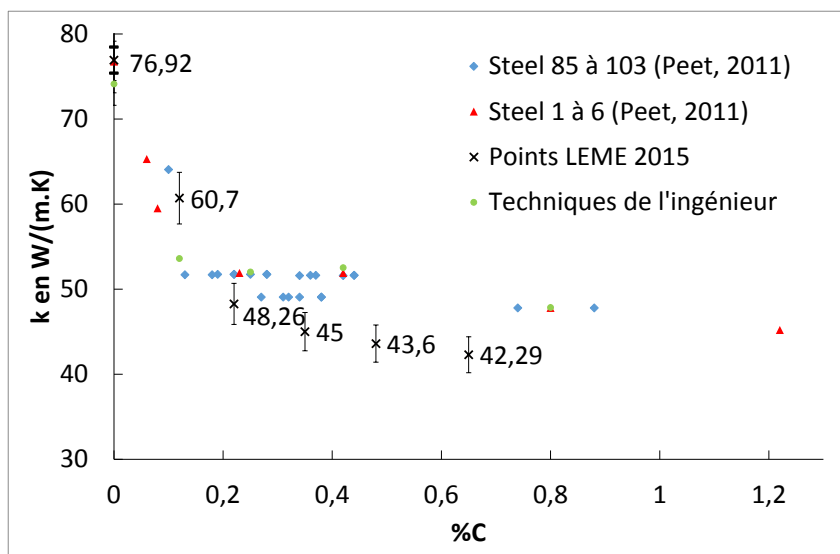


Figure 3 : Conductivités thermiques données dans la base de données de Peet [12], dans les techniques de l'ingénieur [13] et mesurées au LEME

Nos résultats ont également été analysés en termes de pourcentage en masse de perlite (Figure 4) et de cémentite (Figure 5), ce qui ne modifie pas la forme de la courbe.

On constate que plus le pourcentage de perlite est important, plus la conductivité thermique diminue. On observe également qu'à partir d'un pourcentage d'environ 40% de perlite, l'augmentation du taux de carbone, donc de la perlite dans l'acier ne modifie plus significativement la valeur de sa conductivité, qui tend vers la valeur 42 W/(m.K). La Figure 4 montre également la conductivité thermique calculée en fonction des proportions de perlite et de ferrite, à l'aide de trois lois de mélange : les lois de Maxwell-Eucken (ME) et EMT (effective medium theory) données dans [11] et rappelée dans le tableau 4 et une loi utilisant simplement une moyenne des conductivités de chaque constituant, pondérée par leurs proportions en masse indiquées dans le tableau 2. Les valeurs de conductivité thermique des constituants microstructuraux utilisées sont celles mesurées sur le fer pur et le C65 : $k_{\text{ferrite}}=77$ W/(m.K)., $k_{\text{perlite}}=42$ W/(m.K). et les densités de perlite et de ferrite sont supposées égales (fractions volumiques v_i approchées par les fractions massiques). Les joints de grains ne sont pas pris en compte dans le calcul de la conductivité. Dans notre cas, aucune de ces lois ne permet pas d'avoir une bonne prédiction de la conductivité thermique sur l'ensemble de la courbe.

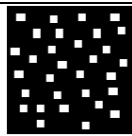

Modèle	Conductivité équivalente K	Structure
Maxwell-Eucken	$K = \frac{k_1 v_1 + k_2 v_2 \frac{3k_1}{2k_1 + k_2}}{v_1 + v_2 \frac{3k_1}{2k_1 + k_2}}$	 k_1 phase continue k_2 phase dispersée (sphères)
EMT (effective medium theory model)	$v_1 \frac{k_1 - K}{k_1 + 2K} + v_2 \frac{k_2 - K}{k_2 + 2K} = 0$	 2 phases réparties aléatoirement
Moyenne	$K = v_1 k_1 + v_2 k_2$	

Tableau 4 : Lois de mélange utilisées [11]

Nous avons déjà dit que la perlite est un mélange de ferrite et de cémentite, en couches alternées lorsque la perlite est lamellaire. Lorsque le taux de carbone augmente, le taux de perlite augmente mais la proportion de cémentite et de ferrite dans la perlite reste constante, égale à celle de l'acier eutectoïde. La Figure 5 montre l'évolution en fonction du taux de cémentite ainsi que les conductivités thermiques calculées avec les lois de mélange. La valeur de la conductivité thermique de la cémentite utilisée est $k_{\text{Fe}_3\text{C}}=7$ W/(m.K). [14].

Plusieurs facteurs sont sans doute à l'origine de la diminution de la conductivité thermique en fonction de l'augmentation du taux de perlite et de cémentite : la cémentite est un précipité de carbure de fer à liaisons covalentes, qui ne possède pas d'électrons libres, et pourrait être à l'origine de la diminution de la conductivité thermique. La structure lamellaire de la perlite pourrait être également une barrière à la diffusion de la chaleur, l'ordre de grandeur de l'espace interlamellaire (0,1 μ m-1 μ m selon [7]) pouvant approcher celui du libre parcours moyen des phonons et ces échelles pourraient modifier le régime de diffusion [3].

D'autre part, nous pouvons noter que les conductivités thermiques mesurées sont inférieures aux conductivités thermiques dues aux électrons, calculées Figure 2 alors que la correspondance est bonne pour le fer pur. Cette comparaison semble montrer que dans les aciers, l'expression (2) n'est pas adaptée ($k < k_{el}$) et que le mécanisme de conduction électrique n'est pas analogue à celui de la conduction thermique. Un autre phénomène vient modifier le libre parcours des électrons. Les lamelles de cémentite, sans électrons libres sont probablement en grande partie responsables de cet écart.

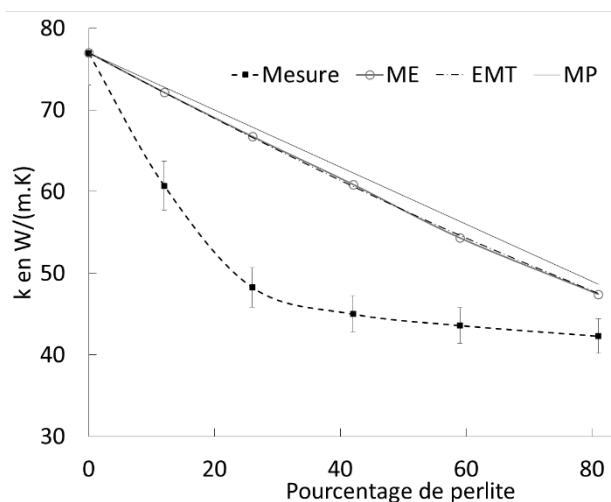


Figure 4 : Conductivité thermique des aciers non alliés, en fonction du pourcentage en masse de perlite et conductivité calculée par trois lois de mélange

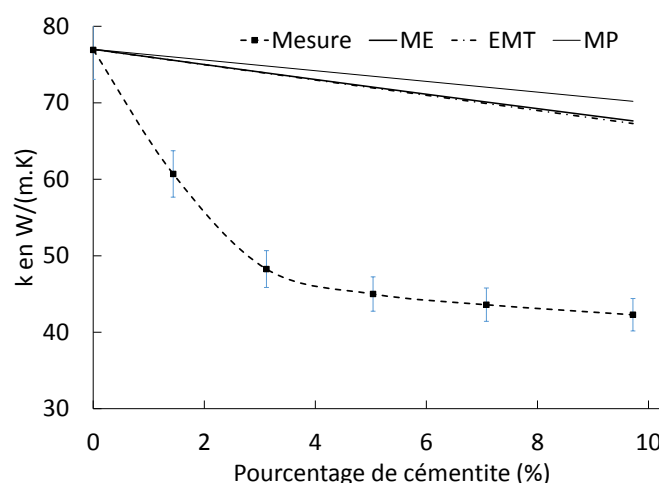


Figure 5 : Conductivité thermique des aciers non alliés en fonction du pourcentage en masse de cémentite et conductivité calculée par trois lois de mélange

5.2. Influence du taux d'écroutissage

La Figure 6 donne les résultats obtenus sur le fer écroui. On constate que la conductivité thermique diminue lorsque le taux d'écroutissage augmente. L'effet de l'écroutissage sur la conductivité électrique est mentionné par Cetinarслан [15]. Au-delà de la limite d'élasticité, le matériau durcit (s'écroute) plus ou moins par accroissement de la densité de dislocations [8]. Les dislocations sont des obstacles au parcours des électrons libres. En effet, au voisinage d'une dislocation, le réseau cristallin est déformé et peut être en compression ou en tension. Les collisions électrons-phonons sont donc plus nombreuses. Kittel [2] indique également que le facteur important est l'agencement des dislocations dans le métal. L'écroutissage a été obtenu par traction à froid ce qui ne nous permet pas d'obtenir des valeurs de déformation très élevées. La variation linéaire de la conductivité en fonction du taux d'écroutissage ne peut donc pas être étendue à de plus grandes déformations à ce stade de l'étude. Par laminage à froid, nous pourrions obtenir des déformations plus importantes et voir si la conductivité thermique diminue continument ou présente un effet de saturation comme dans le cas des aciers en fonction du taux de carbone.

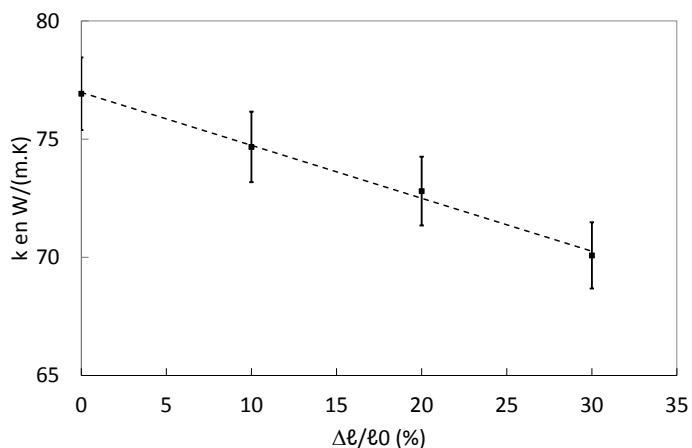


Figure 6 : Conductivité thermique du fer pur en fonction du taux d'écroutissage

6. Conclusion

Dans cette étude, nous avons mesuré la conductivité thermique de différents aciers non alliés avec des taux de carbone croissants. Nous avons constaté la diminution de la conductivité thermique lorsque le taux de carbone augmente, la diminution étant plus importante pour des taux de carbone inférieurs à 0,2%. Cette diminution est attribuée à l'apparition de la phase cémentite Fe_3C dans laquelle la conduction par électrons libres est impossible. Au-delà de 0,2% de carbone, la diminution de la conductivité thermique est plus faible. Les lois de mélanges actuellement disponibles dans la littérature ne permettent pas de prédire cette diminution en fonction du taux de perlite ou de cémentite.

Dans la deuxième partie, nous avons étudié l'influence de la déformation plastique sur la conductivité thermique du fer pur. Celle-ci diminue en accord avec l'augmentation de la densité de dislocations après écrouissage.

En conclusion, la conductivité thermique des aciers est très influencée par la nature des phases, les atomes en soluté (impuretés) et la densité de dislocations. Les modifications de structure engendrées par des essais thermomécaniques entraînent donc une évolution des propriétés thermiques qu'il est important de connaître pour l'interprétation de ces essais.

Références

- [1] D.Wagner, N.Ranc, C.Bathias, P.C.Paris, Fatigue crack initiation detection by an infrared thermography method, *Fat. Fract. Eng. Mat. Struct.* 33 (2009) 12-21
- [2] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, Ed Dunod, 8ème édition
- [3] J.F. Sacadura, *Transferts thermiques : Initiation et approfondissement*, Ed Lavoisier Tec&Doc
- [4] S.E. Gustafsson, Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials, *Rev. Sci. Instrum.* 62 (3), March 1991 pp797-804
- [5] www.hotdisk.se
- [6] G.Beranger, G. Henry, G.Sanz, *Le livre de l'acier*, Ed Sc. Lavoisier 1994
- [7] B.Thomas, J.H. Schmitt, *Durcissement des aciers, rôle de la microstructure, techniques de l'ingénieur*, M4341, 2002
- [8] J.P. Dorlot, J.P. Baïlon, J. Masounave, *Des Matériaux*, Ed de l'école polytechnique de Montréal.
- [9] J.C Delomel, *Résistivité des métaux et des alliages*, *Techniques de l'ingénieur*, K710, 2009
- [10] B. Lenoir, J.P. Michenaud, A. Dauscher, *Thermoélectricité : des principes aux applications*, *Techniques de l'ingénieur*, K730, 2010
- [11] J. Wang, J. K. Carson, M.F. North, D. J. Cleland, A new structural model of effective thermal conductivity for heterogeneous materials with co-continuous phases, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 51 (2008) 2389–2397
- [12] M.J. Peet, H.S. Hasan, H.K.D.H. Bhadeshia, Prediction of thermal conductivity of steel, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 54(2011) 2602-2608
- [13] M. Laurent, P.L. Vuillermoz, *Conductivité thermique des solides*, *Techniques de l'Ingénieur*, K420, 1993
- [14] Stefanescu, D. Physical properties of cast iron. In: Goodrich, G.M. *Iron Castings Engineering Handbook*, AFS, 2003.
- [15] S. Cetinarlan, Effect of cold plastic deformation on electrical, conductivity of various materials. In : *Materials and Design*, 2009, No 30, p 671-673.

Remerciements

Nous remercions M. Huillery et M. Renault de la société Thermoconcept de leur disponibilité pour répondre à nos interrogations.