

Titre: Simulation numérique du procédé de déposition chimique en phase
vapeur assistée par laser (LCVD) de fibres de carbone
Title:

Auteur: Dominique Croteau
Author:

Date: 2005

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Croteau, D. (2005). Simulation numérique du procédé de déposition chimique en
phase vapeur assistée par laser (LCVD) de fibres de carbone [Mémoire de
maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
Citation: <https://publications.polymtl.ca/7355/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7355/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:** Joseph Pegna, & Ricardo Camarero
Advisors:

Programme: Non spécifié
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

SIMULATION NUMÉRIQUE DU PROCÉDÉ DE DÉPOSITION CHIMIQUE
EN PHASE VAPEUR ASSISTÉE PAR LASER (LCVD) DE FIBRES DE
CARBONE

DOMINIQUE CROTEAU
DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE MÉCANIQUE)
AVRIL 2005



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*

ISBN: 0-494-01300-1

Our file *Notre référence*

ISBN: 0-494-01300-1

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé:

SIMULATION NUMÉRIQUE DU PROCÉDÉ DE DÉPOSITION CHIMIQUE
EN PHASE VAPEUR ASSISTÉE PAR LASER (LCVD) DE FIBRES DE
CARBONE

présenté par: CROTEAU Dominique

en vue de l'obtention du diplôme de: Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de:

M. REGGIO Marcelo, Ph.D., président

M. PEGNA Joseph, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. CAMARERO Ricardo, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. THERRIault Daniel, Ph.D., membre

à tous ceux et celles qui savent
porter un regard nouveau sur le monde.

REMERCIEMENTS

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de recherche M. Joseph Pegna de m'avoir donné l'occasion de réaliser mes travaux de recherche et pour son soutien financier. De plus, j'aimerais le remercier pour ses conseils tout au long de mes travaux. Je remercie également mon codirecteur de recherche M. Ricardo Camarero pour ses conseils et son soutien, autant au niveau de mes travaux de recherche que durant ma rédaction. Je tiens aussi à remercier M. Juan Abanto pour ses conseils et son expertise du logiciel FLUENT.

RÉSUMÉ

La déposition chimique en phase vapeur assistée par laser (LCVD) est un procédé prometteur, mais complexe surtout lorsqu'il s'agit de déposer des structures tridimensionnelles à l'échelle microscopique. Les structures ainsi produites peuvent être utilisées dans le domaine de la micro-électronique (ex. : micro-antenne) ou encore dans le domaine des composites à haute performance (ex. : microfibre servant de renfort). Afin d'être économiquement viable, le contrôle du procédé LCVD tridimensionnel doit être optimal. C'est en analysant tous les phénomènes impliqués dans le procédé que ce but sera atteint. À ces fins, l'étude par dynamique des fluides assistée par ordinateur (CFD) est un outil idéal, car elle permet l'analyse des phénomènes principaux du procédé LCVD qui sont interdépendants et nécessitent une analyse numérique.

Dans une première simulation numérique dite globale, la présente étude démontre que la façon dont le gaz précurseur est amené à la zone de déposition a une influence sur la précision et sur le taux de déposition. L'apport en gaz précurseur est modélisé sous la forme d'un écoulement annulaire se propageant à la surface de la fibre. Cette analyse numérique démontre qu'un tel dispositif induit une convection forcée à la surface de la fibre tout en alimentant la zone de déposition en réactifs. Cette convection forcée provoque un refroidissement localisé de la surface de la fibre, ce qui concentre la zone thermiquement affectée au bout de la fibre, améliorant ainsi la précision de déposition et permettant la production de fibres ayant un très petit diamètre.

Dans une deuxième simulation dont le volume de contrôle est plus spécifiquement concentré en bout de fibre, l'étude tente d'analyser les effets, sur le procédé de déposition, de l'éjection des produits de réaction. Cette analyse fait ressortir l'im-

portance du choix de la géométrie en bout de fibre lors de la construction du modèle numérique. De plus, elle montre aussi que l'éjection des produits de réaction est un phénomène très complexe nécessitant une attention particulière. Les résultats de l'étude ne réussissent pas à montrer si l'éjection des produits de réaction aide ou entrave la déposition, mais ils montrent que cet aspect du procédé LCVD ne peut être négligé lors d'analyses.

L'étude conclue avec une discussion sur la nécessité de choisir un outil d'analyse adéquat qui permet d'étudier le phénomène de déposition tridimensionnel par LCVD en tenant compte des aspects du procédé qui sont reliés au domaine des microfluides et qui ne sont pas nécessairement ciblés par la plupart des logiciels de CFD.

ABSTRACT

Laser Chemical Vapor Deposition (LCVD) is a promising but complex process especially when depositing microscopic three-dimensional structures. These structures can be used in microelectronics (for example as micro-antennae) or as reinforcements in high-performance composites. To become a commercial competitor for fibers manufacturing, three-dimensional LCVD must have an optimal control process. Computer fluid dynamics (CFD) is an ideal tool to reach that goal because it allows the analysis of the main phenomena of the LCVD process which are interdependent.

Starting with a global numerical simulation, this study shows a direct correlation between the way precursor gases are brought to the deposition zone and the precision and rate of deposition. Precursor gas injection is modeled as an annular flow moving along the fiber's surface. The analysis shows that it induces forced convection along the fiber's surface while supplying reactants to the deposition zone. This forced convection causes localized cooling on the fiber which concentrates the heat affected zone at the fiber's tip, enhancing deposition precision and allowing the production of very narrow fibers.

Following with a specific numerical simulation whose control volume is more precisely delimited around the fiber's tip, the study tries to analyze the effects of the ejection of reaction products on the deposition process. The analysis emphasizes the importance of the choice of fiber's tip geometry when creating the numerical model. It also shows that the ejection of reaction products is a complex phenomenon requiring special attention. Results from this study pinpoint the fact that the ejection phenomenon needs to be included in LCVD analyses, but fail to show if this phenomenon actually enhance or hamper the deposition process.

The study concludes with a discussion on choosing an adequate analysis tool since three-dimensional LCVD includes micro-fluidic processes which are not commonly implemented in mainstream CFD software.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	iv
REMERCIEMENTS	v
RÉSUMÉ	vi
ABSTRACT	viii
TABLE DES MATIÈRES	x
LISTE DES FIGURES	xiii
LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES	xvii
LISTE DES TABLEAUX	xx
LISTE DES ANNEXES	xxi
CHAPITRE 1 INTRODUCTION	1
1.1 APERÇU DU PROCÉDÉ	1
1.2 LE PROCÉDÉ LCVD	4
1.2.1 Différents régimes de déposition	4
1.2.2 Faisceau laser	7
1.2.3 Interdépendance	8
1.2.4 Dynamique des fluides	9
1.2.5 Équations fondamentales	10
CHAPITRE 2 ÉTAT DE LA QUESTION	15

CHAPITRE 3	SIMULATION GLOBALE	21
3.1	Description du design de la chambre de réaction	21
3.2	Théorie, hypothèses et propriétés des matériaux	23
3.2.1	Caractérisation des écoulements	24
3.2.2	Géométrie du bout de la fibre et focale laser	37
3.2.3	Propriétés physiques	37
3.2.4	Volume de contrôle	44
3.2.5	Simulations numériques	48
CHAPITRE 4	ANALYSE DE LA SIMULATION GLOBALE	53
4.1	Concentration de méthane	53
4.2	Distribution de température	57
4.3	Analyse vectorielle	60
4.4	Conditions frontières plus restreintes	62
4.5	Observations globales de l'écoulement parallèle	63
CHAPITRE 5	SIMULATION SPÉCIFIQUE	65
5.1	Délimitation du volume de contrôle restreint	66
5.2	Modélisation du jet d'hydrogène	67
5.2.1	Propriétés physiques	67
5.2.2	Restrictions de modélisation	71
5.2.3	Vitesse du jet d'hydrogène	73
5.3	Conditions frontières	76
5.4	Maillage	80
5.5	Paramétrage de la simulation	81
CHAPITRE 6	ANALYSE DE LA SIMULATION SPÉCIFIQUE	82
6.1	Simulation spécifique sans jet d'hydrogène	82
6.2	Simulation spécifique avec jet d'hydrogène	85

6.2.1	Instabilités de la simulation	85
6.2.2	Effets du jet d'hydrogène	87
6.2.3	Résumé des observations	87
CONCLUSION		91
RÉFÉRENCES		94
ANNEXES		97

LISTE DES FIGURES

FIG. 1.1	Relation entre la température à la surface de déposition et le taux de déposition (trois régimes distincts)	4
FIG. 1.2	Définition du rayon effectif ω^0 de la focale laser en fonction de la distribution Gaussienne	8
FIG. 1.3	Interdépendance des paramètres directeurs	9
FIG. 3.1	Vue en coupe de l'intérieur de la chambre de réaction	21
FIG. 3.2	Délimitation du volume de contrôle	23
FIG. 3.3	Définition schématique des écoulements	24
FIG. 3.4	Diffusion maximale tolérée	29
FIG. 3.5	Densité isobare du méthane en fonction de la température, à une pression $p=50\text{bar}$	39
FIG. 3.6	Chaleur spécifique isobare du méthane en fonction de la température, à une pression $p=50\text{bar}$	39
FIG. 3.7	Conductivité thermique isobare du méthane en fonction de la température, à une pression $p=50\text{bar}$	40
FIG. 3.8	Viscosité isobare du méthane en fonction de la température, à une pression $p=50\text{bar}$	40
FIG. 3.9	Variations de la conductivité thermique du carbone vitreux en fonction de la température	44
FIG. 3.10	Représentation du volume de contrôle utilisé lors des simulations numériques (non à l'échelle)	45
FIG. 3.11	Aperçu du maillage à l'entrée principale et près du bout du microtube	51
FIG. 4.1	Écoulement de méthane dans l'argon	53
FIG. 4.2	Concentration de méthane de 98% et plus de l'écoulement s'écoulant autour de la fibre	54

FIG. 4.3	Régions distinctes de concentration de méthane et d'argon . . .	55
FIG. 4.4	Concentration radiale de méthane en bout de fibre	56
FIG. 4.5	Concentration axiale de méthane à partir du bout de la fibre	56
FIG. 4.6	Distribution de la température dans la fibre et dans le fluide avoisinant	57
FIG. 4.7	Distribution de la température à la surface de la fibre . . .	58
FIG. 4.8	Distribution radiale de la température en bout de fibre . . .	59
FIG. 4.9	Distribution axiale de la température dans le fluide, à partir du bout de la fibre	59
FIG. 4.10	Forme caractéristique du profil de vitesse de l'entrée principale	60
FIG. 4.11	Représentation des vecteurs vitesse de l'écoulement en bout de fibre	61
FIG. 4.12	Zones spécifiques des différents aspects de la déposition . . .	62
FIG. 4.13	Comparaison de la distribution de température à la surface de la fibre lors d'une absence ou d'une présence d'un écoulement forcé	64
FIG. 4.14	Comparaison de la distribution radiale de température en bout de fibre lors d'une absence ou d'une présence d'un écou- lement forcé	64
FIG. 5.1	Délimitation du volume de contrôle restreint comme micro- réacteur	66
FIG. 5.2	Volume de contrôle spécifique délimitant le micro-réacteur .	67
FIG. 5.3	Variation de la densité de l'hydrogène en fonction de la tem- pérature à $p = 50bars$	68
FIG. 5.4	Variation de la chaleur spécifique en fonction de la tempéra- ture à $p = 50bars$	68
FIG. 5.5	Variation de la conductivité thermique en fonction de la tem- pérature à $p = 50bars$	69

FIG. 5.6	Variation de la viscosité en fonction de la température à $p = 50bars$	69
FIG. 5.7	Variation du coefficient de diffusion sous haute pression de l'hydrogène dans le méthane en fonction de la température .	71
FIG. 5.8	Modélisation particulière du jet d'hydrogène en bout de fibre	72
FIG. 5.9	Volume de contrôle utilisé dans la simulation spécifique . . .	76
FIG. 5.10	Valeurs de la vitesse axiale de l'écoulement à $z = -400\mu m$ provenant de la simulation globale	77
FIG. 5.11	Valeurs de la vitesse radiale de l'écoulement à $z = -400\mu m$ provenant de la simulation globale	77
FIG. 5.12	Valeurs de la vitesse axiale de l'écoulement à $r = 70\mu m$ provenant de la simulation globale	78
FIG. 5.13	Valeurs de la vitesse radiale de l'écoulement à $r = 70\mu m$ provenant de la simulation globale	78
FIG. 5.14	Extrait du maillage utilisé dans la simulation spécifique . .	80
FIG. 6.1	Comparaison entre la simulation globale et spécifique, de la distribution de température à la surface de la fibre	83
FIG. 6.2	Comparaison entre la simulation globale et spécifique, de la distribution radiale de température en bout de fibre	84
FIG. 6.3	Comparaison entre la simulation globale et spécifique, de la distribution axiale de température à partir du bout de la fibre	85
FIG. 6.4	Évolution des résidus durant la simulation spécifique	86
FIG. 6.5	Évolution de la température à la surface de la fibre durant la simulation spécifique (de 10000 à 27401 itérations)	87
FIG. 6.6	Évolution de la température à la surface de la fibre durant la simulation spécifique (de 27401 à 44256 itérations)	88
FIG. 6.7	Profil logarithmique d'éjection d'hydrogène dans le cas d'une fibre à bout elliptique	89

FIG. 6.8 Schéma démontrant l'entraînement de l'écoulement environ-
nant par l'éjection d'hydrogène 89

LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES

a :	Vitesse du son
A :	Surface
C :	Concentration du gaz précurseur
D :	Coefficient de diffusion/Diffusivité ; Diamètre
E :	Énergie interne
E_a :	Énergie d'activation
h :	Enthalpie
I :	Intensité
$I.D.$:	Diamètre interne
I_0 :	Intensité maximale
J :	Flux de diffusion
k :	Conductivité thermique
k_t :	Conductivité thermique en régime turbulent
m :	Masse
n :	Ordre de la réaction
$O.D.$:	Diamètre externe
p :	Pression
P_{laser} :	Puissance effective du laser ; Pression
r :	Distance radiale
R :	Constante universelle des gaz ; Réflectivité ; Taux net de production
Re :	Nombre de Reynolds
R_n :	Taux de déposition dans la direction normale
S :	Terme source
T :	Température
u :	Vitesse axiale

v :	Vitesse radiale
\vec{V} :	Vecteur vitesse
Y :	Fraction massique
α :	Facteur pré-exponentiel
μ :	Viscosité
ϕ :	Diamètre
ρ :	Densité
ω_0 :	Rayon effectif de la focale du rayon laser
ζ :	Facteur de conversion

INDICES

1 :	espèce diffusé
2 :	espèce concentré
Ar :	argon
c :	critique
C :	carbone
CH_4 :	méthane
DEP :	dépôt
eff :	effectif
f :	fibre
$froid$:	état froid ($T = 193.15K$)
(g) :	gazeux
G :	gaz
h :	thermique ; hydraulique
H_2 :	hydrogène

<i>i</i> :	espèce i
<i>j</i> :	espèce j
<i>max</i> :	maximum
<i>moy</i> :	moyen
<i>MT</i> :	microtube
<i>r</i> :	coordonnée radiale; propriété réduite
<i>s</i> :	standard
(<i>s</i>) :	solide
<i>m</i> :	massique ; mélange
<i>x</i> :	coordonnée axiale

LISTE DES TABLEAUX

TAB. 3.1	Propriétés du méthane et de l'argon à une température de $193.15K(-80^{\circ}C)$ et une pression de $50bar$	38
TAB. 5.1	Comparaison entre les maillages de la simulation globale et la simulation spécifique	81

LISTE DES ANNEXES

CHAPITRE 7	SIMULATION GLOBALE - FONCTIONS DÉFINIES PAR L'UTILISATEUR (UDF)	97
CHAPITRE 8	SIMULATION SPÉCIFIQUE - FONCTIONS DÉFINIES PAR L'UTILISATEUR (UDF)	100

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 APERÇU DU PROCÉDÉ

La déposition chimique en phase vapeur assistée par laser (en anglais, LCVD, Laser Chemical Vapor Deposition) est un procédé de microfabrication. Il utilise l'énergie d'un faisceau laser pour décomposer un gaz (appelé gaz précurseur) dans le but d'en déposer les produits solides sur un support (normalement appelé substrat). Par exemple, dans le cas de l'utilisation du méthane (CH_4) comme gaz précurseur, le phénomène de décomposition est exprimé par la réaction chimique suivante :



C'est-à-dire que l'énergie provenant du faisceau laser décompose le méthane en carbone (dépôt solide à la surface du substrat) et en hydrogène (gaz éjecté lors de la réaction). Cette décomposition n'aura cependant lieu que si le niveau énergétique est suffisamment élevé pour activer la réaction, d'où la nécessité d'utiliser un faisceau laser adéquat.

Afin de pouvoir déposer de la matière selon une forme prédéterminée, il faut une réaction très localisée. C'est pourquoi il faut choisir une combinaison gaz précurseur/laser adéquate tel que le mélange soit transparent au faisceau laser, c'est-à-dire qu'il n'absorbe pas l'énergie de ce dernier. Ce n'est qu'à l'endroit précis où le faisceau laser frappe le substrat que la réaction se produit, car l'énergie nécessaire à cette réaction est fournie par transfert thermique du substrat au gaz et non du

faisceau laser au gaz. Ainsi, plus l'énergie se dissipe rapidement dans le substrat, plus grande est la précision de déposition car le seuil énergétique ne sera atteint que dans la zone focale du faisceau laser.

C'est de cette façon que l'écriture quasi-bidimensionnelle (il existe toujours une certaine épaisseur au dépôt de l'ordre du micromètre) peut-être utilisée afin de réaliser des tracés de très haute précision comme des circuits imprimés dans le domaine de la micro-électronique. La déposition tridimensionnelle est également possible car il a été établi depuis plusieurs années que la déposition peut prendre une direction axiale au faisceau laser si celui-ci demeure stationnaire suffisamment longtemps pour que le dépôt s'accumule et forme ainsi une structure en trois dimensions (NELSON and RICHARDSON, 1972).

Cet aspect tridimensionnel du procédé de déposition chimique assistée par laser (souvent appelé 3D-LCVD) suscite beaucoup d'intérêt. Il permettra la construction au niveau microscopique (et même nanoscopique) de structures 3D complexes et ce, sans les limites imposées par les procédés d'usinage et de fabrication conventionnels (d'où l'appellation Fabrication en Forme Libre, FFL).

Pour réaliser l'analyse, au plan scientifique, d'un procédé complexe comme le cas du 3D-LCVD, il est indispensable de débiter par l'étude d'un cas simple afin de comprendre le procédé de base. C'est ainsi que la plupart des études expérimentales du 3D-LCVD portent sur la fabrication de géométries simples comme les fibres (géométries axisymétriques) (WALLENBERGER, 1997; MAXWELL et al., 1998; JEAN et al., 2002). Ces études aident à une meilleure compréhension de la croissance de microstructures, plus particulièrement des fibres.

La croissance de fibres par LCVD peut se faire à basse pression (en dessous de la pression atmosphérique) ou à haute pression (appelé alors HP-LCVD). C'est à

haute pression que ce procédé est plus intéressant commercialement car il a été démontré que le taux de croissance des fibres peut être jusqu'à 30 fois plus élevé qu'à basse pression (WALLENBERGER and NORDINE, 1993). Ceci montre que ce procédé pourrait devenir concurrentiel avec les méthodes courantes de fabrication de fibres dans la mesure où il est bien compris et contrôlé de façon précise.

La présente étude est basée sur des travaux de recherches effectués par M. Joseph Pegna au sein de la Chaire de Recherche de Fabrication en Forme Libre du Canada. On vise une meilleure compréhension du processus de fabrication en continu de fibres par HP-LCVD dans le but d'obtenir un procédé concurrentiel aux procédés coûteux existants. Ce procédé pourrait éventuellement permettre la fabrication commerciale de fibres pour les matériaux composites, de structures tridimensionnelles intégrées à des systèmes MEMS (Micro Electro-Mechanical System) ou encore de nanotubes pour diverses applications.

L'étude du procédé LCVD est complexe et couple plusieurs phénomènes tel la dynamique des fluides, le transfert de chaleur conjugué, l'échange de masse et la cinétique chimique des gaz. De plus, c'est un procédé hautement dépendant des paramètres auxquels il est effectué, tel la température de déposition. Une compréhension de ce procédé doit donc se baser sur une modélisation numérique qui analyse les interactions de ces phénomènes, car les équations de base qui y sont associées ne peuvent être résolues que par des méthodes analytiques.

La présente étude tentera donc de regrouper tout ces phénomènes en modélisant le procédé HP-LCVD de croissance de fibres à l'aide du logiciel FLUENT© de dynamique des fluides assistée par ordinateur (CFD). Elle portera tout particulièrement son attention sur le comportement du gaz précurseur dans le voisinage de la fibre à l'intérieur de la chambre de réaction lors du procédé HP-LCVD en mode continu. Outre la modélisation de la physique, une attention particulière sera apportée aux

aspects numériques dans la manière qu'ils affectent la précision de la simulation.

1.2 LE PROCÉDÉ LCVD

1.2.1 Différents régimes de déposition

Pour que le procédé HP-LCVD soit concurrentiel aux méthodes actuelles de microfabrication, il faut obtenir le meilleur taux de déposition possible. Puisque ce taux de déposition est relié directement à la température de la réaction chimique, il convient de bien comprendre la relation entre ces deux paramètres ainsi que les différentes variables qui les affectent. Le comportement de cette relation entre la température à la surface de déposition et le taux de déposition est illustré à la figure 1.1 et montre la présence de trois régimes de déposition distincts.

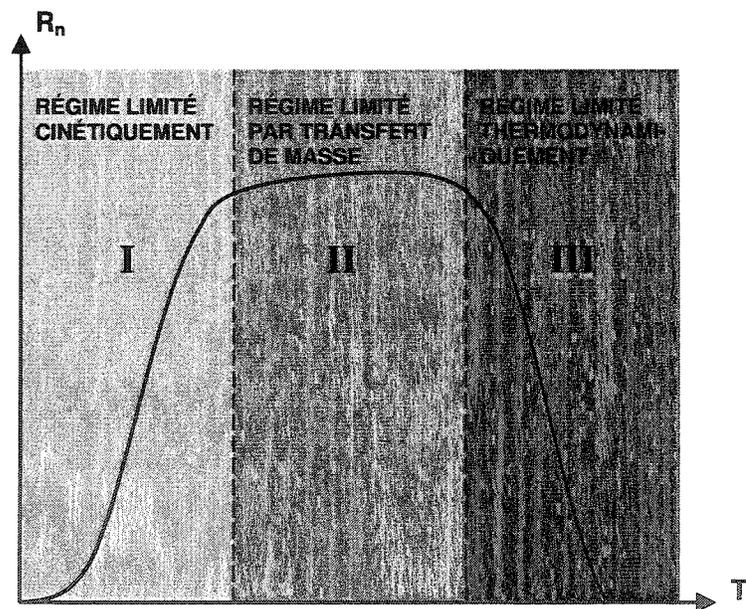


FIG. 1.1 Différents régimes de déposition

I. Régime limité cinétiquement

Dans la plage inférieure de température, le taux de réaction augmente de façon exponentielle lors d'une hausse de température. Cette augmentation suit une loi d'Arrhenius modifiée (BAUERLE et al., 1990) :

$$R_n = \alpha C^n \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad (1.2)$$

où

R_n = Taux de déposition dans la direction normale ;

α = Facteur pré-exponentiel ;

C = Concentration du gaz précurseur ;

n = Ordre de la réaction ;

E_a = Énergie d'activation de la réaction [kJ/mol] ;

R = Constante universelle des gaz [$kJ/mol \cdot K$] ;

T = Température locale à la surface [K] ;

On remarque qu'à pression constante, le taux de déposition ne dépend que de la température T et de l'énergie d'activation E_a .

II. Régime limité par transfert de masse

Dans cette plage de température, on atteint un point où le taux de réaction est tellement élevé, que la grande quantité de produits de réaction empêchent le gaz précurseur d'atteindre la zone de déposition, résultant en un appauvrissement de gaz précurseur à cet endroit. Le taux de réaction cesse alors de croître de façon exponentielle et seulement une grande augmentation de la pression et un apport supplémentaire de gaz précurseur peuvent modifier de façon appréciable le taux de réaction. Le mécanisme d'échange ou de transport de masse par convection et diffusion contrôle le taux de réaction (MAXWELL, 1996). Le taux de réaction ne

dépend plus alors de la loi d'Arrhenius (1.2), mais plutôt de la concentration du gaz précurseur qui est définie par l'équation de diffusion :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\nabla^2 C \quad (1.3)$$

où

D = Coefficient de diffusion du gaz précurseur ;

C = Concentration du gaz précurseur ;

III. Régime limité thermodynamiquement

Finalement, si la température continue à augmenter, l'on entre dans le régime limité thermodynamiquement. Dans celui-ci, le taux de déposition/réaction diminue abruptement car il est en partie annulé par le taux de désorption. Le phénomène de désorption est la réaction inverse de la déposition, où la matière déposée retourne à l'état gazeux. Cette désorption s'effectue lorsque l'augmentation de la température permet d'atteindre une énergie d'activation propre au phénomène de désorption. Ce deuxième seuil est beaucoup plus élevé que celui permettant d'amorcer la réaction en régime limité cinétiquement.

Il est évident, que dans les procédés HP-LCVD, le dernier régime (III) n'est jamais considéré car un taux de déposition maximal aura déjà été atteint dans le régime limité par transfert de masse. De plus, on ne peut augmenter le taux de déposition dans le Régime II que par une forte augmentation de la pression et un apport supplémentaire de gaz précurseur et ce, de façon peu significative comparativement aux augmentations observées en régime limité cinétiquement (I). Par conséquent, la plupart des procédés HP-LCVD s'effectuent en régime limité cinétiquement car celui-ci est plus facilement contrôlable expérimentalement.

1.2.2 Faisceau laser

Dans le procédé HP-LCVD, le faisceau laser qui apporte l'énergie nécessaire à la réaction de déposition est défini principalement par :

- La puissance effective du laser P_{laser} ;
- Le rayon effectif ω_0 de la focale du faisceau laser ;

Ces deux paramètres définissent l'intensité maximale du faisceau laser par la relation suivante (BAUERLE, 1996) :

$$I_0 = \frac{2P_{laser}}{\pi\omega_0^2} \quad (1.4)$$

- où
- I_0 = Intensité maximale [W/m^2];
 - P_{laser} = Puissance effective du laser [W];
 - ω_0 = Rayon effectif de la focale laser [m];

Normalement, dans les procédés HP-LCVD, l'on utilise un faisceau laser à distribution Gaussienne. Dans ce type de distribution d'intensité, le rayon effectif ω_0 de la focale laser est défini comme étant la distance à partir du centre du faisceau laser où l'intensité n'est plus que de $1/e^2$ (soit 13.5%) de l'intensité maximale (localisée au centre du faisceau) (voir Figure 1.2).

La distribution gaussienne d'intensité se définit comme suit :

$$I = I_0 \exp\left(\frac{-2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (1.5)$$

où r est la distance radiale à partir du centre du faisceau laser [m];

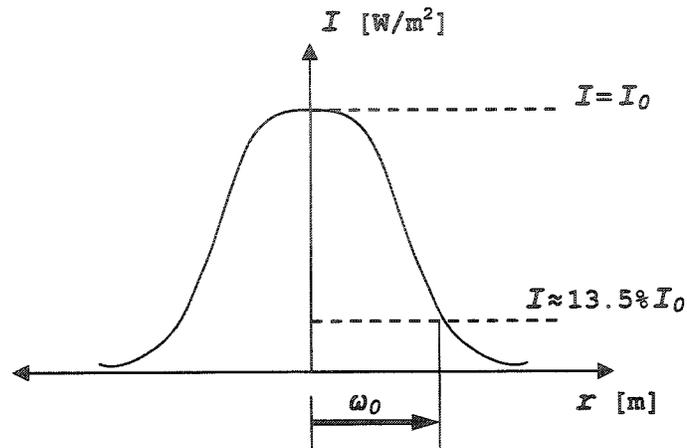


FIG. 1.2 Rayon effectif ω_0

Si le laser frappe une surface très réfléchissante, il faut tenir compte de la réflectivité R de la surface. L'intensité effective I_{eff} devient alors :

$$I_{eff} = (1 - R)I \quad (1.6)$$

Par contre, lors de la déposition de fibres, les propriétés physiques du matériau ainsi que sa réflectivité dépendent directement du procédé LCVD (LONGTIN et al., 2004). Il est donc très difficile d'évaluer la réflectivité réelle au bout de la fibre.

1.2.3 Interdépendance

À cause des couplages complexes des divers phénomènes, le processus de déposition de fibres par HP-LCVD est difficile à analyser uniquement à l'aide d'expressions analytiques. En effet, les paramètres directeurs du procédé sont tous interdépendants (voir Figure 1.3) :

1. En régime limité cinétiquement, le taux de déposition suit une loi d'Arrhenius modifiée comme indiqué par Eq. 1.2. Cette loi dépend de la température à la

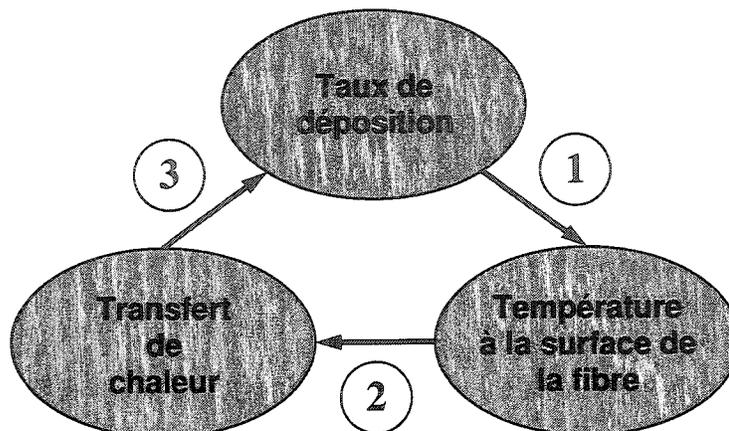


FIG. 1.3 Interdépendance des paramètres directeurs

surface de la fibre à l'endroit où la déposition a lieu.

2. La température à la surface de la fibre dépend des échanges d'énergie par conduction, de l'apport d'énergie du faisceau laser et du transfert de chaleur conjugué entre la fibre et le gaz précurseur.
3. Ces échanges d'énergie sont influencés par l'apport additionnel de matière gouverné par le taux de déposition.

Il devient donc évident que les simulations numériques sont des outils essentiels pour l'étude du procédé HP-LCVD.

1.2.4 Dynamique des fluides

Le procédé HP-LCVD n'est pas uniquement un phénomène chimique, mais aussi un phénomène fluide relié au jet de gaz précurseur. Les mécanismes associés à cet écoulement, tel les échanges de masse et d'énergie, influence directement la concentration du gaz dans la zone de réaction/déposition, ce qui dicte le régime dans lequel le procédé s'effectue tel qu'illustré à la Fig. 1.1).

1.2.5 Équations fondamentales

Équation de continuité

Sous sa forme générale, l'équation de continuité, exprime la conservation de la masse d'un écoulement fluide (RYHMING, 1991) :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{V}) = S_m \quad (1.7)$$

où ρ = Densité du fluide ;
 \vec{V} = Vecteur vitesse du fluide ;
 S_m = Terme source massique ;

Dans le cas d'une géométrie 2D axisymétrique, l'équation de continuité devient :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho v_x) + \frac{\partial}{\partial r} (\rho v_r) + \frac{\rho v_r}{r} = S_m \quad (1.8)$$

où x = Coordonnée axiale ;
 r = Coordonnée radiale ;
 v_x = Vitesse axiale ;
 v_r = Vitesse radiale ;

Pour un fluide incompressible, les changements de densité du fluide dans le temps et dans l'espace peuvent être considérés négligeables.

Équation de la quantité de mouvement

Pour un fluide newtonien, la quantité de mouvement est exprimée sous la forme des équations de Navier-Stokes. Pour le cas particulier d'un écoulement incompressible

dont la viscosité ne change pas dans l'espace, la forme générale de ces équations est (RYHMING, 1991) :

$$\rho \frac{D\vec{V}}{Dt} = -\nabla p + \rho \vec{F} + \nabla^2(\mu \vec{V}) \quad (1.9)$$

Pour des géométries 2D axisymétriques, ces équations prennent la forme suivante :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (\rho v_x) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial x} (r \rho v_x v_x) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r v_x) = -\frac{\partial p}{\partial x} \dots \quad (1.10) \\ & \dots + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial x} \left[r \mu \left(2 \frac{\partial v_x}{\partial x} - \frac{2}{3} (\nabla \cdot \vec{V}) \right) \right] + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \mu \left(\frac{\partial v_x}{\partial r} + \frac{\partial v_r}{\partial x} \right) \right] + F_x \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (\rho v_r) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial x} (r \rho v_x v_r) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r v_r) = -\frac{\partial p}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial x} \left[r \mu \left(\frac{\partial v_r}{\partial x} + \frac{\partial v_x}{\partial r} \right) \right] \dots \quad (1.11) \\ & \dots + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \mu \left(2 \frac{\partial v_r}{\partial r} - \frac{2}{3} (\nabla \cdot \vec{V}) \right) \right] - 2\mu \frac{v_r}{r^2} + \frac{2}{3} \frac{\mu}{r} (\nabla \cdot \vec{V}) + \rho \frac{v_z^2}{r} + F_r \end{aligned}$$

où le terme $\rho v_z^2/r$ représente la force centrifuge (dans la direction radiale r) et

$$\nabla \cdot \vec{V} = \frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_r}{\partial r} + \frac{v_r}{r} \quad (1.12)$$

Équation d'énergie

L'équation générale d'énergie peut s'exprimer sous la forme suivante (FLUENT, 2003) :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho E) + \nabla \cdot (\vec{V}(\rho E + p)) = \nabla \cdot \left(k_{eff} \nabla T - \sum_j h_j \vec{J}_j + (\bar{\tau}_{eff} \cdot \vec{V}) \right) + S_h \quad (1.13)$$

où k_{eff} = Conductivité thermique effective
 (= $k + k_t$ où k_t est la conductivité thermique en régime turbulent);
 \vec{J}_j = Flux de diffusion de l'espèce j ;
 S_h = Terme source thermique (incluant la chaleur provenant
 d'une réaction chimique et autre sources volumiques de chaleur);

Cette équation générale de l'énergie peut être utilisée pour la plupart des types d'écoulements (laminaire ou turbulent, gaz unique ou mélange de gaz, gaz idéal ou incompressible, etc.).

Dans cette équation (1.13), l'énergie interne, E , s'exprime de la façon suivante (FLUENT, 2003) :

$$E = h - \frac{p}{\rho} + \frac{v^2}{2} \quad (1.14)$$

où l'enthalpie sous forme sensible h est définie de la façon suivante pour les gaz idéaux :

$$h = \sum_j Y_j h_j \quad (1.15)$$

et de la façon suivante pour les gaz incompressibles (afin d'éliminer le terme relatif à la pression de l'équation 1.14) :

$$h = \sum_j Y_j h_j + \frac{p}{\rho} \quad (1.16)$$

Dans ces équations (1.15, 1.16),

$$\begin{aligned} Y_j &= \text{Fraction massique de l'espèce } j ; \\ h_j &= \int_{T_{ref}}^T c_p dT ; \end{aligned} \quad (1.17)$$

Dans l'équation d'énergie (1.13), le premier terme de droite représente le transfert d'énergie due à la conduction thermique, le deuxième terme de droite représente le transfert d'énergie due à la diffusion des espèces et le troisième terme de droite représente le transfert d'énergie due à la dissipation visqueuse.

Équation de transport d'espèces

S'il y a plusieurs gaz dans le réacteur HP-LCVD, il faut aussi étudier le phénomène de transport de masse et de diffusion entre les espèces. C'est le cas d'un réacteur HP-LCVD dans lequel on utilise, en plus d'un gaz précurseur, un gaz "tampon" dont le rôle est de réduire la quantité nécessaire de gaz précurseur.

Dans le cas de ce mélange binaire, la conservation de la masse est régie par l'équation de diffusion-convection qui permet de déterminer la fraction massique de chaque espèce, Y_i (FLUENT, 2003) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho Y_i) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} Y_i) = -\nabla \cdot \vec{J}_i + R_i + S_i \quad (1.18)$$

où \vec{J}_i = Flux de diffusion de l'espèce i

(causé par les gradients de concentration d'espèces) ;

R_i = Taux net de production de l'espèce i par réaction chimique ;

S_i = Terme source de création de l'espèce i ;

Dans le cas d'un écoulement laminaire, le flux de diffusion \vec{J}_i est défini de la façon suivante :

$$\vec{J}_i = -\rho D_{i,m} \nabla Y_i \quad (1.19)$$

où $D_{i,m}$ = Coefficient de diffusion de l'espèce i dans le mélange gazeux.

CHAPITRE 2

ÉTAT DE LA QUESTION

La déposition de microstructures par LCVD est un procédé relativement récent comportant encore beaucoup d'aspects mal compris. Puisque ce procédé s'effectue à une échelle microscopique et sur des temps de réaction extrêmement courts, les observations expérimentales portent principalement sur le résultat global du procédé (donc de la fibre déposée) et non sur le processus de formation en lui-même. Il est donc nécessaire d'élaborer des modèles mathématiques et de conduire des simulations numériques, pour mieux comprendre le processus de déposition et ainsi, de mieux contrôler expérimentalement la déposition de fibres afin d'obtenir des microstructures ayant les propriétés physiques voulues.

Le procédé de formation de fibres en continu par HP-LCVD comporte les trois aspects principaux suivants :

- L'injection du gaz précurseur dans la chambre de réaction du réacteur HP-LCVD ;
- L'apport de chaleur en bout de fibre par le faisceau laser ;
- Le phénomène de dissociation/déposition dans la zone de réaction en bout de fibre ;

Plusieurs recherches intégrant des simulations numériques du procédé LCVD se concentrent sur la déposition dans la zone de réaction en analysant la croissance et la forme de la fibre et le transfert de chaleur à travers celle-ci (ARNOLD et al., 1996), (NASSAR et al., 2002), (LAN et al., 2003). Il y a été démontré entre autre, la relation entre la géométrie de la fibre et la distribution de la température à la surface de celle-ci. Par contre, très peu de recherches ont observés les interactions (au

niveau transfert de chaleur et de masse) entre le gaz précurseur (relativement froid) et la zone de réaction/déposition (relativement chaude). Il est pourtant nécessaire d'examiner et de comprendre ce phénomène durant le procédé, car il influence directement la déposition et le taux de croissance de la fibre. Des informations qui s'apparentent à cet aspect se retrouvent dans le domaine des moteurs à combustion où l'on étudie les mécanismes d'injection d'un fluide sous haute-pression (LI et al., 2002), (ABDEL-HAMEED and BELLAN, 2002). Ce principe est similaire à l'injection de gaz précurseur dans le réacteur de HP-LCVD lors de la production de fibres en continu.

YU & DUNCAN ont proposé un premier modèle mathématique du procédé LCVD qui caractérise la convection naturelle lorsqu'un faisceau laser est concentré sur le bout d'une fibre de faible diamètre ($\varnothing < 30\mu\text{m}$) (YU and DUNCAN, 1998). Il y est précisé que la distribution de température sur la surface de la fibre est déterminée par l'apport de chaleur du faisceau laser et par le transfert de chaleur conjugué de la fibre dans le gaz précurseur. Dans ce modèle, on suppose des conditions de fluide incompressible et d'écoulement laminaire en régime permanent. La méthode par éléments finis est utilisée pour solutionner les équations couplées du phénomène. Il y est démontré la présence d'un très fort gradient de température près de la pointe de la fibre dû au transfert de chaleur par conduction du bout de la fibre dans le fluide avoisinant. Les effets de la radiation, émise en bout de fibre, sur la distribution de température à la surface sont négligeables car ceux-ci provoquent une baisse de température relativement faible ($\sim 50^\circ\text{C}$) comparativement aux larges gradients de température situés au bout de la fibre (pouvant atteindre environ 900°C). On y démontre également le mouvement du fluide dans le voisinage du bout de la fibre dû à la convection naturelle induite par les gradients de température. Ce phénomène est comparé au modèle classique de l'écoulement externe avec convection naturelle autour d'un cylindre. Cependant, la simulation numérique 3D a été réalisée avec

un maillage ayant très peu d'éléments (9965 éléments pour un volume d'environ $11400D^3$ où D est le diamètre de la fibre), ce qui est insuffisant pour un problème de cette complexité. Une façon de contourner cette difficulté est de profiter de la symétrie axiale. Ceci permet la création d'un maillage plus concentré sans pour autant alourdir les calculs. Cette étude a tout de même montré que les effets de la radiation thermique peuvent être négligés et qu'il existe une relation linéaire entre la température au bout de la fibre et la puissance de l'intensité laser.

Toutefois, l'étude se limite à l'analyse du phénomène de convection lors d'une déposition dans un volume de gaz stagnant et non dans un environnement où le gaz précurseur est injecté, pouvant ainsi produire un courant de convection forcée susceptible d'affecter la déposition. Dans la production d'une fibre de façon continue, il est nécessaire d'injecter le gaz précurseur de façon continue afin de pallier à l'appauvrissement de celui-ci en bout de fibre causé par la déposition.

Afin d'analyser l'influence du mouvement du fluide précurseur sur le transfert de chaleur et de masse dans la zone de déposition, une modélisation du système de déposition de film par LCVD, dont le gaz précurseur est injecté sous forme de jet, a été réalisé par (DUTY et al., 2003). Dans ce modèle, on tient compte des effets thermiques tels que de la distribution Gaussienne du faisceau laser et du refroidissement par convection forcée par le jet de gaz. Il est montré que le jet de gaz est un mécanisme efficace pour augmenter la concentration de précurseur sur le substrat et pour induire un refroidissement à la surface de celui-ci (une baisse de température à la surface du substrat de 15 à 20% fût observée). Par contre, l'utilisation d'un taux d'écoulement volumique élevé (jusqu'à 5000 sccm) à eu pour effet de réduire le taux de déposition lorsque le procédé est en régime limité cinétiquement, car le jet de fluide pouvait atteindre une vitesse de 50 m/s et frapper directement le substrat. Il y est donc apparent qu'une configuration d'un jet de gaz à angle n'améliore pas le procédé de fabrication de fibres par HP-LCVD.

Contrairement à plusieurs modèles consistant à simuler la croissance d'une fibre à partir du substrat, un modèle géométrique incluant déjà une fibre (sous forme simplifiée) a été élaboré afin d'étudier le phénomène de déposition à l'extrémité de la fibre (SHAARAWI et al., 2000). Dans cette étude, on détermine tout d'abord les différents états d'équilibre du gaz précurseur lors de la déposition en utilisant les équilibres thermodynamiques. Ensuite, un modèle de dynamique des fluides couplé avec la cinétique de la réaction chimique est utilisé afin d'analyser le taux de déposition et les phénomènes de transfert de chaleur et de masse qui influencent le procédé de déposition. Ce modèle est l'un des rares à prendre en compte l'effet du laser focalisé au bout de la fibre plutôt qu'à la surface du substrat, ce qui est plus représentatif de la configuration de fabrication des fibres en mode continu. Les résultats montrent la distribution axiale et radiale de la température dû à l'effet du laser au bout de la fibre. La trajectoire et la concentration du gaz précurseur (près du bout de la fibre) lors de la déposition en régime permanent y sont aussi discutées. Il aurait par contre été intéressant d'observer les mêmes phénomènes dans le cas d'un apport forcé de gaz précurseur (comme à l'aide d'un jet de gaz) et d'étudier les influences de la convection forcée ainsi induite. De plus, lors des simulations numériques, aucune étude n'a été faite sur la convection produite par le très fort gradient de température au bout de la fibre, ni sur la dynamique du fluide qui en résulte. Sur le plan numérique, on estime que les maillages utilisés sont trop grossiers pour pouvoir simuler finement les détails du phénomène (le taux de déposition radial est considéré, d'après les calculs, comme représentant à lui seul plus de 50% de la déposition totale, ce qui semble une trop grande proportion.)

Pour optimiser le procédé LCVD, c'est-à-dire le taux de déposition de fibres en continu, un modèle doit réunir les aspects suivants :

- Étude du procédé en régime limité cinétiquement, car le taux de déposition y est plus facilement contrôlable qu'en régime limité par transfert de masse ;

- Modélisation du faisceau laser focalisé sur le bout de la fibre, afin d'être en mesure de produire des fibres de façon continue ;
- Utilisation d'un jet pour l'apport de gaz précurseur, afin d'en augmenter la concentration au bout de la fibre ;
- Étude de la convection forcée induite par le jet de gaz, afin d'en examiner les effets sur la distribution de température à la surface de la fibre et donc sur le taux de déposition ;
- Étude des phénomènes de transfert de chaleur et de masse principalement en bout de fibre et non sur le substrat, puisqu'en déposition en continu, le substrat devient sans importance ;
- Étude du phénomène de déposition sous haute pression, car le taux de déposition y est plus élevé ;
- Étude de l'appauvrissement du gaz précurseur lors de sa dissociation, afin d'être en mesure de mieux contrôler l'apport de gaz et ainsi éviter une restriction de la déposition dû à une trop faible concentration du gaz en question ;

En présence de convection forcée dû à un jet de gaz précurseur, on peut négliger la convection naturelle car ses effets sont beaucoup moins importants que ceux induit par la convection forcée. De plus, il a été démontré que la radiation peut aussi être négligé car la surface radiante est très petite et les autres phénomènes de transfert de chaleur deviennent beaucoup plus important (YU and DUNCAN, 1998).

Basé sur l'importance des aspects mentionnés, la présente étude comporte deux simulations numériques différentes dans le but d'une meilleure compréhension de la déposition de fibres par LCVD :

1. Modélisation globale du phénomène afin d'étudier le comportement d'un mélange gazeux autour d'une fibre chauffée par le bout et détermination des conditions frontières d'un volume de contrôle plus restreint.

2. Modélisation spécifique du phénomène dans un volume de contrôle plus restreint afin d'évaluer, entre autre, l'impact de l'éjection d'hydrogène durant la déposition de fibre de carbone à partir du méthane ;

CHAPITRE 3

SIMULATION GLOBALE

3.1 Description du design de la chambre de réaction

Les simulations numériques réalisées dans le cadre de la présente étude sont basées sur le design spécifique d'un réacteur HP-LCVD, en construction au Laboratoire de Fabrication en Forme Libre (LFFL) de l'École Polytechnique de Montréal. Elles visent l'étude des phénomènes fluidiques et thermiques dans la configuration proposée et illustrée à la Fig. 3.1.

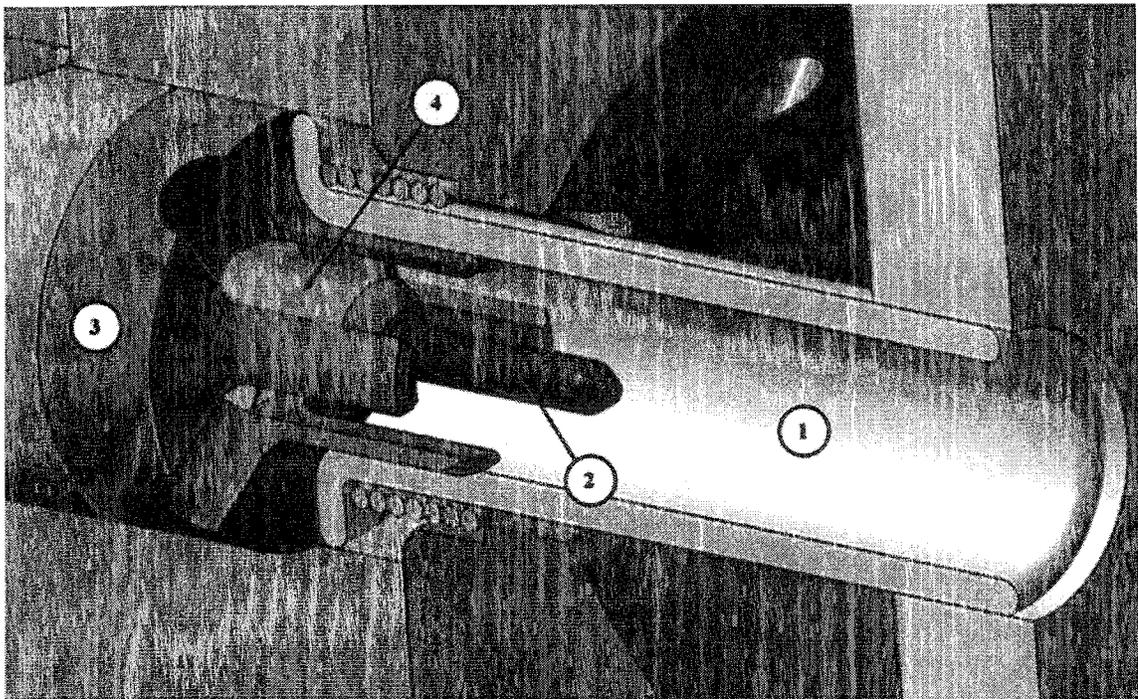


FIG. 3.1 Chambre de réaction

La chambre de réaction est composée de deux pièces principales :

- (1) - Tube de quartz ;
- (2) - Microtube en acier ;

Le gaz précurseur s'écoule à l'intérieur du microtube et prend une forme annulaire autour de la fibre dans le réacteur (en mode de déposition continue). L'écoulement secondaire se situe entre la paroi intérieure du tube de quartz et la paroi extérieure du microtube et sert de support. Le tube de quartz permet de contenir les gaz durant le procédé tout en laissant passer le faisceau d'un laser secondaire (aidant à maintenir la température en bout de fibre à un niveau adéquat). Le microtube d'acier quant à lui sert de guide à l'écoulement du gaz précurseur en limitant le mélange de ce gaz avec le gaz secondaire de support en dirigeant le jet dans la chambre de réaction.

Bien que différentes combinaisons de gaz précurseur/gaz de support peuvent être utilisées, nous considérons ici le cas du méthane (CH_4) (précurseur) avec l'argon (Ar) (gaz secondaire de support).

Puisque la chambre de réaction est relativement longue par rapport à la longueur de fibre, les phénomènes et interactions entre les gaz à la sortie de la chambre ne sont pas spécifiquement étudiés dans la présente étude car ils n'ont pas d'impact significatif sur le comportement dans la zone de déposition (en bout de fibre).

Le procédé de déposition dans le réacteur s'effectue de façon continue. Le dispositif est donc construit de façon à ce que le bout de la fibre reste immobile relativement à la focale du faisceau laser. À ces fins, la fibre sera tirée (pour ensuite être emmagasinée) dans la direction inverse à la déposition axiale et ce, à une vitesse égale à celle-ci.

3.2 Théorie, hypothèses et propriétés des matériaux

Les écoulements principal et secondaire sont considérés comme étant complètement développés lorsqu'ils arrivent au bout du microtube, dans le voisinage de la région de déposition. Le domaine à étudier se compose de la paroi intérieure du tube de quartz et du bout du microtube (tel qu'illustré à la Fig. 3.2).

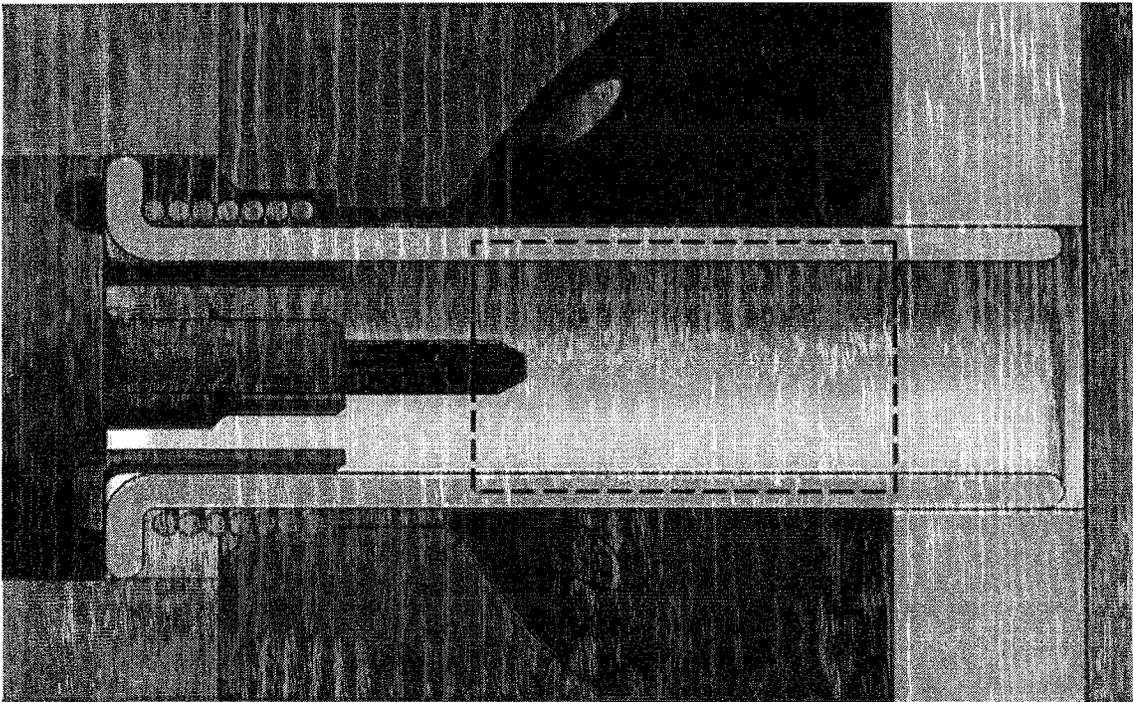


FIG. 3.2 Délimitation du volume de contrôle

Le schéma de la Fig. 3.3 illustre la configuration des deux écoulements en relation avec les principaux constituants de la chambre de réaction. Les éléments de ce schéma sont donnés comme :

- (1) - Tube de quartz ($I.D. = 6mm$);
- (2) - Microtube en acier ($O.D. = 1.5mm, I.D. = 340\mu m$);
- (3) - Fibre déposée (position fixe en mode continu);

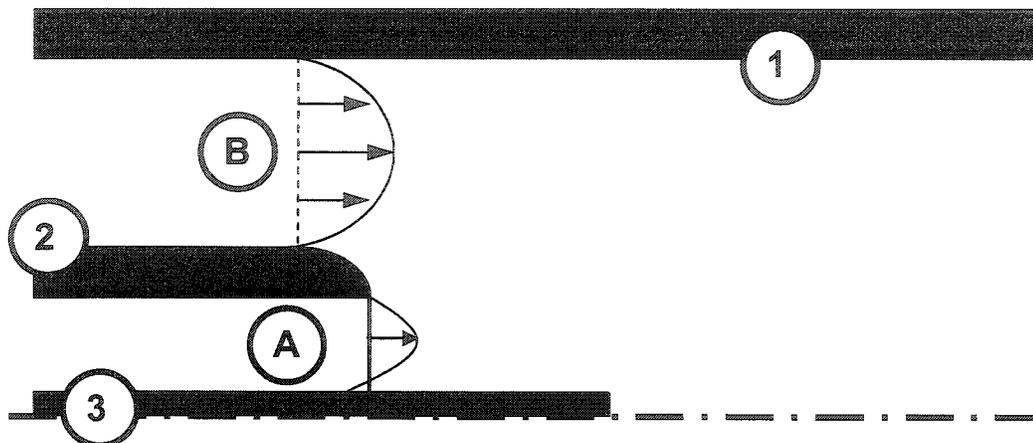


FIG. 3.3 Définition schématique des écoulements

- (A) - Écoulement principal de méthane (CH_4);
- (B) - Écoulement secondaire d'argon (Ar);

3.2.1 Caractérisation des écoulements

À l'intérieur de la chambre de réaction, les écoulements sont considérés incompressibles car pour les paramètres utilisés, le nombre de Mach est inférieur à 0.3. De plus, l'on considère les forces de gravité négligeables par rapport aux forces d'inerties (puisque le débit de gaz est important) et on suppose un écoulement sans composante circonférentielle.

Profil de vitesse de l'écoulement secondaire

L'écoulement secondaire de support est un écoulement annulaire entre deux parois tubulaires concentriques et fixes (la paroi intérieure du tube de quartz et la paroi extérieure du microtube). À son arrivée dans la chambre de réaction, l'écoulement secondaire est considéré :

- complètement développé ;
- visqueux (condition d'adhérence) ;
- laminaire ;
- axisymétrique ($\partial/\partial\theta = 0$) ;
- incompressible ;

Pour l'écoulement secondaire entre deux parois fixes, nous avons les conditions frontières suivantes :

- Vitesse nulle à la paroi supérieure fixe (paroi inférieure du tube de quartz) :
 $u(r = a) = 0$;
- Vitesse nulle à la paroi inférieure fixe (paroi supérieure du microtube) :
 $u(r = b) = 0$;

Le profil de vitesse à l'entrée de la chambre de réaction n'est donc fonction que de la position radiale ($u = u(r)$). L'équation de la quantité de mouvement en coordonnées cylindriques (équation 1.13) se résume ainsi à :

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(r \mu \frac{du}{dr} \right) = \frac{dp}{dx} = \beta \quad (3.1)$$

où β est la constante de séparation des variables.

En intégrant deux fois l'équation (3.1) et en utilisant les deux conditions limites de non-glissement aux parois afin de déterminer les constantes d'intégration, nous trouvons l'équation du profil de vitesse pour l'écoulement secondaire ((WHITE, 1994), p.330) :

$$u_{Ar}(r) = \frac{-\beta}{4\mu} \left[a^2 - r^2 + \frac{a^2 - b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{a}{r}\right) \right] \quad (3.2)$$

où

$u_{Ar}(r)$ = Vitesse de l'écoulement secondaire à l'entrée de la chambre de réaction ;

a = Rayon de la paroi supérieure (= rayon intérieur du tube de quartz) ;

b = Rayon de la paroi inférieure (= rayon supérieur du microtube) ;

r = Position radiale ;

Le terme $-\beta/4\mu$ est négatif car physiquement, nous devons avoir un gradient de pression négatif ($dp/dx < 0$) dans la direction positive de l'écoulement.

Pour exprimer l'équation du profil de vitesse en fonction de la vitesse maximale, nous utilisons la relation qui définit la position radiale r'_{Ar} de cette vitesse maximale ((WHITE, 1994), p.331) :

$$r'_{Ar} = \left[\frac{a^2 - b^2}{2 \ln(a/b)} \right]^{1/2} \text{ pour } u = u_{\max} \quad (3.3)$$

Pour un écoulement annulaire, la vitesse maximale est située plus près du rayon de la paroi inférieure comparativement à un écoulement entre deux plaques parallèles fixes, où la vitesse maximale est exactement à mi-chemin entre les deux plaques. Par contre, plus la distance ($a - b$) diminue, plus la position de la vitesse maximale approchera le point milieu entre les parois.

En utilisant la valeur r'_{Ar} dans l'équation (3.2) pour $u = u_{\max}$:

$$u_{\max} = \frac{-\beta}{4\mu} \left[a^2 - (r'_{Ar})^2 + \frac{a^2 - b^2}{\ln(b/a)} \ln \left(\frac{a}{r'_{Ar}} \right) \right] \quad (3.4)$$

Ceci permet de trouver la valeur de la constante β en fonction de la vitesse maximale u_{\max} et de sa position r'_{Ar} :

$$-\beta = \frac{u_{\max} * 4\mu}{\left[a^2 - (r'_{Ar})^2 + \frac{a^2-b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{a}{r'_{Ar}}\right) \right]} \quad (3.5)$$

En substituant finalement la valeur de $-\beta$ et de r'_{Ar} dans l'équation (3.2), on obtient l'équation du profil de vitesse de l'écoulement secondaire en fonction de la position radiale :

$$u_{Ar}(r) = u_{\max} \frac{\left[a^2 - r^2 + \frac{a^2-b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{a}{r}\right) \right]}{\left[a^2 - \left(\frac{a^2-b^2}{2*\ln(a/b)} \right) + \frac{a^2-b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(a / \left(\frac{a^2-b^2}{2*\ln(a/b)} \right)^{1/2} \right) \right]} \quad (3.6)$$

où

$u_{Ar}(r)$ = Vitesse de l'écoulement secondaire à l'entrée de la chambre de réaction ;

u_{\max} = Vitesse maximale de l'écoulement secondaire à l'entrée de la chambre de réaction ;

a = Rayon de la paroi supérieure (= rayon intérieur du tube de quartz) ;

b = Rayon de la paroi inférieure (= rayon supérieur du microtube) ;

r = Position radiale ;

Dans le cas présent de l'écoulement secondaire où $a = 3mm$ et $b = 0.75mm$, la position radiale r'_{Ar} de la vitesse maximale est équivalente à 93% de la position médiane d'un profil purement parabolique. Nous considérons donc que l'écoulement secondaire est essentiellement parabolique et que sa vitesse est maximale à la position médiane. Cette simplification influence très peu le comportement des écoulements dans la chambre de réaction. En effet, les interactions entre les écoulements n'ont lieu que dans leur périphérie. Si l'on considère ainsi que $r'_{Ar} = (a + b)/2$, l'équation

(3.6) peut se simplifier à :

$$u_{Ar}(r) = \frac{u_{Ar(\max)}}{\left[a^2 - \frac{(a+b)^2}{4} + \frac{a^2-b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{2a}{a+b}\right) \right]} \left[a^2 - r^2 + \frac{a^2-b^2}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{a}{r}\right) \right] \quad (3.7)$$

Vitesse moyenne de l'écoulement secondaire

L'écoulement secondaire composé d'argon agit comme gaz de support et de guidage afin de minimiser la diffusion de l'écoulement principal constitué de méthane. Sans cet écoulement secondaire, l'écoulement principal se diffuserait inutilement dans toute la chambre de réaction dans la mesure où le méthane n'est nécessaire que dans le voisinage de la fibre.

Le microtube d'acier est donc utilisé en partie pour séparer les deux écoulements et en empêcher le mélange avant leur arrivée dans la chambre de réaction. Ce microtube confine donc d'une part l'écoulement annulaire principal (CH_4) par sa paroi intérieure (I.D. $\phi 340\mu m$) et d'autre part, l'écoulement annulaire secondaire (Ar) par sa paroi extérieure (O.D. $\phi 1.5mm$). Afin de conserver l'écoulement principal dans le voisinage de la fibre, on vise que lorsque le méthane sort du microtube, que la diffusion soit limitée à un maximum de 80% du diamètre de ce microtube, soit jusqu'à un diamètre diffusé maximal de $\phi 1.2mm$) (voir Figure 3.4).

Dans le cadre de cette étude, on considère que le diamètre de la fibre déposée est de $20\mu m$ (valeur évaluée en fonction des paramètres utilisés dans l'étude, en accord avec les recherches effectuées au Laboratoire de Fabrication en Forme Libre de l'École Polytechnique de Montréal).

Lors de la diffusion de l'écoulement principal (CH_4), le changement de vitesse de

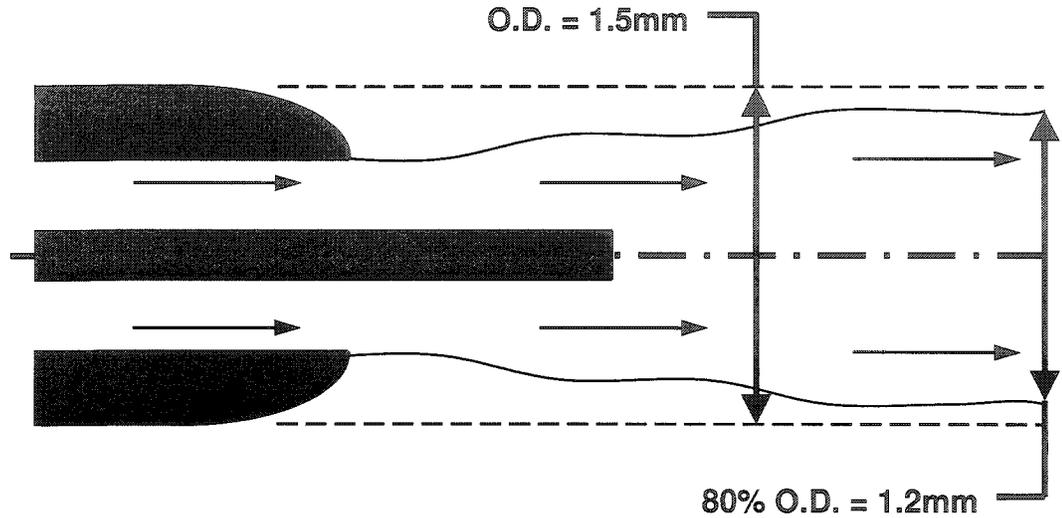


FIG. 3.4 Diffusion maximale tolérée

l'écoulement est inversement proportionnel au changement de section de celui-ci :

$$A_1 = \frac{\pi}{4} D_1^2 = \frac{\pi}{4} (I.D._{MT}^2 - D_f^2) \quad (3.8)$$

$$A_2 = \frac{\pi}{4} D_2^2 = \frac{\pi}{4} (0.8 * O.D._{MT})^2 = \frac{\pi}{4} (0.64 * O.D._{MT}^2) \quad (3.9)$$

où

A_1 = Section initiale de l'écoulement principal ;

A_2 = Section maximale permise de l'écoulement principal ;

$I.D._{MT}$ = Diamètre intérieur du microtube ($= 340E - 06m$) ;

D_f = Diamètre de la fibre déposée ($= 20E - 06m$) ;

$O.D._{MT}$ = Diamètre extérieur du microtube ($= 1.5E - 03m$) ;

et

$$\frac{u_2}{u_1} \propto \frac{A_1}{A_2} \Rightarrow u_2 = \frac{A_1}{A_2} u_1 = \frac{(I.D._{MT}^2 - D_f^2)}{0.64 * O.D._{MT}^2} * u_1 = \frac{u_1}{12.5} \quad (3.10)$$

où

u_1 = Vitesse moyenne initiale de l'écoulement principal ;

u_2 = Vitesse moyenne maximale permise pour l'écoulement principal ;

C'est-à-dire que la diffusion maximale de l'écoulement principal (CH_4) provoquera un ralentissement d'un facteur de 12.5 fois sa vitesse moyenne initiale.

Pour que l'écoulement secondaire (Ar) soit en mesure de guider (et porter) l'écoulement principal et puisqu'il a une section beaucoup plus importante que l'écoulement principal (donc moins sujet à ralentir par rapport à l'autre écoulement), on estime que la vitesse moyenne initiale de l'écoulement secondaire nécessaire pour porter l'écoulement principal doit être équivalente à la vitesse moyenne de l'écoulement principal après diffusion maximale :

$$u_{Ar(moy)} = u_2 = \frac{u_1}{12.5} = \frac{u_{CH_4(moy)}}{12.5} \quad (3.11)$$

Vitesse moyenne de l'écoulement principal

La vitesse moyenne de l'écoulement principal (CH_4) est définie principalement en fonction du débit de méthane voulu lors du procédé HP-LCVD et de la condition essentielle de maintenir un écoulement laminaire. Cette exigence découle du fait que cet écoulement principal doit être acheminé correctement jusqu'au bout de la fibre (lieu de réaction/déposition), et d'éviter les instabilités qui risqueraient de briser la fibre car celle-ci est principalement supportée par l'écoulement principal de méthane. Pour garantir cette condition, on pose que le nombre maximal de Reynolds (global) acceptable est d'environ 2000.

À une pression d'opération de 50bar et une température initiale de 193.15K ($-80^\circ C$), le méthane possède les propriétés suivantes (NIST, 2003) :

$$\rho_{CH_4} = 179.505 kg/m^3 ;$$

$$\mu_{CH_4} = 1.7428E - 05 \text{ kg/m} \cdot \text{s};$$

Avec ces propriétés, la vitesse moyenne maximale $u_{CH_4(moy,MAX)}$ de l'écoulement de méthane afin que celui-ci demeure laminaire, soit $Re_{eff} \leq 2000$, est donné par la relation :

$$u_{CH_4(moy,MAX)}(\max) = \frac{Re_{D_h}(\max) \mu_{CH_4}}{\rho_{CH_4} D_h(CH_4)} \quad (3.12)$$

Dans un tube annulaire, la longueur caractéristique pour le calcul du nombre de Reynolds est appelé le diamètre hydraulique D_h ((WHITE, 1994), p.331) :

$$D_h = 2(a - b) \quad (3.13)$$

où

D_h = Diamètre hydraulique ;

a = Rayon de la paroi supérieure à l'écoulement ;

b = Rayon de la paroi inférieure à l'écoulement ;

Pour un écoulement dans un tube, le nombre de Reynolds relié au diamètre hydraulique est défini ainsi :

$$Re_{D_h} = \frac{\rho u_{moy} D_h}{\mu} \quad (3.14)$$

où

ρ = Densité du fluide ;

u_{moy} = Vitesse moyenne du fluide ;

D_h = Diamètre hydraulique ;

μ = Viscosité du fluide ;

Pour le cas d'une fibre déposée de $20\mu m$ de diamètre située dans un microtube de

340 μm de diamètre interne, le diamètre hydraulique équivalent est :

$$D_{h(CH_4)} = 2(a - b) = 2(340\mu m/2 - 20\mu m/2) = 320\mu m \quad (3.15)$$

La relation entre le nombre de Reynolds effectif et le nombre de Reynolds équivalent lorsqu'on utilise le diamètre hydraulique comme longueur caractéristique s'exprime par :

$$Re_{eff} = \frac{1}{\zeta} Re_{D_h} \quad (3.16)$$

où ζ est un facteur de conversion pour le diamètre hydraulique.

Ce facteur de conversion se définit comme ((WHITE, 1994), p.331) :

$$\zeta = \frac{(a - b)^2(a^2 - b^2)}{a^4 - b^4 - (a^2 - b^2)/\ln(a/b)} \quad (3.17)$$

Si a est égal à 340 $\mu m/2$ et b est égal à 20 $\mu m/2$, alors ζ est égal à 1.3592. À l'aide de la relation (3.16), l'on trouve :

$$Re_{D_h(CH_4,MAX)} = 2718$$

Ainsi, à l'aide de l'équation (3.14), du diamètre hydraulique $D_{h(CH_4)}$ et des propriétés physiques du méthane, l'on trouve que la vitesse moyenne maximale permise pour l'écoulement principal afin qu'il demeure laminaire est :

$$u_{CH_4(moy,MAX)} = 0.825m/s$$

Vitesse maximale de l'écoulement secondaire

Comme défini par l'équation (3.11), le rapport accepté entre la vitesse moyenne du méthane et celle de l'argon est de 12.5. Ceci donne donc une vitesse moyenne

maximale pour l'écoulement secondaire de :

$$u_{Ar(moy,MAX)} = 0.066m/s$$

À une pression d'opération de $50bars$ et une température initiale de $193.15K(-80^{\circ}C)$, l'argon possède les propriétés suivantes (NIST, 2003) :

$$\rho_{Ar} = 149.9245kg/m^3 ;$$

$$\mu_{Ar} = 1.7929E - 05kg/m \cdot s ;$$

Dans le cas de l'écoulement secondaire d'argon, le diamètre hydraulique $D_{h(Ar)}$ est de $4.5mm$ et le facteur de conversion ζ est de 1.4564 . À l'aide des propriétés de l'argon et des équations (3.14 et 3.16), l'on trouve un nombre de Reynolds effectif $Re_{eff(Ar)}$ maximal de 1705 ce qui démontre que l'écoulement secondaire d'argon est lui aussi laminaire.

Pour trouver la relation entre la vitesse moyenne et la vitesse maximale d'un écoulement annulaire à profil parabolique, l'on peut exprimer la vitesse moyenne ainsi :

$$u_{moy} = \frac{1}{A} \int u dA = \frac{1}{\pi (a^2 - b^2)} \int_b^a u(r) 2\pi r dr \quad (3.18)$$

En utilisant l'équation (3.7) dans l'équation (3.18) pour la vitesse moyenne, on trouve :

$$u_{moy} = \frac{2 U_{\max} \left(-2b^2 \ln \left(\frac{a}{b} \right) + (a^2 - b^2) \left(1 + \ln \left(\frac{b}{a} \right) \right) \right)}{(a - b) \left((3a + b) \ln \left(\frac{b}{a} \right) + 4(a + b) \ln \left(\frac{2a}{a+b} \right) \right)} \quad (3.19)$$

Ainsi, pour a étant égal au rayon intérieur du tube de quartz ($3mm$) et b égal au rayon extérieur du microtube ($0.75mm$), nous obtenons la relation suivante :

$$u_{moy} = 0.662433u_c(\max) \approx \frac{2}{3}u_{\max} \quad (3.20)$$

Donc, la vitesse maximale de l'écoulement secondaire à l'entrée de la chambre de réaction est estimée à :

$$u_{Ar(MAX)} = \frac{3}{2}u_{Ar(moy)} = \frac{3}{2}(0.066m/s) \approx 0.1m/s$$

Profil de vitesse de l'écoulement primaire

L'écoulement principal est une combinaison d'un écoulement de Couette (entraînement du fluide par une paroi mobile) et d'un écoulement de Hagen-Poiseuille (entraînement du fluide par un gradient de pression).

Le profil de vitesse de cet écoulement dépend de la vitesse de tirage de la fibre et de la vitesse conférée par le gradient de pression. La façon dont ces deux phénomènes interagissent dépend entre autre de la viscosité du fluide et de l'ordre de grandeur des vitesses entre elles.

Comme pour le cas de l'écoulement annulaire secondaire, la valeur maximale de la vitesse n'est normalement pas située à la même position que pour un écoulement parabolique entre deux plaques planes et fixes. Par contre, comme décrit un peu plus loin, on suppose pour le cas présent que la valeur maximale sera effectivement située à la valeur médiane mais seulement pour le cas des vitesses d'écoulement décrites précédemment.

Tout comme pour l'écoulement secondaire à son arrivée dans la chambre de réaction, l'écoulement principal est considéré

- complètement développé ;
- visqueux (condition d'adhérence) ;
- laminaire ;

- axisymétrique ;
- incompressible ;

De même, l'on considère les forces de gravité négligeables par rapport aux forces d'inerties (puisque le débit de gaz est important) et on suppose un écoulement sans composante circonférentielle.

Afin de trouver le profil de vitesse de l'écoulement principal, l'on procède de la même façon que pour l'écoulement secondaire (voir équation 3.1). Dans le cas de l'écoulement principal, nous avons les conditions frontières suivantes :

- Vitesse nulle à la paroi fixe (paroi intérieure du microtube) : $u(r = a) = 0$;
- Vitesse de la paroi mobile (vitesse de tirage de la fibre) : $u(r = b) = V_f$;

En intégrant l'équation générale de continuité (3.1) et en utilisant les conditions frontières afin de déterminer les constantes d'intégration, nous obtenons l'équation générale de la vitesse pour l'écoulement principal :

$$u_{CH_4}(r) = \frac{\beta}{4\mu} \left[a^2 - r^2 - (a^2 - b^2) \frac{\ln(a/r)}{\ln(a/b)} \right] + V_f \frac{\ln(a/r)}{\ln(a/b)} \quad (3.21)$$

où

$u_{CH_4}(r)$ = Vitesse de l'écoulement principal à l'entrée de la chambre de réaction ;

β = Constante attribuable à la perte de charge ;

μ = Viscosité de l'écoulement de méthane à l'entrée de la chambre de réaction ;

a = Paroi supérieure de l'écoulement (= rayon intérieur du microtube) ;

b = Paroi inférieure de l'écoulement (= rayon de la fibre) ;

r = Position radiale ;

Pour l'écoulement principal, l'on ne peut exprimer explicitement une équation générale du profil de vitesse en fonction uniquement des mêmes paramètres que pour l'écoulement secondaire puisque dans ce cas-ci, la position radiale r'_{CH_4} de la vitesse maximale est aussi dépendante de l'interaction entre la vitesse maximale $u_{CH_4(max)}$ et la vitesse de tirage de la fibre V_f et non seulement des dimensions du canal de l'écoulement.

Par contre, à l'aide d'une méthode essais-erreurs, la position radiale pour le cas présent a été évaluée comme étant égale à la moitié du jeu entre les parois de l'écoulement, soit :

$$r'_{CH_4} = (a - b)/2 \quad (3.22)$$

où

r'_{CH_4} = Position radiale de la vitesse maximale pour l'écoulement principal ;

a = Paroi supérieure de l'écoulement principal (= rayon intérieur du micro-tube) ;

b = Paroi inférieure de l'écoulement principal (= rayon de la fibre) ;

Ainsi, en utilisant l'équation (3.22) et l'équation (3.21) pour $u_{CH_4 \max} = u(r'_{CH_4})$, l'on peut trouver la relation explicitant la constante β et ainsi la substituer dans l'équation générale (3.21), ce qui donne :

$$u_{CH_4}(r) = \left(u_{CH_4(max)} - V_f \frac{\ln(2a/(a-b))}{\ln(a-b)} \right) * \dots \quad (3.23)$$

$$\dots \frac{\left[a^2 - r^2 - (a^2 - b^2) \frac{\ln(a/r)}{\ln(a/b)} \right]}{\left[a^2 - \frac{1}{4}(a-b)^2 - (a^2 - b^2) \frac{\ln(2a/(a-b))}{\ln(a-b)} \right]} + V_f \frac{\ln(a/r)}{\ln(a/b)}$$

La vitesse maximale $u_{CH_4(max)}$ de l'écoulement principal a été estimée à $1m/s$ afin d'assurer un apport adéquat de gaz précurseur en bout de fibre durant le procédé de déposition. Cette estimation est considéré raisonnable compte tenu du fait que la vitesse moyenne maximale permise $u_{CH_4(moy,MAX)}$ afin de rester en régime laminaire

est de $0.825m/s$.

3.2.2 Géométrie du bout de la fibre et focale laser

D'après les observations expérimentales, les fibres de carbone déposées dans un réacteur HP-LCVD ont généralement un bout à forme ellipsoïdale (FAUTEUX et al., 2004) dû principalement à la distribution d'énergie d'un faisceau laser à profil Gaussien.

De plus, la focale laser ne peut être définie de façon précise car le faisceau ne possède pas de diamètre défini (il converge à l'endroit de la focale). Expérimentalement, la focale laser est plutôt une "zone" focale plutôt qu'un point précis.

Les effets d'une géométrie distincte pour l'extrémité de la fibre disparaissent très rapidement lorsqu'on s'éloigne de cette extrémité. Dans le contexte d'une analyse globale de la chambre de réaction, il est raisonnable de modéliser le bout de la fibre comme étant totalement plat. La focale laser est modélisée comme étant du même diamètre que la fibre et positionnée exactement à son extrémité. Dans ce modèle, la surface entière du bout de la fibre reçoit la totalité de l'énergie focalisée du faisceau laser.

3.2.3 Propriétés physiques

Propriétés initiales

Initialement, les deux écoulements (méthane et argon) sont à une température de $193.15K(-80^{\circ}C)$ et une pression de $50bar$. Sous ces conditions, les propriétés générales de ces fluides sont résumées dans le tableau 3.1 (NIST, 2003).

PROPRIÉTÉS	ARGON	MÉTHANE
Densité : [kg/m ³]	149.9245	179.505
Chaleur spécifique : [J/kg-K]	805.534	27001.02
Conductivité thermique : [W/m-K]	0.0160219	0.07384
Viscosité : [kg/m-s]	1.7929E-05	1.7428E-05

TAB. 3.1 Propriétés à $T = 193.15K$ ($-80^{\circ}C$) et $p = 50bar$

Écoulement principal

L'écoulement principal de méthane (CH_4) est à pression constante ($p = 50 bar$) et à température variable à l'intérieur de la chambre de réaction. Les figures suivantes (Figure 3.5, 3.6, 3.7 et 3.8) démontrent le comportement des propriétés du méthane sous-pression (NIST, 2003) lorsque celui-ci est chauffé à partir de sa température initiale de $T = 193.15K$. Initialement, le méthane est à l'état super-critique (température critique $T_c = 190.564K$), d'où l'importance de comprendre le comportement de ses propriétés lorsque celui-ci est chauffé.

Écoulement secondaire

L'écoulement secondaire d'argon (Ar), quant à lui, est considéré à pression et à température constante (voir tableau 3.1 pour $p = 50 bar$, $T = 193.15K$). En effet, celui-ci ne ressent pas les effets de la chaleur apportée par le faisceau laser car celle-ci est complètement dissipée à l'intérieur de l'écoulement principal de méthane.

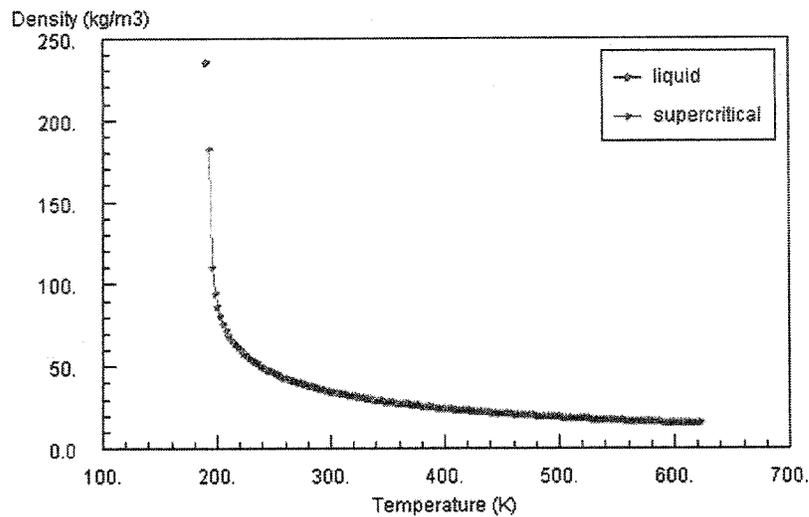


FIG. 3.5 Densité isobare du méthane (NIST, 2003)

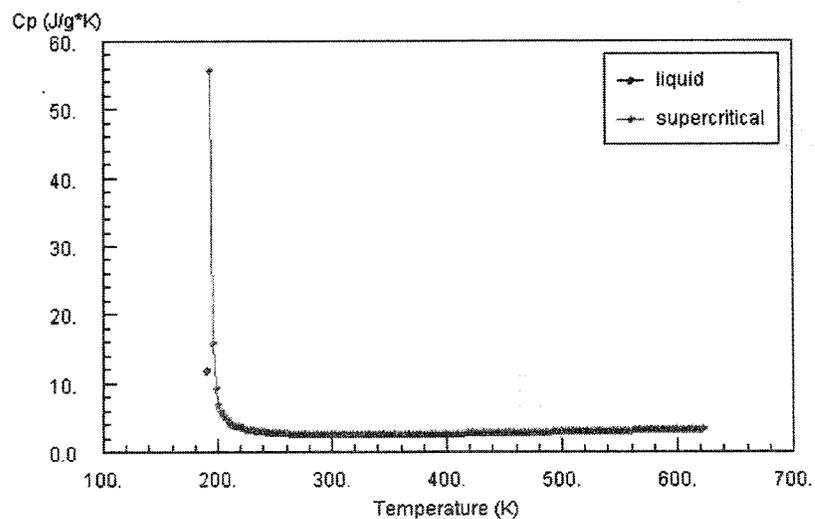


FIG. 3.6 Chaleur spécifique isobare du méthane (NIST, 2003)

Mélange méthane-argon

Après leur arrivée dans la chambre de réaction, l'écoulement principal et secondaire entrent en contact et se mélangent. Puisque les effets de la chaleur provenant du faisceau laser sont dissipés totalement à l'intérieur de l'écoulement principal, nous

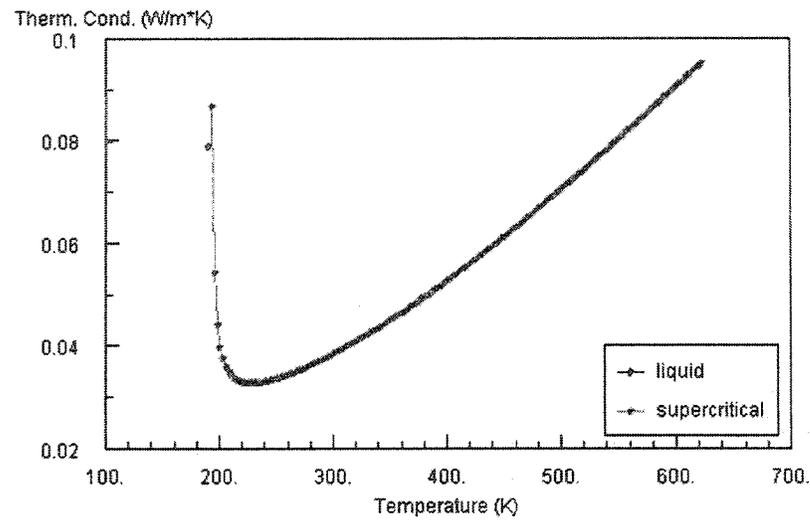


FIG. 3.7 Conductivité thermique isobare du méthane (NIST, 2003)

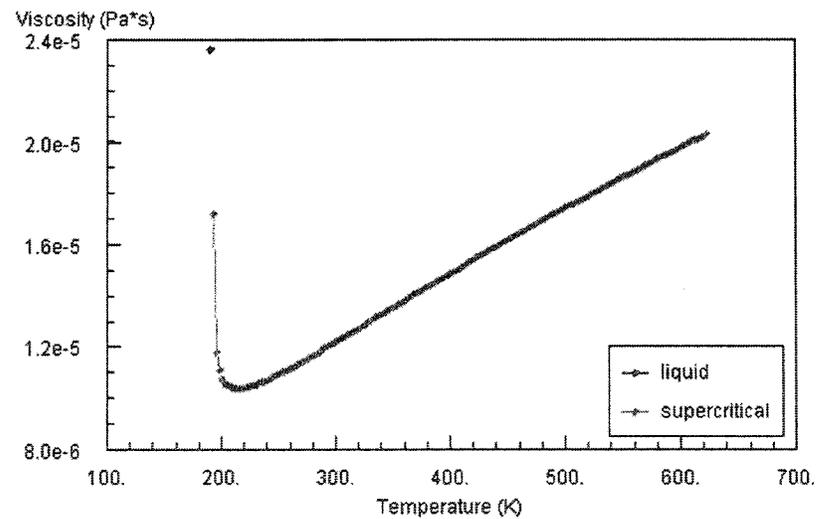


FIG. 3.8 Viscosité isobare du méthane (NIST, 2003)

considérons que le mélange méthane-argon se produit à température constante, soit à $T = 193.15K$. De plus, puisque les propriétés du mélange sous ces conditions d'opérations sont inconnues, les lois de mélange déterminent ces propriétés à partir des propriétés initiales des deux composants séparés. En régime permanent, le mélange présent dans la chambre de réaction est composé majoritairement d'argon.

On suppose ainsi que le méthane est l'espèce qui se diffuse dans l'argon (l'argon est ainsi l'espèce concentrée). Le coefficient de diffusion du méthane dans le mélange ($D_{CH_4,m}$) est donc considéré équivalent au coefficient de diffusion du méthane dans l'argon ($D_{CH_4,Ar}$).

Pour prédire la diffusivité des mélanges binaires de gaz sous haute pression ($> 35bar$), la méthode de Takahashi est appliquée ((PERRY et al., 1997), Chap.2 p.371) :

$$D_{12} = 1.013E05 \frac{D'_{12}}{P} (D_{12}P)_R (1 - AT_r^{-B}) (1 - CT_r^{-E}) \quad (3.24)$$

où

D_{12} = Diffusivité (ou Coefficient de diffusion) de l'espèce 1 dans l'espèce 2 [m^2/s];

D'_{12} = Diffusivité à basse pression et à la température souhaitée [m^2/s];

P = Pression souhaitée [Pa];

$(D_{12}P)$ = Terme de diffusion de la pression réduite à une température réduite infinie;

B, C et E = Constantes;

T_r = Température réduite;

Avant de calculer le coefficient de diffusion à haute pression D_{12} avec la méthode de Takahashi, il faut calculer celui à basse pression, pour la température souhaitée (D'_{12}) ((BAUERLE, 1996), p.49) :

$$D'_{12} \equiv D_{12}(T_G, p) \approx D_{12}(T_s, p_s) \frac{(T_G^*)^n}{p^*} \quad (3.25)$$

où

D'_{12} = Diffusivité à basse pression et à la température souhaitée [m^2/s];

$D_{12}(T_G, p)$ = Diffusivité à la température souhaitée du gaz T_G et à la basse pression p ;

$D_2(T_s, p_s)$ = Diffusivité à température et pression standards ;

T_G^* = Température non-dimensionnelle ($=T_G/T_s$) ;

p^* = Pression non-dimensionnelle ($=p/p_s$) ;

n = Exposant relié aux valeurs expérimentales ($= 1.5 - 2$) ;

La diffusivité du méthane dans l'argon $D_{12}(T_s, p_s)$ pour $T_s = 298K$ et $p_s = 1atm$ est égale à $2.02E - 05m^2/s$ ((CUSSLER, 1984), p.106). De plus, d'après la théorie cinétique des gaz, on pose n égal à 1.5.

Nous utilisons la méthode de Takahashi pour calculer la diffusivité à haute pression car l'équation (3.25) n'est valide que pour de basse et moyenne pressions.

D'après l'équation (3.25), avec une température souhaitée $T_G = 193.15K$ et $p^* = 1$ (puisque nous ne calculons pas le changement à haute pression (50bar) avec cette équation), nous obtenons une diffusivité D'_{12} égale à $1.0541E - 05m^2/s$.

Pour utiliser la méthode de Takahashi, il faut calculer la température réduite T_r et la pression réduite p_r à partir des propriétés critiques de l'argon (l'espèce en forte concentration). La température critique de l'argon est de $T_c = 150.687K$ et sa pression critique de $p_c = 48.6bar$ (NIST, 2003). Ainsi :

$$T_r = \frac{T_G}{T_c} = \frac{193.15K}{150.687K} = 1.2818 \quad p_r = \frac{p}{p_c} = \frac{50bar}{48.6bar} = 1.0288$$

Pour une pression réduite de $p_r = 1.0288$, nous avons les paramètres suivants ((PERRY et al., 1997), Chap.2 p.371) :

$$\begin{aligned}
 (D_{12}P)_R &= 1.02 \\
 A &= 0.385736 \\
 B &= 3.07773 \\
 C &= 0.141211 \\
 E &= 13.45454
 \end{aligned}$$

Avec $P = 5000000 Pa (50 bar)$ et $T_r = 1.2818$ et en utilisant l'équation de Takahashi (3.24), on trouve finalement que le coefficient recherché de diffusion sous haute pression est de :

$$D_{CH_4,m} = D_{CH_4,Ar} = D_{12} = 1.8078E - 07 m^2/3 \quad (3.26)$$

Fibre de carbone

Les fibres de carbone déposée par LCVD ont une structure qui dépend du procédé LCVD en tant que tel. Des observations expérimentales ont démontré que ces fibres sont souvent composées d'un coeur en carbone graphitique entouré d'une couche de carbone vitreux (LONGTIN et al., 2004). Puisqu'on étudie les phénomènes de transfert de chaleur de la fibre avec son environnement extérieur, on suppose que la fibre solide dans le volume de contrôle est composée uniformément de carbone vitreux ayant les propriétés isotropiques suivantes (PIERSON, 1993) :

- Densité $\rho_C = 1470 kg/m^3$
- Conductivité thermique $k_C = f(T)$ (Fig. 3.9)

On considère la densité constante, car une hausse de température jusqu'à $3000^\circ C$ ne provoque une expansion volumétrique que d'environ 5%.

Pour une température de $193.15 K$, la conductivité thermique k_C à été extrapolée

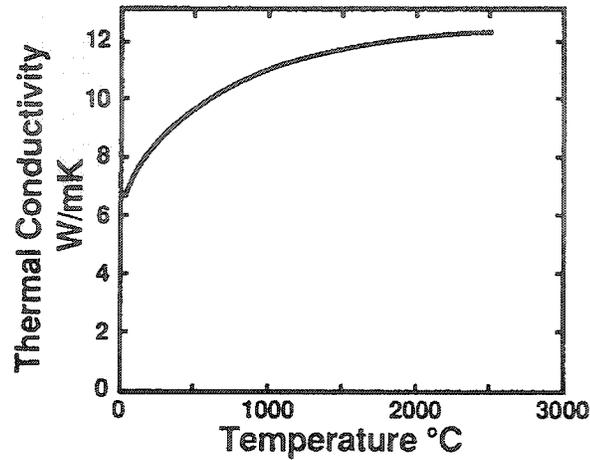


FIG. 3.9 Conductivité thermique du carbone vitreux (PIERSON, 1993)

à partir de la Fig. 3.9 et est égale à $4W/m - K$.

Un polynôme exprime la chaleur spécifique en fonction de la température. Celui-ci est basé sur les valeurs de la chaleur spécifique du carbone pyrolytique (INCROPERA and DEWITT, 1984) :

$$C_{p(C)}[J/kg \cdot K] = 12.9 + 2.9T - 0.0014T^2 + 3.1E - 07T^3 - 2.4E - 11T^4 \quad (3.27)$$

3.2.4 Volume de contrôle

Le volume de contrôle utilisé dans les simulations numériques est une section de la chambre de réaction. Les entrées des écoulements sont définies à la position où ces écoulements sont complètement développés, juste avant que ceux-ci ne se modifient en entrant dans la partie principale de la chambre de réaction.

Un des problèmes majeurs de la modélisation d'un réacteur HP-LCVD est le facteur d'échelle entre les éléments de celui-ci. Avec le diamètre D de la fibre déposée comme dimension caractéristique du volume de contrôle, les paramètres de design de la

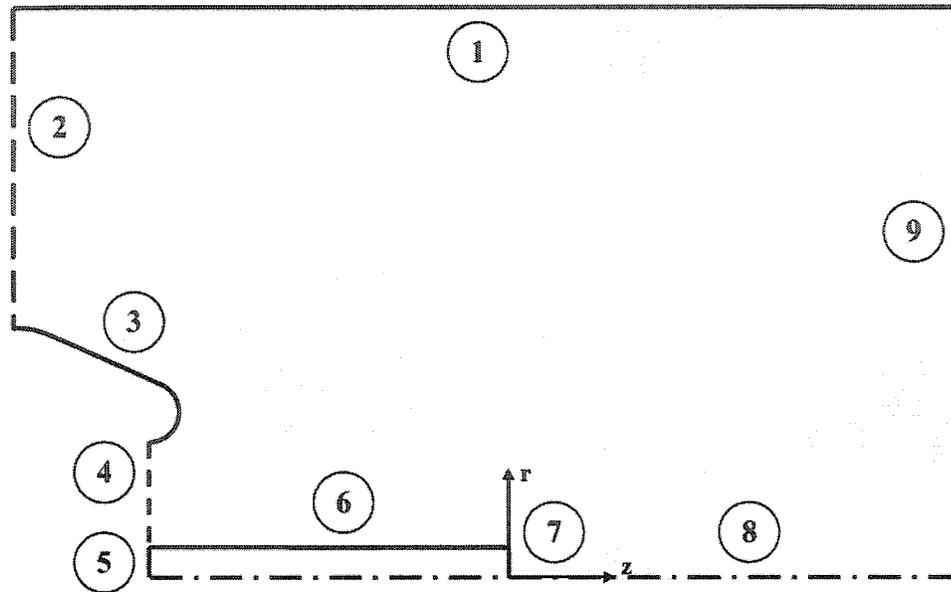


FIG. 3.10 Volume de contrôle

chambre de réaction sont normalisés par dimension (principalement le diamètre à l'entrée de l'écoulement principal). Basé sur cette dimension caractéristique, le volume de contrôle est représenté de la façon approximative suivante (Figure 3.10) :

- Diamètre de la fibre = D ;
- Diamètre intérieur du tube de quartz = $300D$;
- Diamètre extérieur du microtube = $75D$;
- Diamètre intérieur du microtube = $17D$;
- Longueur totale du volume de contrôle = $720D$;
- Longueur de la fibre dans le volume de contrôle = $84D$;

Conditions limites reliées au volume de contrôle (Figure 3.10) :

1) Paroi intérieure du tube de quartz : Puisque la température à la paroi extérieure du tube de quartz n'est pas nécessairement à $T = 193.15K (-80^{\circ}C)$ et que le tube

n'est pas impliqué dans le transfert de chaleur à l'intérieur de la chambre de réaction, nous considérons donc que cette paroi est immobile, adiabatique et avec des conditions d'adhérence, c'est-à-dire : $\partial T/\partial r = 0$ et $u(r) = u(z) = 0$.

2) Écoulement secondaire d'argon : Étant donné le profil de vitesse prescrit par le passage de cet écoulement entre le tube de quartz et le microtube (écoulement de Couette), nous considérons qu'à l'entrée secondaire du volume de contrôle, l'écoulement est régi par le même profil de vitesse (Eq. 3.6). De plus, l'écoulement secondaire est préalablement refroidi à 193.15K et est composé à 100% d'argon. Ce qui donne les conditions frontières suivantes pour l'écoulement secondaire : $u(r) =$ Eq. 3.6 et $T_{Ar,IN} = 193.15K$.

3) Extrémité du microtube : L'écoulement secondaire d'argon refroidit le microtube en amont de la chambre de réaction, ce qui du même coup refroidit l'écoulement principal par transfert de chaleur). De plus, l'extrémité du microtube est relativement éloignée de la zone thermiquement affectée (*HAZ*) par le faisceau laser afin d'être considéré à température constante. Le microtube est immobile et avec une condition d'adhérence. Nous avons donc les conditions frontières suivantes : $u(r) = u(z) = 0$ et $T_{MT} = 193.15K$.

4) Écoulement principal de méthane : À l'entrée principale du volume de contrôle, l'écoulement principal ne dépend que de la position radiale r et a été refroidi via le microtube à une température de 193.15K. Il est composé à 100% de méthane. Les conditions frontières sont posées comme : $u(r) =$ Eq. 3.21 et $T_{CH_4,IN} = 193.15K$.

5) Base de la fibre : La base de la fibre est considérée à la même température que l'écoulement principal qui l'entoure car on suppose que la zone thermiquement affectée (*HAZ*) est concentré au bout de la fibre et n'affecte pas la base de celle-ci. Ainsi : $T_{base} = 193.15K$.

6) Paroi longitudinale de la fibre : Cette paroi est considérée comme un interface solide/fluide. À cet endroit, les conditions thermiques ne sont pas connues car la paroi est soumise à un transfert de chaleur conjugué (convection forcée induite par l'écoulement principal et conduction de chaleur dans la fibre provenant de l'énergie du faisceau laser appliqué en bout de fibre). De plus, la paroi longitudinale est en mouvement dans la direction axiale, car la fibre est tirée vers l'arrière lors de la déposition en mode continu. On suppose donc que le fluide immédiatement à sa surface "glisse" vers l'arrière à une vitesse équivalente à la vitesse de tirage (= vitesse de déposition axiale). Ainsi : $u(r) = 0$ et $u(z) = V_f$ (la vitesse de tirage V_f est nécessairement négative).

7) Bout de la fibre : Cette paroi est aussi considérée comme un interface solide/fluide. C'est à cet endroit que l'énergie provenant du faisceau laser entre dans le volume de contrôle. Contrairement à la paroi longitudinale, le bout de la fibre est considéré immobile car lors du procédé HP-LCVD en mode continu, l'accumulation/déposition à cet endroit se fait au même rythme que le tirage de la fibre, d'où la position relative constante de cette paroi. Les conditions frontières sont : $u(z) = 0$ et $T_{bout} = \text{Constant}$ (ou $\partial T/\partial z = \text{Constant}$, dépendamment de quelle façon l'on applique l'énergie du faisceau laser).

8) Axe de symétrie : Le phénomène possède une symétrie par rapport à cet axe, autant dans la zone fluide que dans la zone solide. Ce qui donne pour toutes les propriétés : $\partial\phi/\partial r = 0$.

9) Sortie du volume de contrôle : Cette surface est considérée comme la sortie de la chambre de réaction. Même si des phénomènes de dynamique des fluides et de transfert de chaleur peuvent survenir au-delà de cette limite, leur influence est négligée, à l'endroit où l'on observe le phénomène de déposition. Ainsi : $\partial\phi/\partial z = 0$.

3.2.5 Simulations numériques

Afin de conduire les simulations numériques (création du maillage et calculs numériques), nous utilisons la suite de logiciels FLUENT[®] disponible sur le réseau Étoile de l'École Polytechnique de Montréal.

Pour obtenir un modèle numérique représentant adéquatement le procédé HP-LCVD à l'intérieur de la chambre de réaction, plusieurs modèles différents ont été analysés en ce qui concerne la façon de modéliser l'énergie provenant du faisceau laser. Ils sont décrits ci-dessous avec leurs caractéristiques principales et leurs défauts :

Modèle A

La caractéristique principale du modèle A est l'application d'une source d'énergie volumique en bout de fibre. Cette source volumique est composée de sa propre zone solide au bout de la fibre et simule l'énergie apportée par le faisceau laser. Normalement, dans le cas d'une fibre à bout plat, l'apport d'énergie par le faisceau laser est uniquement appliquée à la surface en bout de fibre et ensuite, c'est le transfert de chaleur du solide au fluide qui apporte de l'énergie à ce dernier. L'énergie dégagée par la source volumique ne représente donc pas correctement l'effet du faisceau laser et ce, même si l'épaisseur de la zone attribuée à la source volumique est minimale. En effet, la source volumique apporte directement de l'énergie à la zone fluide et ce, même si le fluide est transparent au faisceau laser donc n'absorbe pas d'énergie de celui-ci.

L'attribution d'une source volumique en bout de fibre n'est donc pas appropriée pour représenter l'apport d'énergie d'un faisceau laser passant à travers un fluide

avant de frapper le solide.

Modèle B

Dans le modèle B, on applique un flux de chaleur en bout de fibre afin de simuler l'énergie induite par le faisceau laser. Dans le volume de contrôle, l'interface solide/liquide comporte mathématiquement deux faces distinctes. L'une est attribuée à la portion dirigée vers le solide et l'autre, à la portion dirigée vers le fluide. Si on applique un flux de chaleur à la portion solide, il doit être équilibré par un flux à la portion fluide de valeur égale et de sens opposé. Si l'on applique la même valeur aux deux flux, l'on "double" en quelque sorte l'apport d'énergie, comme si on avait sur le même interface, un laser qui frappait la zone solide et un autre qui frappait la zone fluide. Si l'on applique un certain flux de chaleur à la portion solide et que l'on applique un flux de chaleur nul à la portion fluide, l'on isole ainsi le fluide de la chaleur provenant du bout de la fibre. Ceci est aussi inadéquat car normalement, une fois que l'énergie du faisceau laser est absorbée par le bout de la fibre, celle-ci est ensuite dissipée dans le fluide.

On constate donc, que simuler l'apport d'énergie du faisceau laser par l'attribution d'un flux de chaleur au bout de la fibre n'est pas approprié.

Modèle C

Le modèle C est caractérisé par l'application d'une température constante en bout de fibre. Pour les mêmes raisons que dans le modèle B, l'on doit attribuer la même condition pour les deux faces distinctes de l'interface solide/fluide. Une température constante est imposée à la portion solide de l'interface et la même valeur est aussi imposée à la portion fluide de l'interface. L'inconvénient de ce modèle est le fait

qu'initialement, l'on ne connaît pas la température à appliquer en bout de fibre, car celle-ci dépend des phénomènes de transfert de chaleur que l'on veut précisément calculer.

Par contre, suite à l'utilisation du modèle B (ayant les mêmes paramètres que le modèle C, mis à part la condition en bout de fibre), l'on a définis approximativement la valeur de la température au bout de la fibre même si du côté de la portion fluide les résultats étaient inadéquats. C'est cette valeur approximative que nous utiliserons comme condition appliquée au bout de la fibre.

Nous utilisons donc le modèle C où l'on applique une température constante au bout de la fibre (et ce, autant dans la portion solide que dans la portion fluide) car ce modèle est celui qui représente le mieux l'application d'un faisceau laser dont la focale est positionné au bout de la fibre.

Maillage

La géométrie décrite par la Fig. 3.10 est discrétisée à l'aide d'un maillage triangulaire afin de bien représenter la géométrie du microtube (Fig. 3.11). Le maillage dans la section fluide est concentré principalement dans le voisinage de la fibre, plus particulièrement en bout de fibre. La géométrie de la fibre est peu maillée dans la direction radiale car la température appliquée en bout de fibre est constante dans la direction radiale. En tout, le maillage est constitué d'un peu moins de 400000 cellules triangulaires localisées principalement dans la région de l'écoulement principal et dans le voisinage de la fibre.

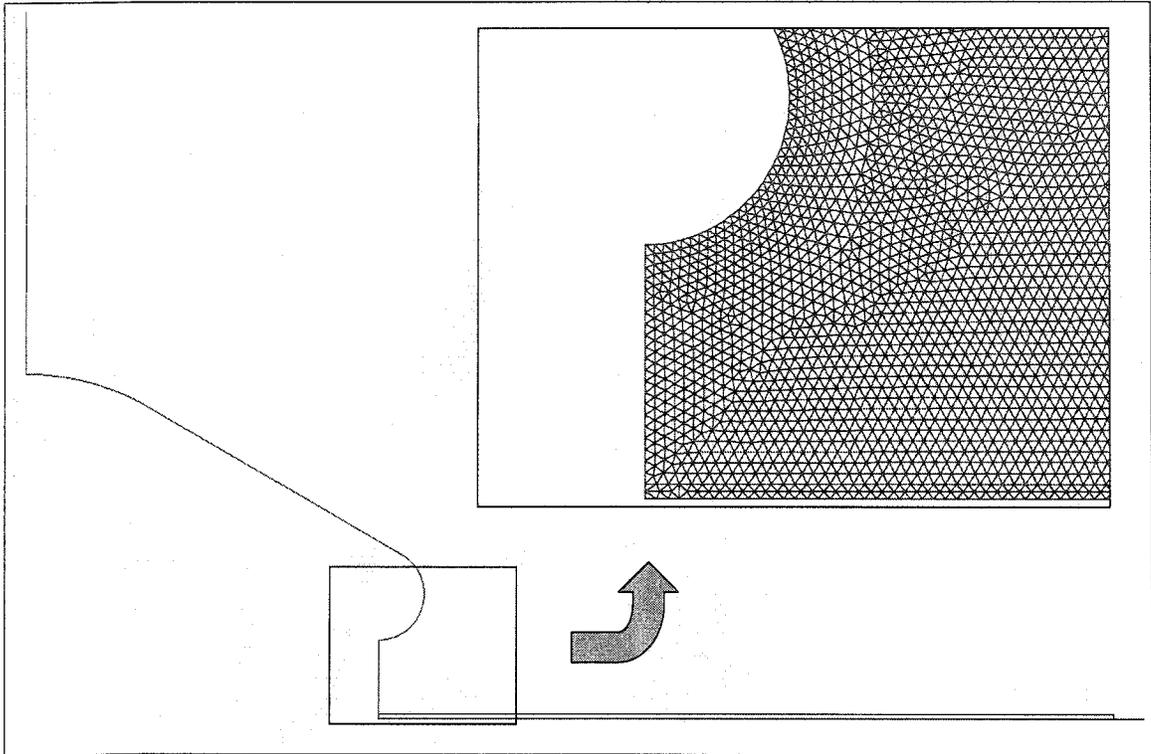


FIG. 3.11 Aperçu du maillage - entrée principale / bout du microtube

Paramétrage de la simulation

La vitesse axiale de déposition du carbone u_C a été estimée au Laboratoire de Fabrication en Forme Libre de l'École Polytechnique de Montréal. D'après les observations expérimentales et les recherches antérieures, la vitesse de déposition pour cette étude est fixée à $0.5m/s$. Cette vitesse de déposition dicte la vitesse de tirage de la fibre V_f qui est égale et de sens inverse, donc $V_f = -0.5m/s$.

À l'aide du logiciel FLUENT[®], on définit la simulation à effectuer de la façon suivante ((FLUENT, 2003), chap.7) :

- On utilise le résolveur séquentiel puisqu'on assume qu'à l'intérieur du volume de contrôle, les écoulements sont incompressibles ($Mach \leq 0.3$).

- L'utilisation d'un espace 2D axisymétrique permet de modéliser adéquatement les phénomènes à l'intérieur du volume de contrôle où l'on suppose que les écoulements sont non-tourbillonnaires, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de composantes dans la direction circonférentielle.
- On suppose qu'il existe un régime permanent lors de la déposition de fibres en mode continu.
- Les équations d'énergie et de transport d'espèces sont pris en considération afin de calculer le transfert de chaleur et le mélange des deux écoulements.
- Les propriétés du mélange méthane-argon sont calculées à partir des propriétés des espèces constituantes, en utilisant la moyenne des fractions massiques pour chaque propriété.
- La pression d'opération de la simulation est de 50bar et possède, comme point de référence, le centre du bout de la fibre où a lieu la déposition à haute pression.
- Comme indiqué dans la section "Vitesses moyennes et maximales des écoulements", on néglige les forces de gravité par rapport aux forces d'inerties (puisque le débit de gaz est important).
- Les conditions frontières utilisées sont celles définies par le modèle numérique C (voir section "Volume de contrôle"), plus spécifiquement, l'utilisation d'une température constante en bout de fibre pour simuler l'apport énergétique du faisceau laser. Les conditions frontières comportant des équations spécifiques (écoulement principal et secondaire) sont programmées à l'aide de fonctions définies par l'utilisateur (UDF, User Defined Fonction). Ces fonctions sont décrites à l'annexe 1 (Chapitre 7).

CHAPITRE 4

ANALYSE DE LA SIMULATION GLOBALE

Le but premier de la simulation globale est l'étude du mélange de gaz autour de la fibre de carbone ainsi que l'effet sur ceux-ci, du faisceau laser modélisé par une température constante en bout de fibre $T = 2400K$.

4.1 Concentration de méthane

Le jet annulaire de méthane autour de la fibre, qui se diffuse dans l'argon environnant est illustré à la Fig. 4.1. À la surface de la fibre, l'écoulement est composé à 100% de méthane.

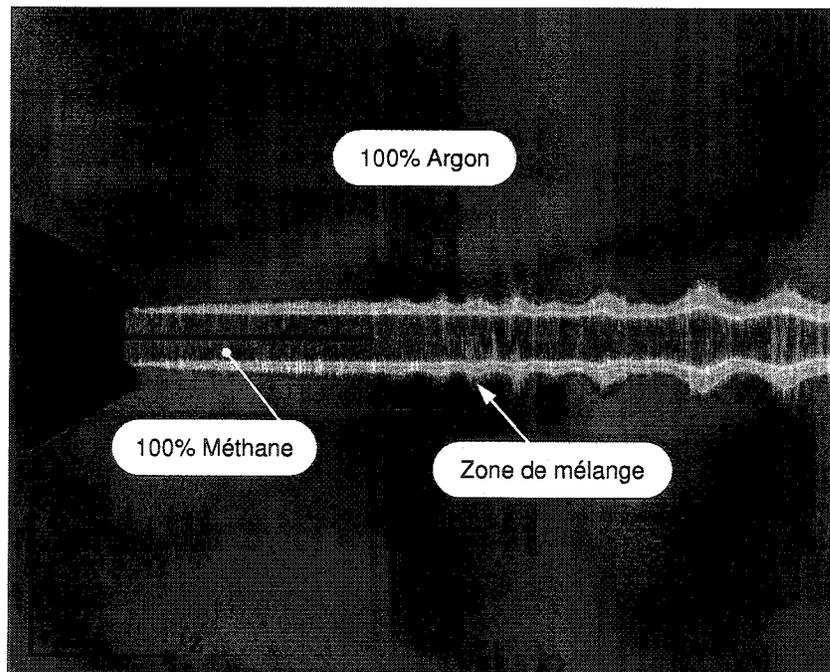


FIG. 4.1 Écoulement de méthane dans l'argon

On délimite la région où la concentration de méthane est maximale car la réaction de déposition est confinée dans cette région. Afin de délimiter cette région, on suppose qu'une concentration minimale de 98% de CH_4 assure cette condition. Dû à la diffusion du méthane dans l'argon environnant, cette région se caractérise par une diminution rapide de concentration en CH_4 tel qu'illustré par la Fig. 4.2.

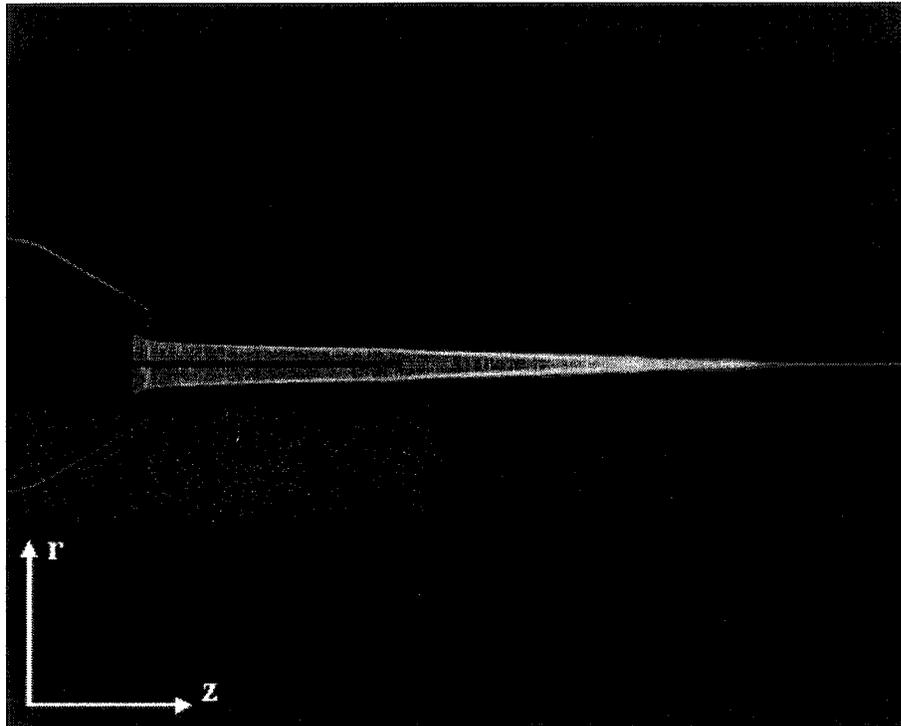


FIG. 4.2 Concentration de méthane de 98% et plus

On suppose aussi qu'une concentration en CH_4 inférieure à 2% équivaut à un écoulement constitué uniquement d'argon. Les régions distinctes de méthane "pur" et d'argon "pur" sont illustrées à la Fig. 4.3. Sur cette figure, la zone noire entre les deux régions représente la zone de mélange.

On extrait ensuite les données relatives à la concentration radiale et axiale de CH_4 en bout de fibre, tel qu'illustré en Fig. 4.4 et Fig. 4.5.

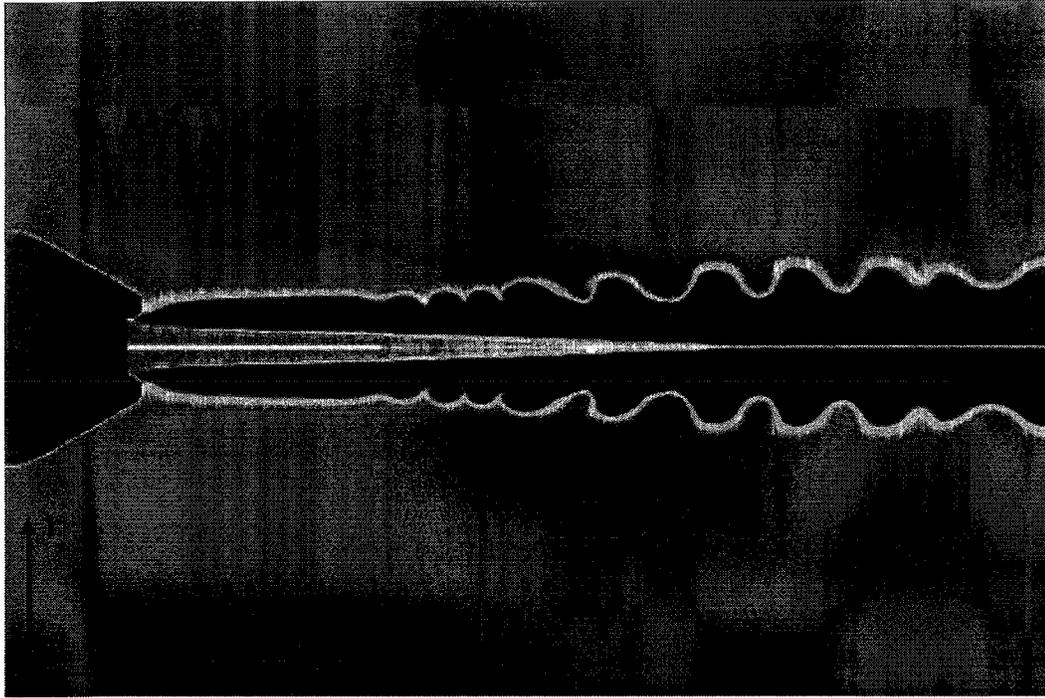


FIG. 4.3 Régions distinctes de concentration de méthane et d'argon

On en dégage les frontières suivantes :

1. La concentration radiale de CH_4 en bout de fibre est au minimum 98% en dessous d'une distance radiale de $90\mu\text{m}$;
2. La concentration axiale de CH_4 à partir du bout de la fibre est au minimum 98% en dessous d'une distance axiale de $2330\mu\text{m}$ (ou 2.33mm) ;
3. La concentration radiale de CH_4 en bout de fibre est au maximum 2% au dessus d'une distance radiale de $310\mu\text{m}$;

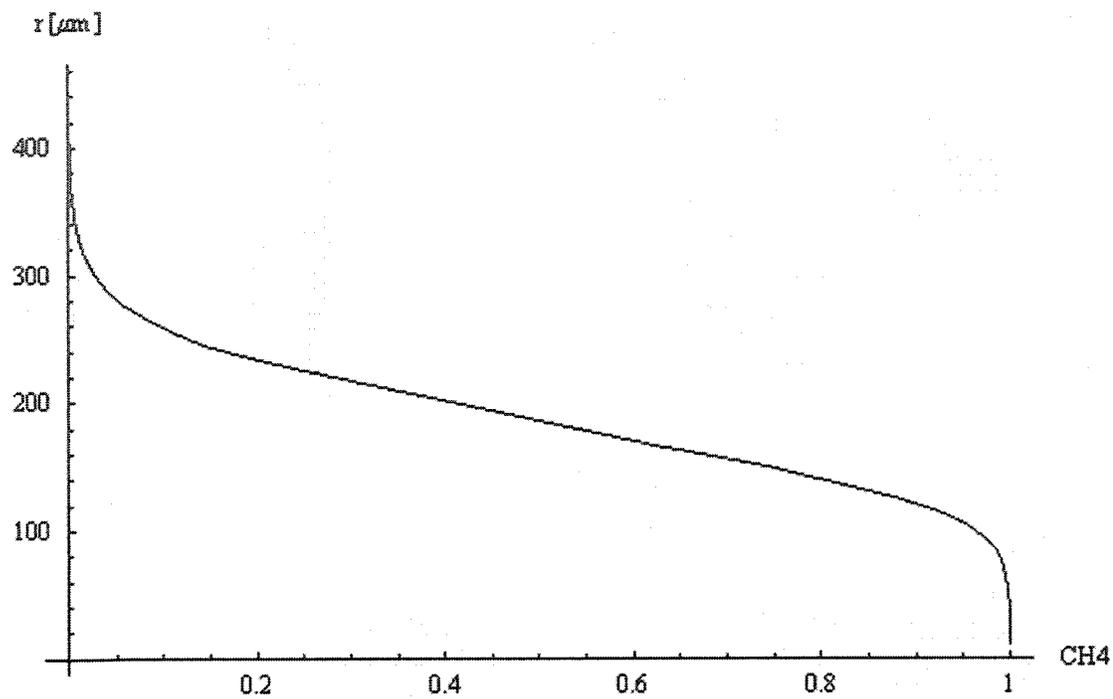


FIG. 4.4 Concentration radiale de méthane en bout de fibre

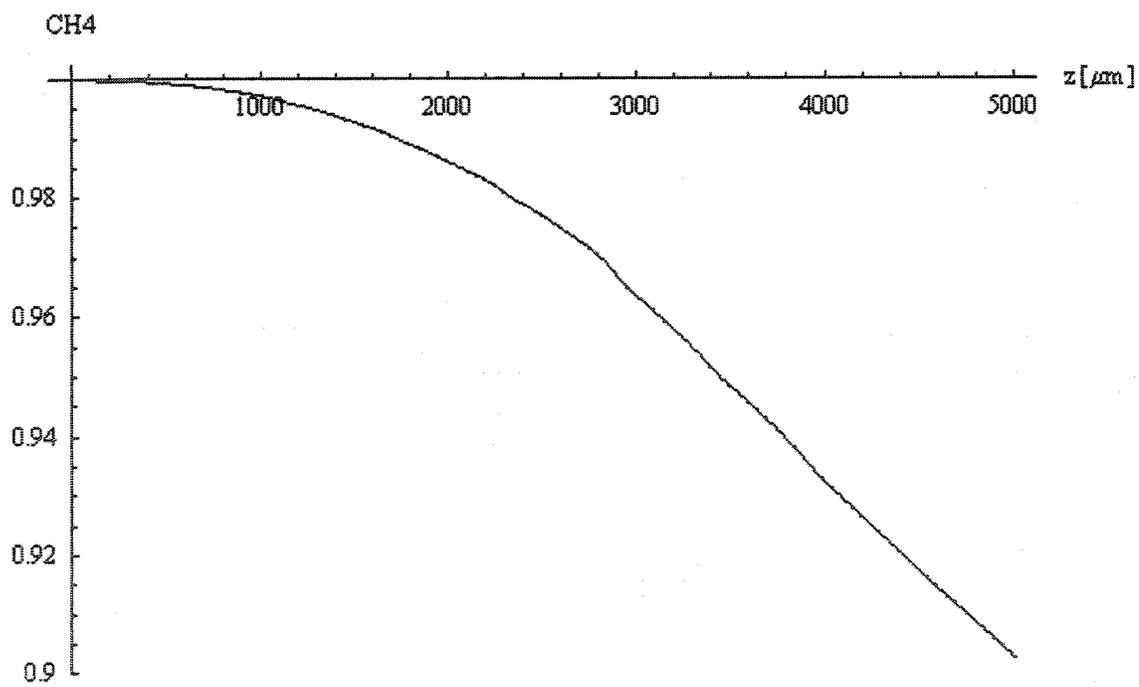


FIG. 4.5 Concentration axiale de méthane en bout de fibre

4.2 Distribution de température

Avec une température constante $T = 2400K$ au bout de la fibre, on observe la conduction dans la fibre. De plus, le jet de méthane provoque la convection forcée à la surface de cette fibre. L'énergie est ainsi dissipée dans le fluide par transfert de chaleur conjugué. La représentation de la distribution de température dans la fibre et dans le fluide avoisinant est illustré à la Fig. 4.6.

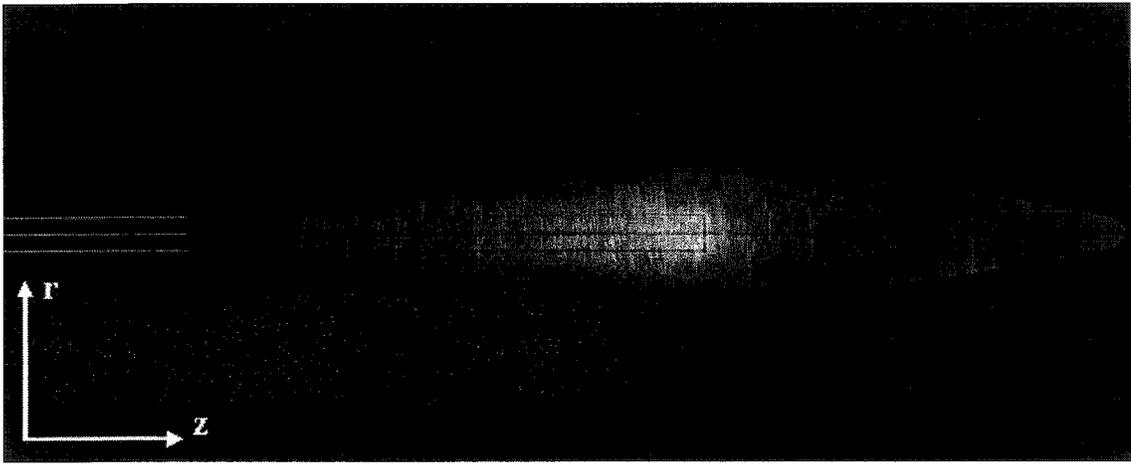


FIG. 4.6 Distribution de la température en bout de fibre

À la surface de la fibre, la température dans la direction axiale (direction négative) diminue rapidement en s'éloignant du bout de celle-ci, tel qu'illustré par la Fig. 4.7.

Dans la direction radiale, la distribution de la température dans le fluide est concentrée dans le voisinage de la fibre, comme le montre la Fig. 4.8.

Afin de pouvoir déterminer la région thermiquement affectée, on étudie la distribution axiale de température dans le fluide à partir du bout de la fibre, tel qu'illustré à la Fig. 4.9.

D'après les limites de température inférieure ($T = 193.15K$) et supérieure ($T = 2400K$) présentes dans le volume de contrôle, on obtient une plage possible de température

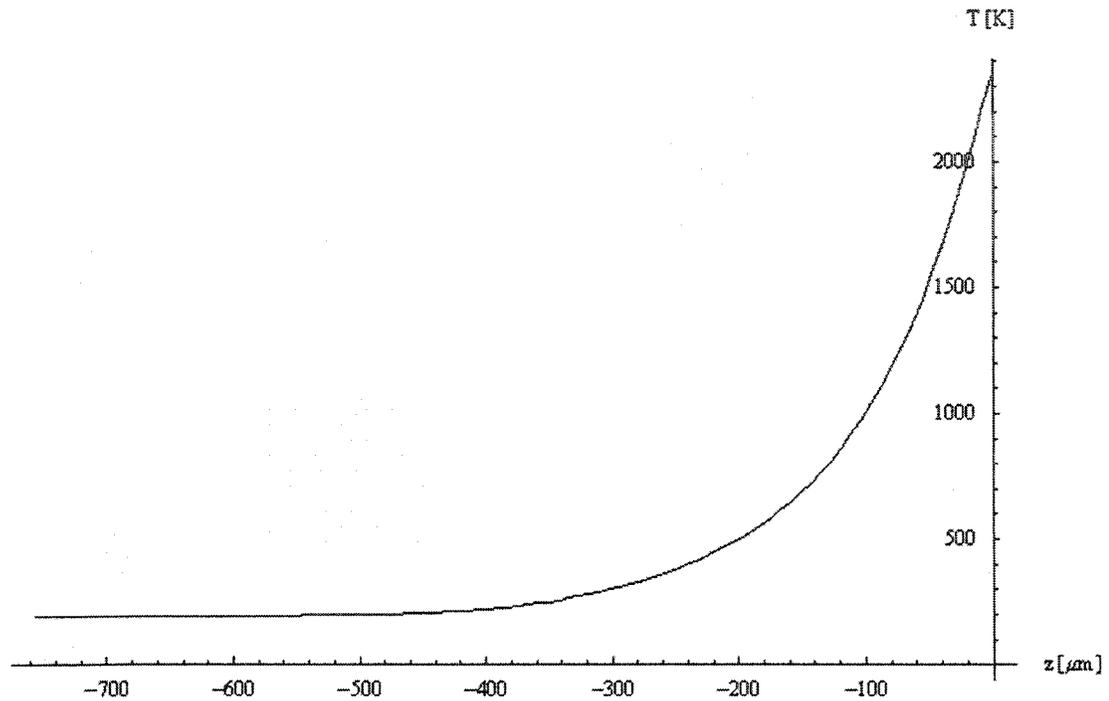


FIG. 4.7 Distribution de la température à la surface de la fibre

de $\Delta T = 2206.85K$. On suppose que la fibre et l'écoulement sont froids lorsqu'ils ont atteint une température relative de 2% de cette différence, soit $T_{froid} = 237.3K$.

Ainsi, à l'aide des données obtenues avec les Fig. 4.7, 4.8 et 4.9, on détermine les frontières suivantes :

1. À la surface de la fibre, la température est considérée froide à partir de $z = -370\mu m$;
2. Dans la direction radiale, la température est considérée froide en bout de fibre à partir de $r = 40\mu m$;
3. Dans la direction axiale positive, la température dans le fluide est considérée froide à partir de $z = 640\mu m$;

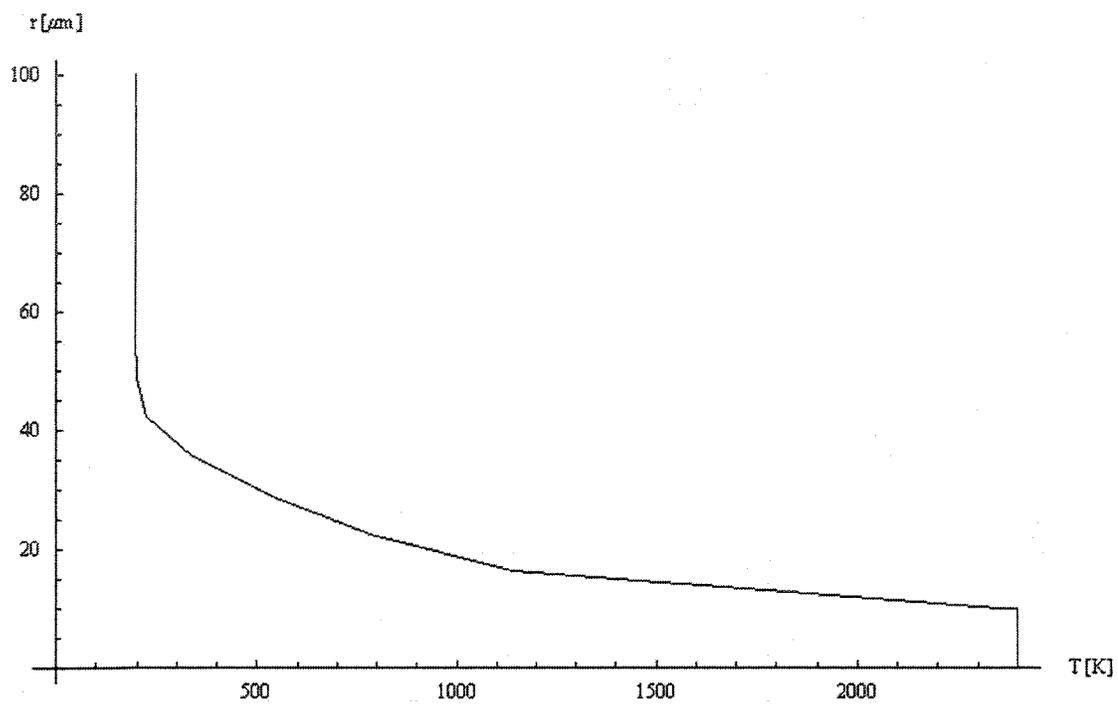


FIG. 4.8 Distribution radiale de la température en bout de fibre

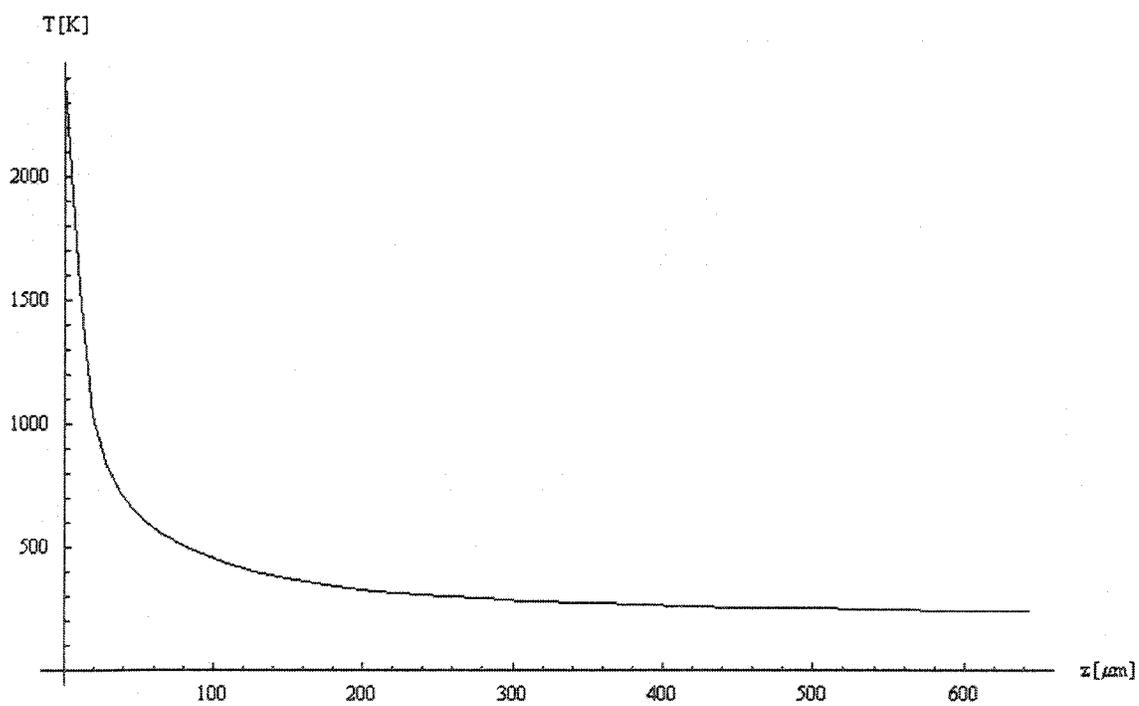


FIG. 4.9 Distribution axiale de la température en bout de fibre

4.3 Analyse vectorielle

En observant les vecteurs vitesse de l'écoulement, on remarque la forme spécifique du profil de vitesse d'entrée principale, calculée sous forme de fonction définie par l'utilisateur (UDF, User-Defined Function) à l'aide de l'équation 3.23. La forme caractéristique de ce profil est illustré à la Fig. 4.10 où l'écoulement annulaire autour de la fibre est borné par la paroi intérieure du microtube en acier.

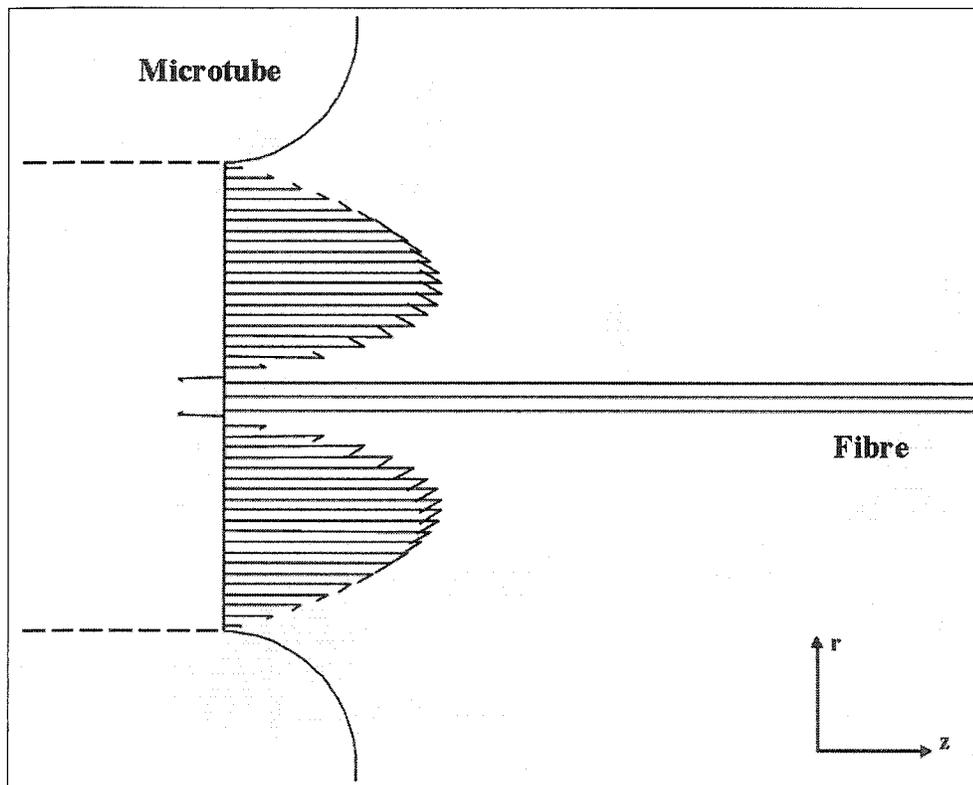


FIG. 4.10 Profil de vitesse principal

L'écoulement dicté par ce profil, s'écoule le long de la fibre jusqu'au bout de celle-ci où l'écoulement "tombe" en bout de fibre pour ensuite se refermer sur lui-même, tel qu'illustré en Fig. 4.11

Avec la condition de glissement ($U = -0.5m/s$) qui est imposée sur le fluide à la surface de la fibre et puisque le bout de la fibre est considéré immobile dû à la

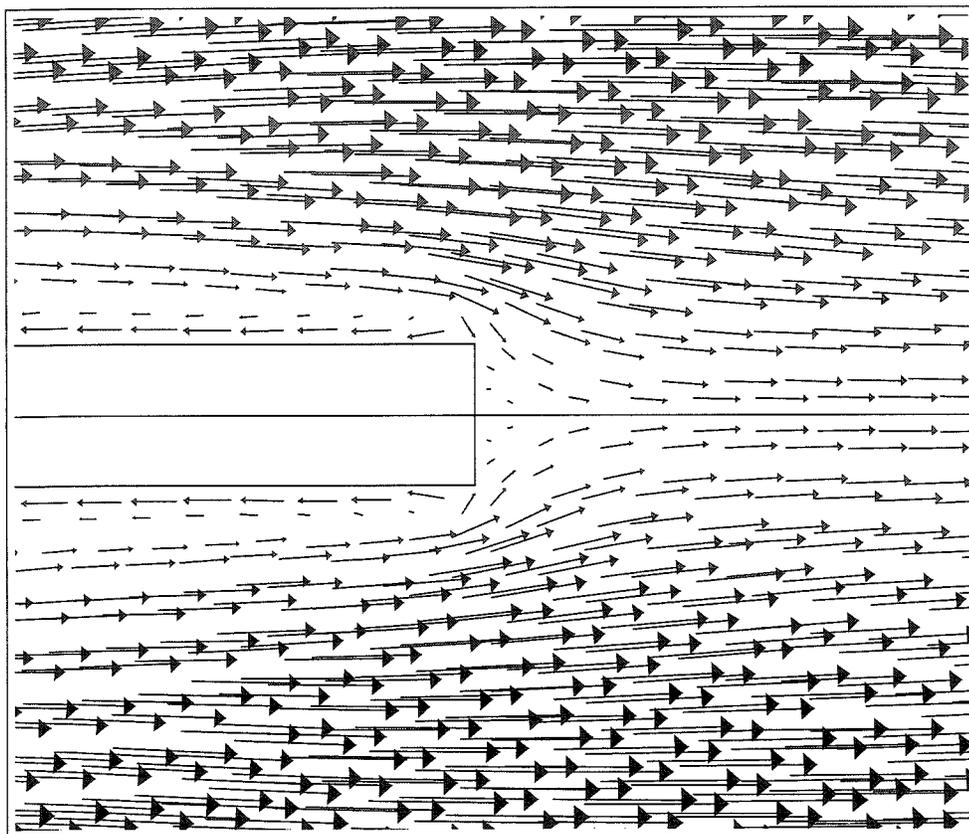


FIG. 4.11 Vecteurs vitesse en bout de fibre

déposition en régime continu, une discontinuité apparaît sur le pourtour du bout de la fibre. De plus, puisque le maillage de l'analyse globale décrit le volume de contrôle global plutôt qu'uniquement la région du bout de la fibre, il peut ne pas capter entièrement l'écoulement du fluide à cet endroit.

La simulation spécifique est utilisée, en partie, pour résoudre ce problème de précision en bout de fibre et raffiner l'observation de l'écoulement affecté par le tirage de la fibre.

4.4 Conditions frontières plus restreintes

Les interactions du procédé de déposition sont localisés en bout de fibre, d'où la nécessité de délimiter un volume de contrôle plus précis pouvant mieux capter celles-ci. D'après les observations de la simulation globale, les différents aspects de la déposition se limitent dans des zones spécifiques, tel qu'illustré schématiquement à la Fig. 4.12.

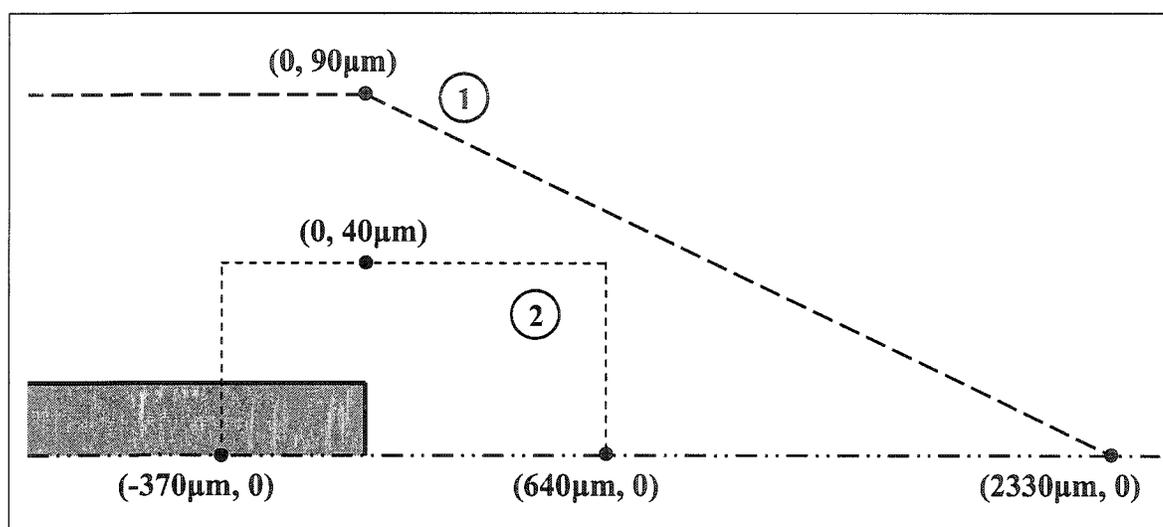


FIG. 4.12 Zones spécifiques

La zone (1), appelé "zone de concentration", représente les limites de l'écoulement composé à 98% et plus de méthane tel que définies précédemment. On considère une forme triangulaire pour cette zone dans la direction axiale positive pour assurer une concentration minimale de 98% tel qu'illustré par la Fig. 4.2.

La zone (2), appelé "zone thermique", représente les limites de la zone thermiquement affectée qui contient la majeure partie des échanges thermiques. La diffusion de chaleur se fait dans une zone plutôt elliptique (Fig. 4.6) mais afin de simplifier la forme de cette zone tout en s'assurant de contenir ces échanges thermiques, on choisit une zone rectangulaire.

Un volume de contrôle plus restreint doit donc satisfaire les deux conditions suivantes :

1. Les limites du volume de contrôle plus restreint doivent se situer à l'intérieur de la zone (1).
2. Les limites du volume de contrôle plus restreint doivent se situer à l'extérieur de la zone (2).

4.5 Observations globales de l'écoulement parallèle

En plus d'aider à déterminer une zone d'étude plus restreinte, la simulation globale permet aussi de démontrer l'utilité d'un écoulement forcé parallèle à la fibre. Cet écoulement forcé provoque une convection forcée qui concentre la température en bout de fibre, ce qui provoque ainsi une déposition plus localisée puisque la zone thermiquement affectée est réduite. Une comparaison des distributions de température en absence et en présence d'un écoulement forcé est illustrée en Fig. 4.13 et Fig. 4.14.

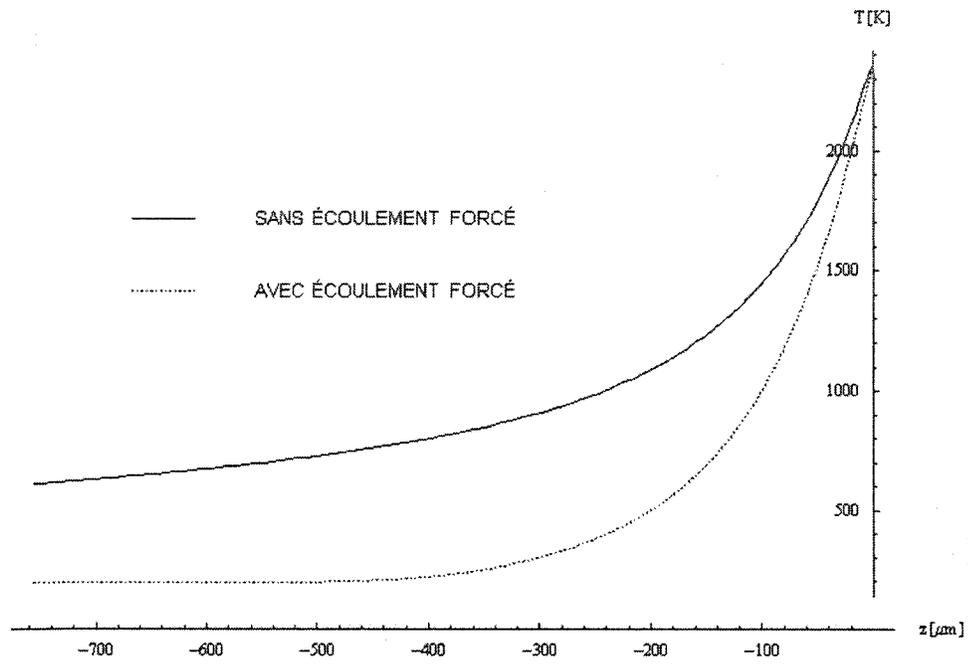


FIG. 4.13 Distribution de température à la surface de la fibre

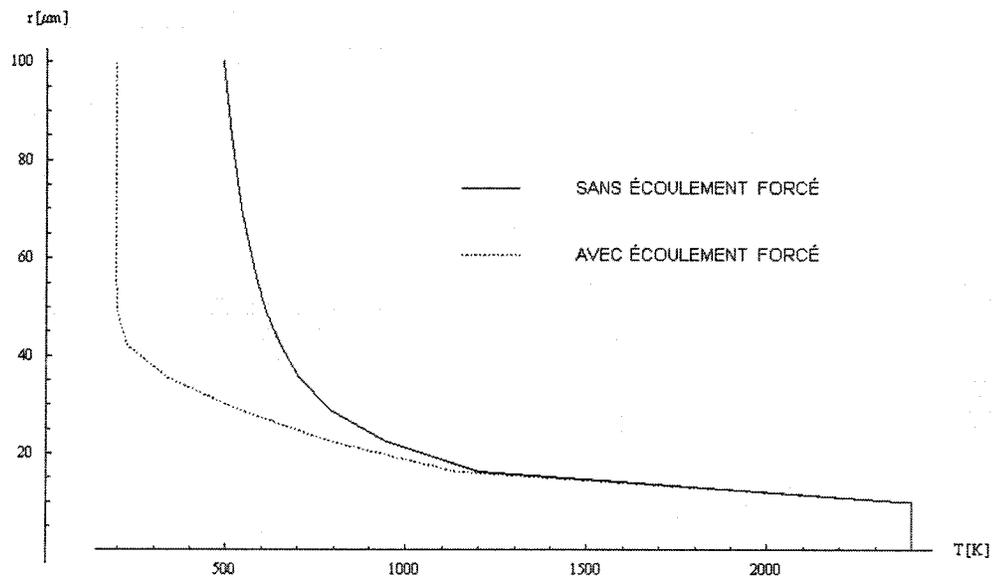


FIG. 4.14 Distribution radiale de température en bout de fibre

CHAPITRE 5

SIMULATION SPÉCIFIQUE

Le dépôt de fibre par laser est un procédé où les phénomènes sont localisés en bout de fibre. La fibre déposée est proportionnellement située dans une immense chambre de réaction. Il est donc nécessaire de préciser un volume de contrôle qui englobe les phénomènes localisés sans toutefois surcharger le modèle numérique en considérant toute la chambre de réaction. L'étude préalable de l'environnement global est cependant nécessaire pour déterminer les conditions frontières d'un volume de contrôle local.

Dans la simulation globale, il a été démontré que l'écoulement de gaz précurseur (méthane) est efficacement contenu autour de la fibre par le gaz de support (argon). La simulation spécifique constitue ainsi l'étude du procédé de dépôt de fibre dans un micro-réacteur qui est défini à l'intérieur de l'écoulement de méthane. Le volume de contrôle spécifique (2) du micro-réacteur est illustré à la Fig. 5.1 à l'intérieur du volume de contrôle global (1).

Lors du dépôt de fibres de carbone à partir du méthane, l'éjection d'hydrogène a été observé expérimentalement sous forme de jet en bout de fibre. Dans la simulation spécifique, on évalue les effets de ce jet d'hydrogène sur l'écoulement et sur les transferts thermiques dans le but de déterminer si ce jet a une influence rétroactive sur le phénomène de dépôt en tant que tel.

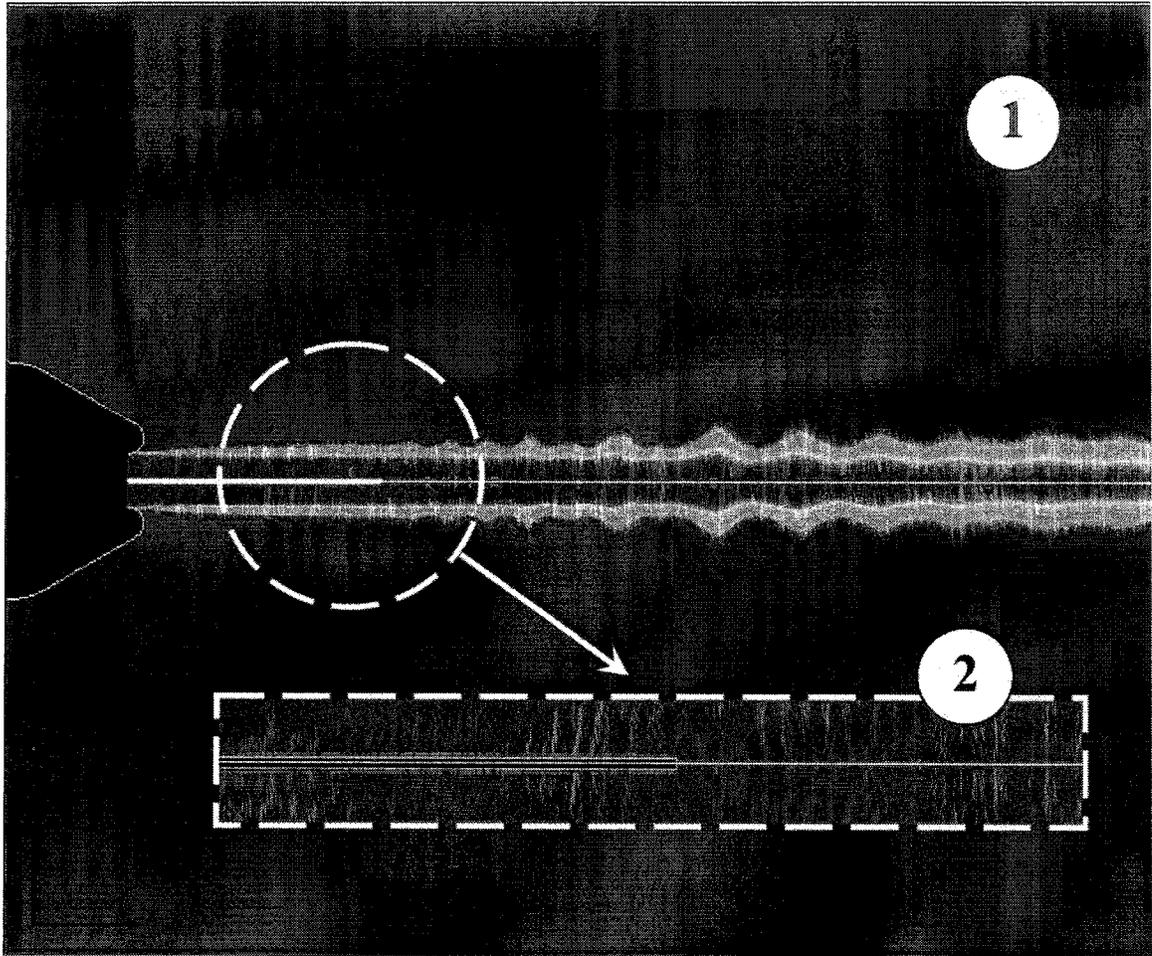


FIG. 5.1 Délimitation du micro-réacteur

5.1 Délimitation du volume de contrôle restreint

En se référant à la Fig. 4.12, on détermine les limites suivantes pour le volume de contrôle restreint de forme rectangulaire illustré à la Fig. 5.2 :

- La limite axiale négative de la zone thermique (2) est située à $-370\mu\text{m}$. On choisit une limite située à $-400\mu\text{m}$ pour contenir les effets thermiques dans cette direction.
- La limite axiale positive de la zone thermique (2) est située à $+640\mu\text{m}$ et sa limite radiale est de $40\mu\text{m}$. Pour un volume de contrôle restreint de forme rectangulaire,

on doit définir des limites qui contiennent à la fois les limites de la zone thermique (2) et qui sont à l'intérieur de la zone de concentration (1). On choisit une limite axiale positive située à $+700\mu\text{m}$ et une limite radiale de $70\mu\text{m}$ pour contenir la zone thermique (2). D'après les données de la simulation globale, la concentration au point $(+700\mu\text{m}, 70\mu\text{m})$ est de 98.3% ce qui confine effectivement le volume de contrôle à l'intérieur de la zone de concentration (1).

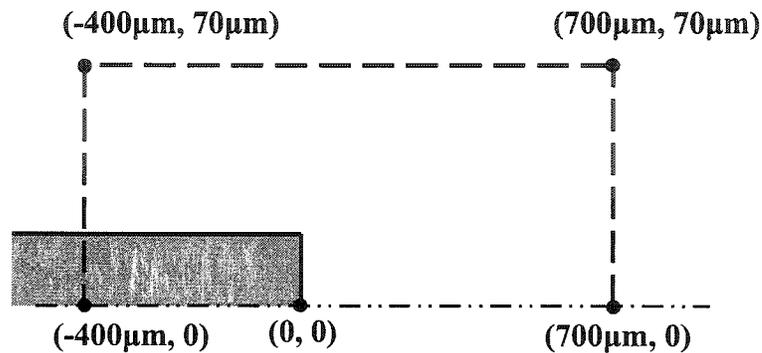


FIG. 5.2 Volume de contrôle spécifique

5.2 Modélisation du jet d'hydrogène

5.2.1 Propriétés physiques

Le jet d'hydrogène est éjecté en bout de fibre à une température constante $T = 2400\text{K}$ sous une pression ambiante $p = 50\text{bars}$. Initialement, à $T = 2400\text{K}$, les propriétés de l'hydrogène sont (INSPI, 2004) :

$$\text{Densité} = 0.5023 \text{ kg/m}^3$$

$$\text{Chaleur spécifique} = 18800 \text{ J/kg-K}$$

$$\text{Conductivité thermique} = 1.045 \text{ W/m-K}$$

$$\text{Viscosité} = 3.663\text{E-}05 \text{ kg/m-s}$$

Par la suite, ces propriétés changent avec une variation de température (durant le refroidissement de l'hydrogène chaud vis-à-vis le méthane froid). La variation de ces propriétés en fonction de la température (NIST, 2003) & (INSPI, 2004) est montré aux Fig. 5.3, 5.4, 5.5 et 5.6.

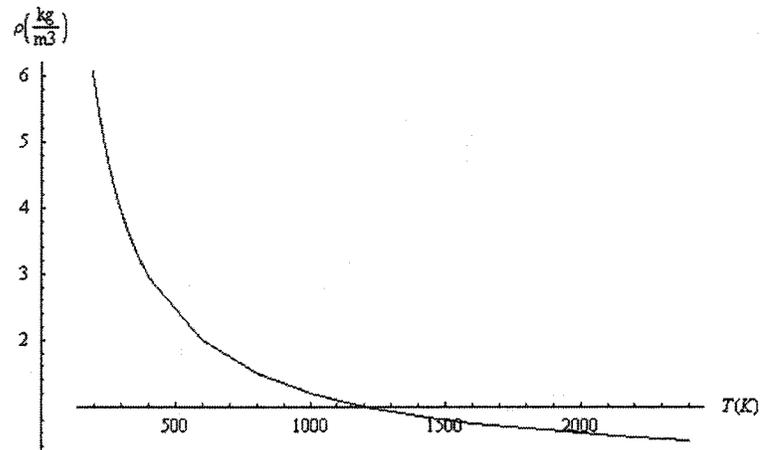


FIG. 5.3 Densité H_2 à $p = 50bars$

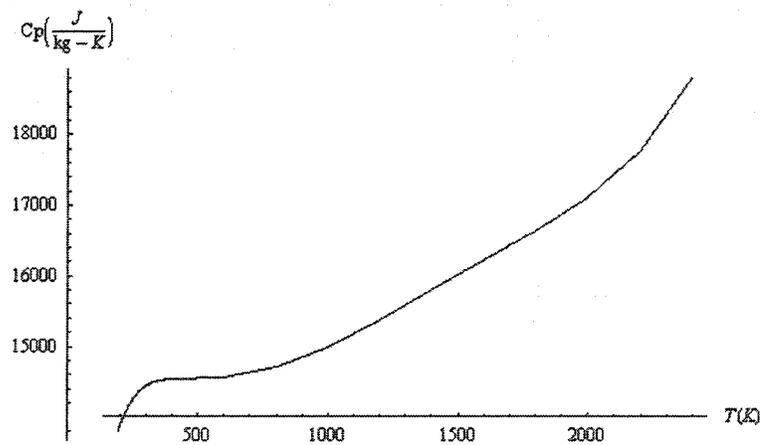


FIG. 5.4]
Chaleur spécifique H_2 à $p = 50bars$

Puisque les propriétés de l'hydrogène varient de façon significative en fonction de la température il est nécessaire de tenir compte de ces variations dans la modélisation numérique d'un jet d'hydrogène chaud qui se mélange au méthane froid.

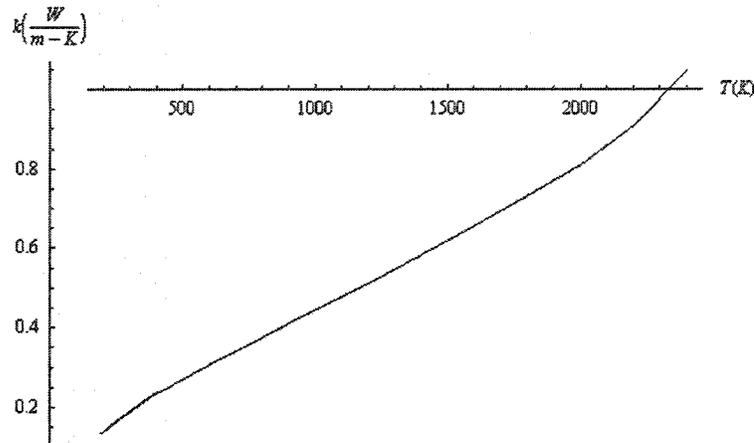


FIG. 5.5]
Conductivité thermique H_2 à $p = 50bars$

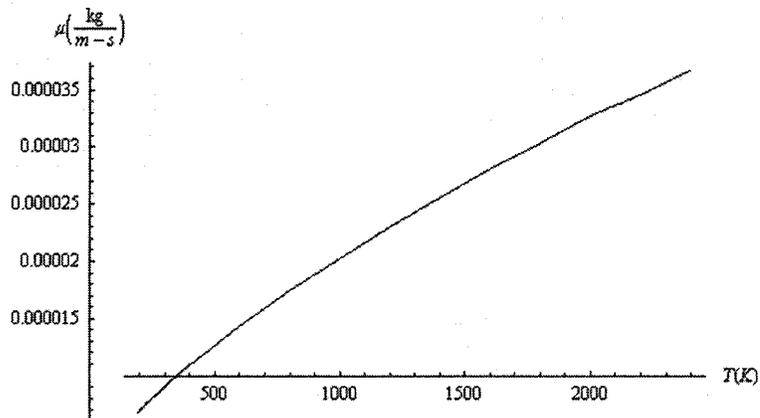


FIG. 5.6]
Viscosité H_2 à $p = 50bars$

Le mélange d'espèces n'est pas à température constante ce qui nécessite de déterminer un coefficient de diffusion binaire qui est fonction de la température. À température et pression standard ($T_s = 298K$, $p_s = 1atm$), le coefficient de diffusion du mélange hydrogène-méthane est de $7.26E - 05m^2/s$ ((CUSSLER, 1984), p.106). On utilise l'équation (3.25) qui donne la diffusivité à basse et moyenne pression en fonction de la température du gaz. Avec $D_{12}(T_s, p_s) = 7.26E - 05m^2/s$ et

$n = 1.5$ (d'après la théorie cinétique des gaz), on obtient l'Eq.5.1 :

$$D'_{12} = 1.411277E - 08 * (T_G)^{1.5} \quad (5.1)$$

où

D'_{12} = Diffusivité à pression standard [m^2/s];

T_G = Température du gaz [K];

On utilise ensuite l'Eq.5.1 avec la méthode de Takahashi (Eq.3.24) pour obtenir le coefficient de diffusion à haute pression. Avec une température critique $T_c = 190.564K$ et une pression critique $p_c = 45.992bar$ pour le méthane ((NIST, 2003), on obtient l'Eq.5.2 :

$$D_{12} = 2.916432E - 10 * \left(1 - \frac{3.326403E30}{(T_G)^{13.69221}}\right) * \left(1 - \frac{1.346777E07}{(T_G)^{3.2824}}\right) * (T_G)^{1.5} \quad (5.2)$$

où

D_{12} = Diffusivité à haute pression de l'hydrogène dans le méthane [m^2/s];

T_G = Température du gaz [K];

Pour une variation de température de $T = 193.15K$ à $T = 2400K$, le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le méthane décrit par l'Eq.5.2 est représenté à la Fig. 5.7.

On remarque qu'il est nécessaire de considérer un coefficient de diffusion qui varie en fonction de la température car celui-ci diminue d'un facteur de 90 durant le refroidissement du jet d'hydrogène qui se mélange au méthane.

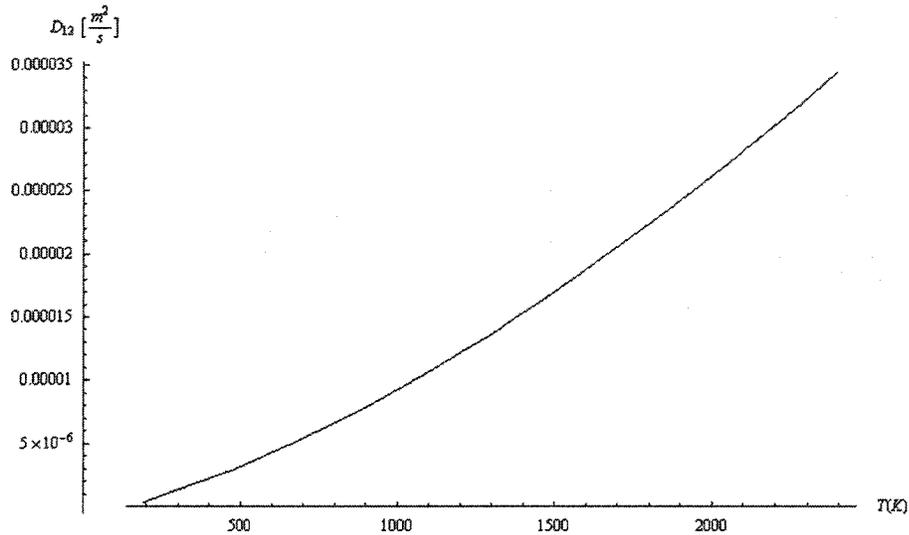


FIG. 5.7 Coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le méthane

5.2.2 Restrictions de modélisation

On veut modéliser l'éjection d'hydrogène lors du dépôt de fibres de carbone à partir du méthane. Dans la présente étude, on suppose une fibre à bout plat, ce qui implique une déposition de carbone uniquement dans la direction axiale. L'éjection d'hydrogène qui en résulte se fera donc aussi uniquement dans la direction axiale, en sens opposé à la déposition.

On veut étudier les effets de l'éjection d'hydrogène sur l'écoulement de méthane et sur les transferts thermiques impliqués dans le procédé. On doit donc inclure l'éjection d'hydrogène dans un modèle qui comporte aussi le transfert de chaleur conjugué entre la fibre et le fluide. L'éjection d'hydrogène s'effectue au même endroit où on applique une température constante $T = 2400\text{K}$, soit à l'interface solide/fluide en bout de fibre.

On peut modéliser l'éjection d'hydrogène par une source massique ou par une entrée de vitesse dans le système. Puisque l'éjection est directionnelle, on utilise plutôt

l'entrée de vitesse qui nous permet d'en spécifier la direction.

L'outil logiciel utilisé (FLUENT) ne permet pas l'application d'une entrée de vitesse à un interface solide/fluide. Une entrée de vitesse ne peut être associée qu'aux limites externes du volume de contrôle. Afin de contourner ce problème, on modélise le bout de la fibre tel qu'illustré en Fig. 5.8.

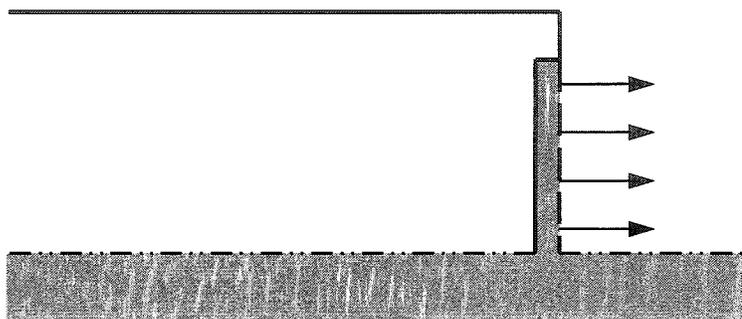


FIG. 5.8 Modélisation du jet d'hydrogène

Dans cette figure, la zone grise représente la région extérieure au volume de contrôle. La surface longitudinale de la fibre est modélisée de la même façon qu'auparavant, soit associée à un transfert de chaleur conjugué. Les deux surfaces en bout de fibre, qui sont directement des limite externes du volume de contrôle, sont considérées à température constante $T = 2400K$. L'éjection d'hydrogène est modélisée comme une entrée de vitesse dans le volume de contrôle. Cette face est une limite externe du volume de contrôle mais située tout prêt des autres faces à température constante en bout de fibre (seulement une rangée de cellules du maillage sépare ces deux régions).

L'interface solide/fluide restant en bout de fibre est lui aussi considéré à température constante $T = 2400K$, tout comme la modélisation en bout de fibre de la simulation globale. Cette zone sert à assurer une température $T = 2400K$ à l'extrémité de la fibre en contact avec la surface longitudinale de celle-ci afin d'éviter une discontinuité en température. La surface d'éjection d'hydrogène est alors considéré

égale à 80% de la surface en bout de fibre, soit 80% de la surface de déposition.

5.2.3 Vitesse du jet d'hydrogène

La vitesse du jet d'hydrogène est calculée à partir de la vitesse de déposition de carbone. La vitesse du jet est calculée de la façon suivante :

1. Comme expliqué précédemment, on fixe la valeur des paramètres suivants :

- Vitesse de dépôt du carbone $U_{DEP} = 0.5m/s$;
- Diamètre de la fibre $\phi_{fibre} = 20\mu m$;

2. Les propriétés des matériaux ont les valeurs suivantes :

- Masse molaire de l'hydrogène : $M_{H_2} = 2.01588kg/kmol$;
- Masse molaire du carbone : $M_C = 12.011kg/kmol$;
- Masse molaire du méthane : $M_{CH_4} = 16.043kg/kmol$;
- Densité du méthane absorbé (à $p = 50bar$ et $T = 193.15K$) : $\rho_{CH_4} = 179.505kg/m^3$;
- Densité du carbone vitreux déposé (à $p = 50bar$ et $T = 2400K$) : $\rho_C = 1470kg/m^3$;
- Densité de l'hydrogène éjecté ($p = 50bar$ et $T = 2400K$) : $\rho_{H_2} = 0.5023kg/m^3$;

3. Pour une fibre à bout plat, la surface effective de déposition est :

$$A_{DEP} = \pi(\phi_{fibre}/2)^2 = 3.1416E - 10m^2 \quad (5.3)$$

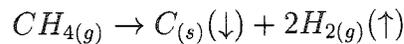
4. Le débit volumique de carbone déposé est :

$$\dot{V}_C = U_{DEP}A_{DEP} = 1.5708E - 10m^3/s \quad (5.4)$$

5. Le débit massique de carbone déposé est :

$$\dot{m}_C = \dot{V}_C \rho_C = 2.309E - 07 kg/s \quad (5.5)$$

6. Le dépôt de carbone à partir du méthane est une réaction équimolaire (Eq.1.1) :



Donc, 1 kmol de CH_4 donne 1 kmol de C . Ainsi, le débit molaire de méthane absorbé est équivalent au débit molaire de carbone déposé :

$$\dot{M} = \frac{\dot{m}_C}{M_C} = 1.9224E - 08 kmol/s \quad (5.6)$$

7. Pour chaque kmol de CH_4 qui est absorbée, deux kmol de H_2 sont éjectées. Le débit molaire d'hydrogène est donc :

$$\dot{M}_{H_2} = 2 \dot{M} = 3.8448E - 08 kmol/s \quad (5.7)$$

8. Le débit massique d'hydrogène éjecté est :

$$\dot{m}_{H_2} = \dot{M}_{H_2} M_{H_2} = 7.75E - 08 kg/s \quad (5.8)$$

9. Le débit volumique d'hydrogène éjecté est :

$$\dot{V}_{H_2} = \frac{\dot{m}_{H_2}}{\rho_{H_2}} = 1.543E - 07 m^3/s \quad (5.9)$$

10. D'après le modèle choisi, on suppose que l'éjection d'hydrogène en bout de

fibres se fait sur un diamètre égal à 80% celui de la fibre. La vitesse axiale d'éjection d'hydrogène est donc :

$$U_{H_2} = \frac{\dot{V}_{H_2}}{\pi(0.8(\phi_{fibre}/2))^2} = 767.4m/s \quad (5.10)$$

Cette très grande vitesse d'éjection provient en partie du fait que l'hydrogène chaud qui est éjecté est environ 350 fois moins dense que le méthane froid qui est absorbé.

En comparaison, le débit massique de méthane absorbé est :

$$\dot{m}_{CH_4} = \dot{M} M_{CH_4} = 3.0841E - 07kg/s \quad (5.11)$$

Ainsi, le débit volumique de méthane absorbé est :

$$V_{CH_4} = \frac{\dot{m}_{CH_4}}{\rho_{CH_4}} = 1.7181E - 09m^3/s \quad (5.12)$$

Aux conditions de déposition, le débit volumique d'hydrogène chaud qui est éjecté est environ 90 fois plus important que le débit volumique de méthane froid qui est absorbé.

Aux conditions de déposition ($p = 50bar$ et $T = 2400K$), la vitesse du son dans l'hydrogène est $a = 3590m/s$ (INSPI, 2004). Pour un jet d'hydrogène propulsé à $V = 767.4m/s$, on obtient un nombre de Mach égal à $Ma = 0.21$. Même à très haute vitesse, l'écoulement d'hydrogène peut encore être considéré incompressible.

5.3 Conditions frontières

La simulation spécifique est basée sur un volume de contrôle dont les conditions frontières sont, en partie, extraites de la simulation globale. Le volume de contrôle restreint est illustré en Fig. 5.9 et regroupe les conditions frontières suivantes :

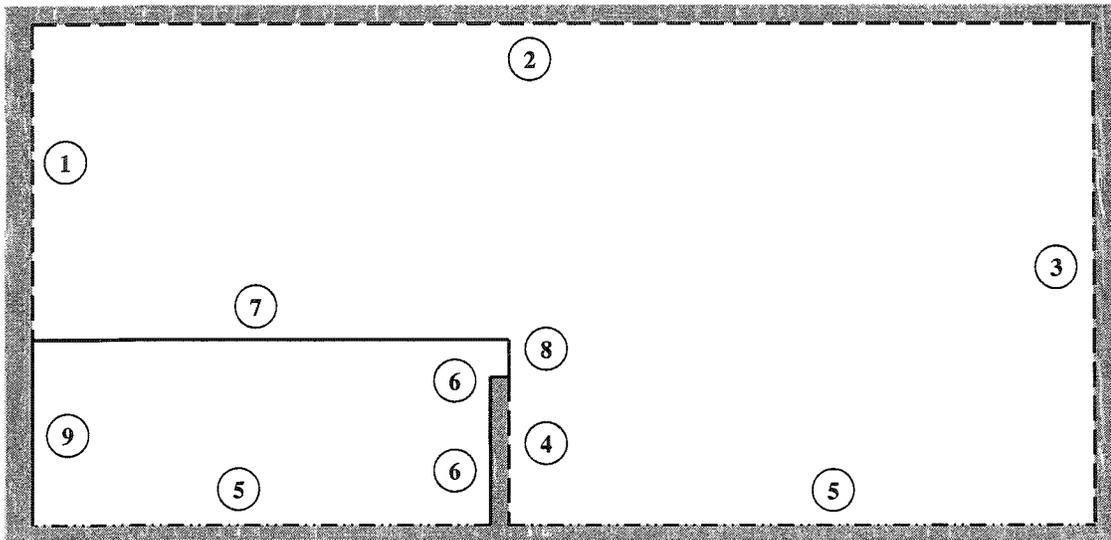


FIG. 5.9 Volume de contrôle spécifique

1) Entrée principale de l'écoulement de méthane : À cet endroit, les valeurs axiales et radiales de la vitesse de l'écoulement proviennent des données extraites de la simulation globale. Ces valeurs sont représentées à la Fig. 5.10 et Fig. 5.11. L'écoulement entrant est considéré à température constante ($T = 193.15K$) et composé à 100% de méthane.

2) Entrée supérieure de l'écoulement de méthane : À cet endroit, les valeurs axiales et radiales de la vitesse de l'écoulement proviennent des données extraites de la simulation globale. Ces valeurs sont représentées à la Fig. 5.12 et Fig. 5.13. L'écoulement entrant est considéré à température constante ($T = 193.15K$) et composé à 100% de méthane.

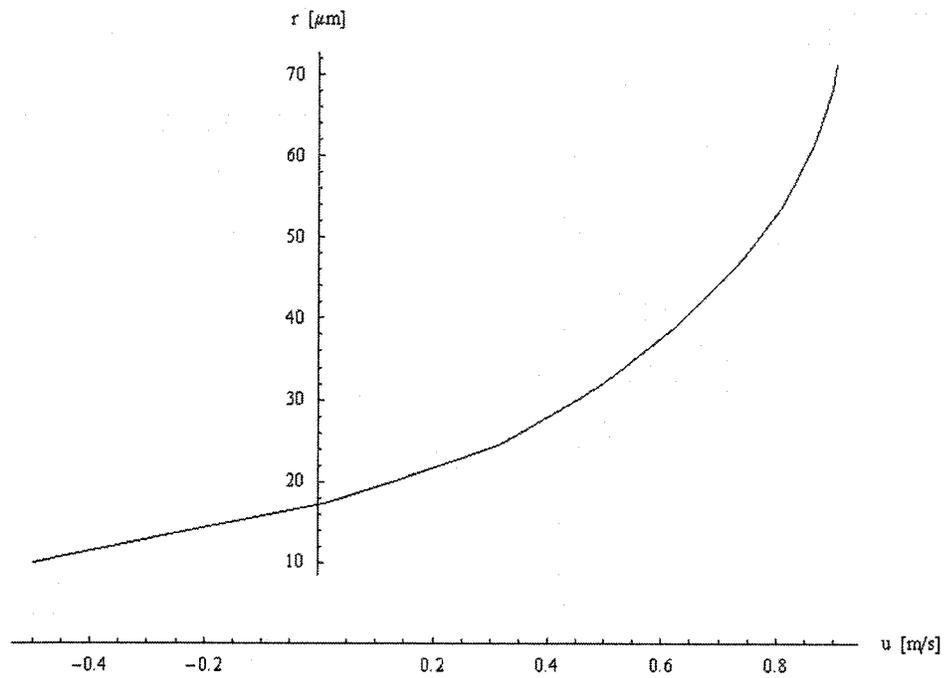


FIG. 5.10 Vitesse axiale provenant de la simulation globale, $z = -400\mu\text{m}$

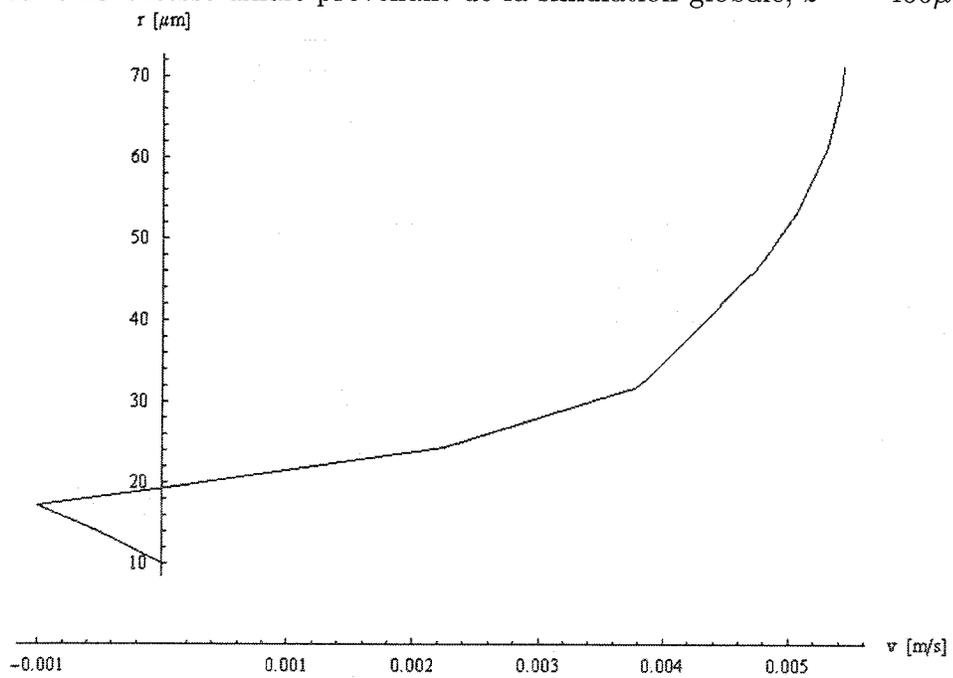


FIG. 5.11 Vitesse radiale provenant de la simulation globale, $z = -400\mu\text{m}$

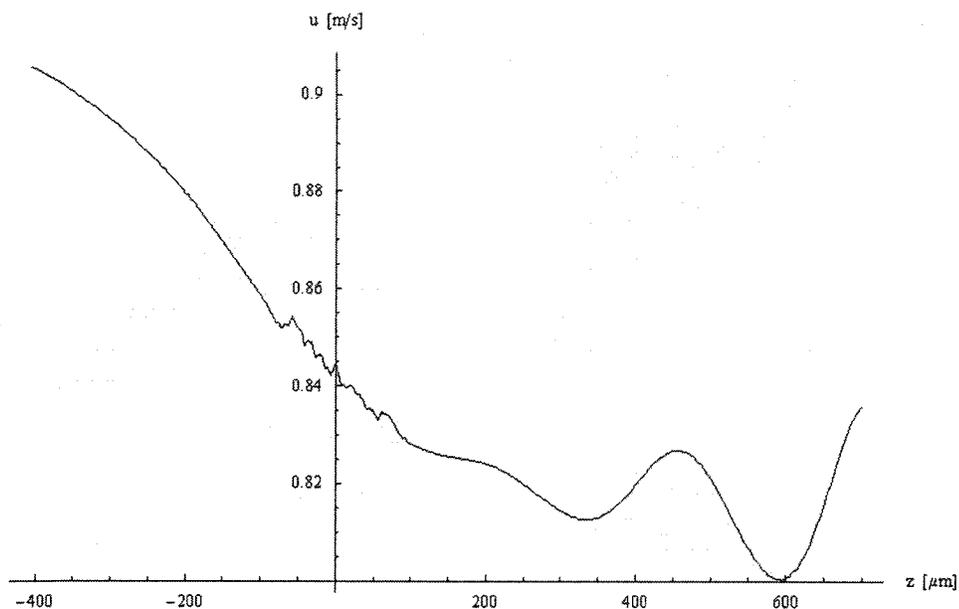


FIG. 5.12 Vitesse axiale provenant de la simulation globale, $r = 70\mu m$

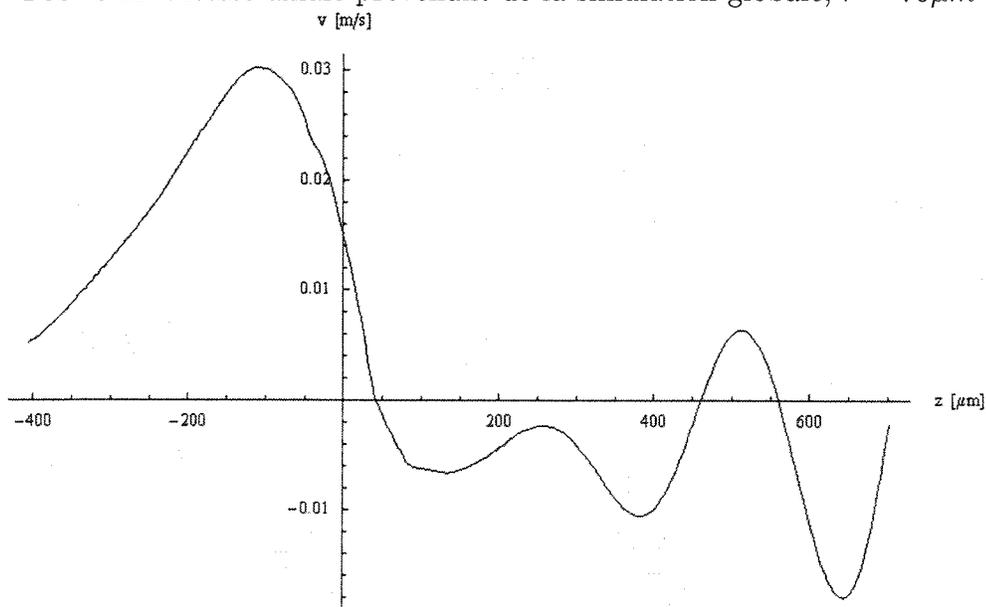


FIG. 5.13 Vitesse radiale provenant de la simulation globale, $r = 70\mu m$

3) Sortie du volume de contrôle : Même si des phénomènes de dynamique des fluides et de transfert de chaleur peuvent survenir au-delà de cette limite, leur influence est négligée, à l'endroit où l'on observe le phénomène de déposition. Ainsi : $\partial\phi/\partial z = 0$.

4) Entrée de l'écoulement d'hydrogène : Le jet d'hydrogène entre dans le volume de contrôle à cet endroit. L'écoulement est considéré uniquement axial ($v = 0$), à température constante $T = 2400K$ et composé à 100% d'hydrogène. La vitesse axiale u est celle déterminée par l'Eq.5.10.

5) Axe de symétrie : Le phénomène possède une symétrie par rapport à cet axe, autant dans la zone fluide que dans la zone solide. Ce qui donne pour toutes les propriétés : $\partial\phi/\partial r = 0$.

6) Parois solides en bout de fibre : Ces parois solides représente le bout de la fibre chauffé par le faisceau laser, donc $T = 2400K$.

7) Paroi longitudinale de la fibre : Comme dans la simulation globale, cette paroi est considérée comme un interface solide/fluide. À cet endroit, les conditions thermiques ne sont pas connues car la paroi est soumise à un transfert de chaleur conjugué (convection forcée induite par l'écoulement de méthane et conduction de chaleur dans la fibre provenant de l'énergie du faisceau laser appliqué en bout de fibre). De plus, la paroi longitudinale est en mouvement dans la direction axiale, car la fibre est tirée vers l'arrière lors de la déposition en mode continu. On suppose donc que le fluide immédiatement à sa surface "glisse" vers l'arrière à une vitesse équivalente à la vitesse de tirage (= vitesse de déposition axiale). Ainsi : $u(r) = 0$ et $u(z) = V_f$ (la vitesse de tirage V_f est nécessairement négative).

8) Bout de la fibre : Cette paroi est aussi considérée comme un interface solide/fluide. C'est à cet endroit que l'énergie provenant du faisceau laser entre dans le volume de contrôle. Contrairement à la paroi longitudinale, le bout de la fibre est considéré immobile car lors du procédé HP-LCVD en mode continu, l'accumulation/déposition à cet endroit se fait au même rythme que le tirage de la fibre, d'où la position relative constante de cette paroi. La température est constante

$T = 2400K$.

9) Section froide de la fibre : Paroi solide de la fibre qui est considérée à la même température que l'écoulement de méthane car on suppose que la zone thermique est concentré au bout de la fibre et n'affecte pas la base de celle-ci. Ainsi : $T = 193.15K$.

5.4 Maillage

Le maillage de la simulation spécifique, illustré en partie à la Fig. 5.14, comporte environ 144000 cellules rectangulaires. On utilise une concentration plus forte de cellule au-delà du bout de la fibre pour mieux capter le comportement du jet d'hydrogène. Le maillage est entièrement rectangulaire puisque la géométrie du volume de contrôle ne comporte pas de courbes et que l'écoulement à analyser est parallèle à la géométrie.

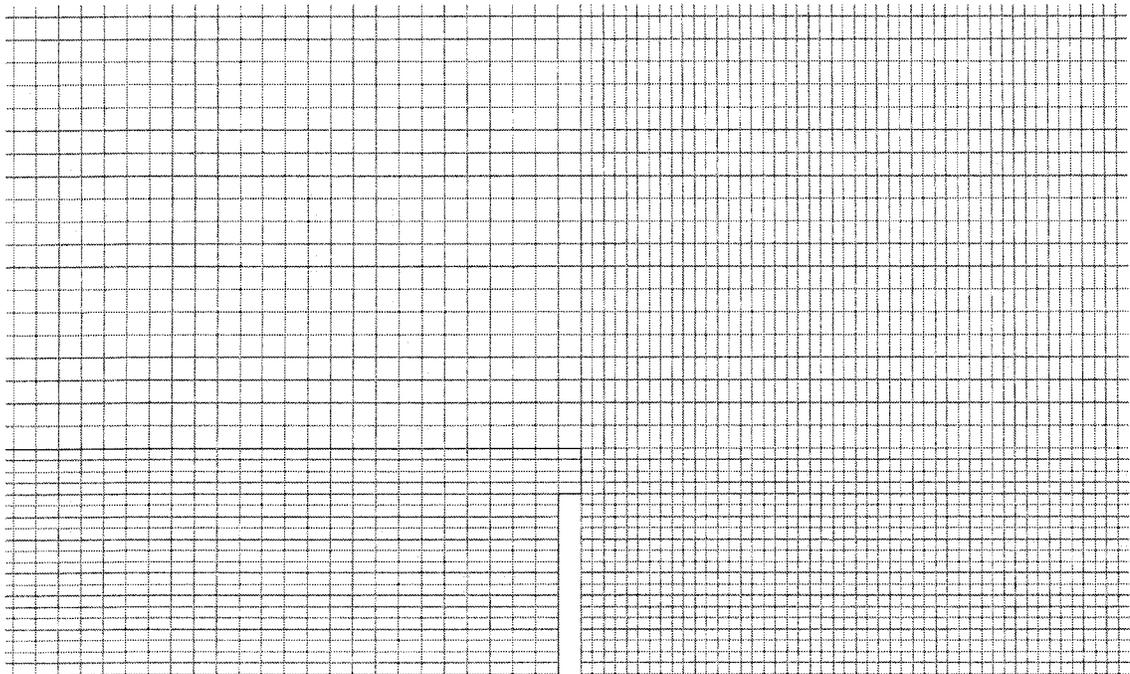


FIG. 5.14 Extrait du maillage spécifique en bout de fibre

Les principales différences entre le maillage de la simulation spécifique et celui de la simulation globale sont illustrées dans le tableau 5.1.

Détails	Globale	Spécifique
Superficie approx. :	$4.3E - 05m^2$	$7.7E - 08m^2$
#Cellules - Total :	400000	144000
#Cellules - Bout de fibre :	2	20
Ratio #Cellules par micromètre carré :	0.01	2

TAB. 5.1 Comparaison des maillages global et spécifique

5.5 Paramétrage de la simulation

La simulation spécifique est effectuée à l'aide du logiciel FLUENT® en utilisant les mêmes paramètres que lors de la simulation globale à la différence près qu'on utilise maintenant un mélange gazeux hydrogène-méthane plutôt qu'un mélange méthane-argon. Les conditions d'opérations sont identiques, ainsi que les propriétés physiques du méthane et du carbone vitreux.

CHAPITRE 6

ANALYSE DE LA SIMULATION SPÉCIFIQUE

La simulation spécifique a comme but l'étude des effets du jet d'hydrogène sur l'écoulement et sur les transferts thermiques autour de la fibre, afin d'évaluer si ce jet a une influence significative sur le procédé de déposition. La recherche expérimentale concernant ce jet d'hydrogène n'étant qu'à ses débuts, cette simulation spécifique est ainsi une étude exploratoire visant à déterminer les façons de modéliser le phénomène d'éjection.

6.1 Simulation spécifique sans jet d'hydrogène

On compare la distribution de température à la surface longitudinale de la fibre avec les résultats de la simulation globale. Cette comparaison est illustrée à la Fig. 6.1.

On observe un faible écart dans les distributions de température. Cet écart provient du choix, dans la simulation spécifique, de la condition frontière à la base de la fibre. Dans la simulation globale, on suppose un état froid lorsque $T_{froid} = 237.3K$. Dans la simulation spécifique, on impose l'état froid à la base de la fibre à $T = 193.15K$ puisque l'écoulement à l'entrée du volume de contrôle spécifique est initialement considéré lui aussi à $T = 193.15K$.

De la même façon, on compare la distribution radiale de température en bout de fibre entre la simulation globale et la simulation spécifique tel qu'illustré en Fig. 6.2. La simulation spécifique a un maillage plus raffiné dans la direction radiale que

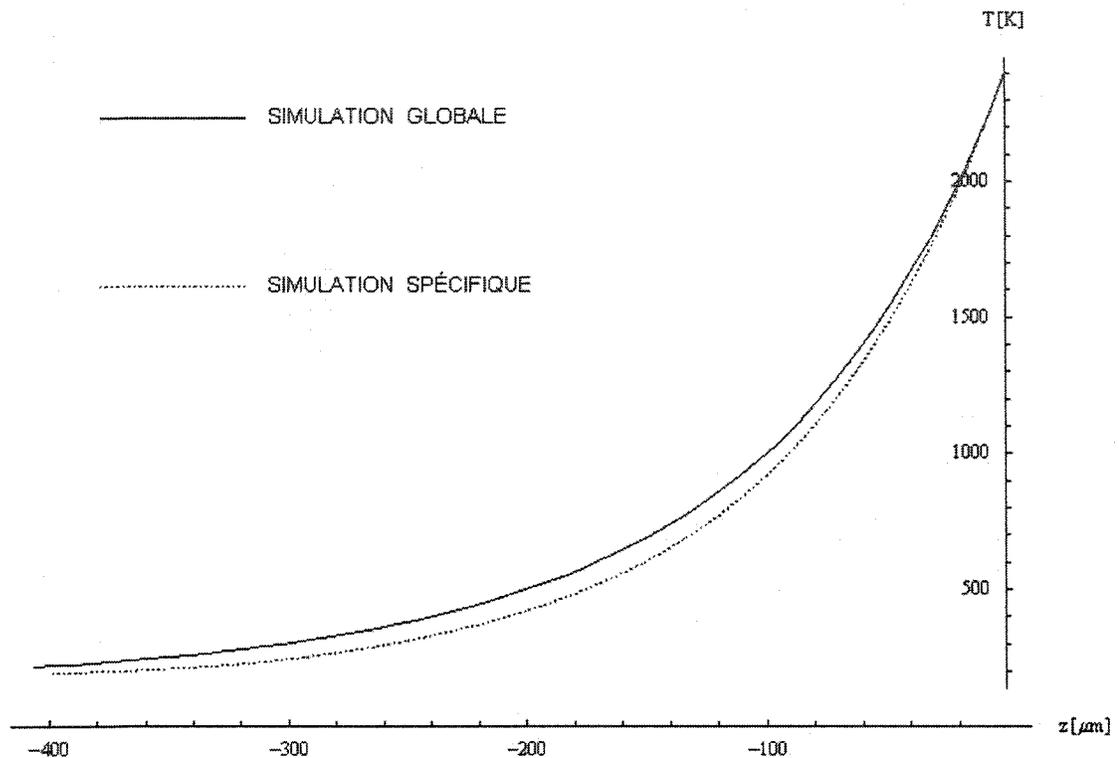


FIG. 6.1 Distribution de température à la surface de la fibre

le maillage de la simulation globale. Cela permet d'obtenir une distribution de température moins discontinue.

Pour la direction axiale à partir du bout de la fibre, la comparaison des distributions de température pour les simulations globale et spécifique est illustré en Fig. 6.3. La première simulation spécifique effectuée (SIMULATION SPÉCIFIQUE 1) utilise en sortie de volume de contrôle, une condition $\partial\phi/\partial z = 0$. Pour fins de vérifications, une deuxième simulation spécifique est conduite (SIMULATION NUMÉRIQUE 2) qui utilise en sortie de volume de contrôle, une condition $\partial p/\partial z = 0$.

On remarque que le résultat de la deuxième simulation spécifique s'approche de la distribution de température de la simulation globale. Toutefois, le refroidissement axial après le bout de la fibre des deux simulations spécifiques est moins rapide

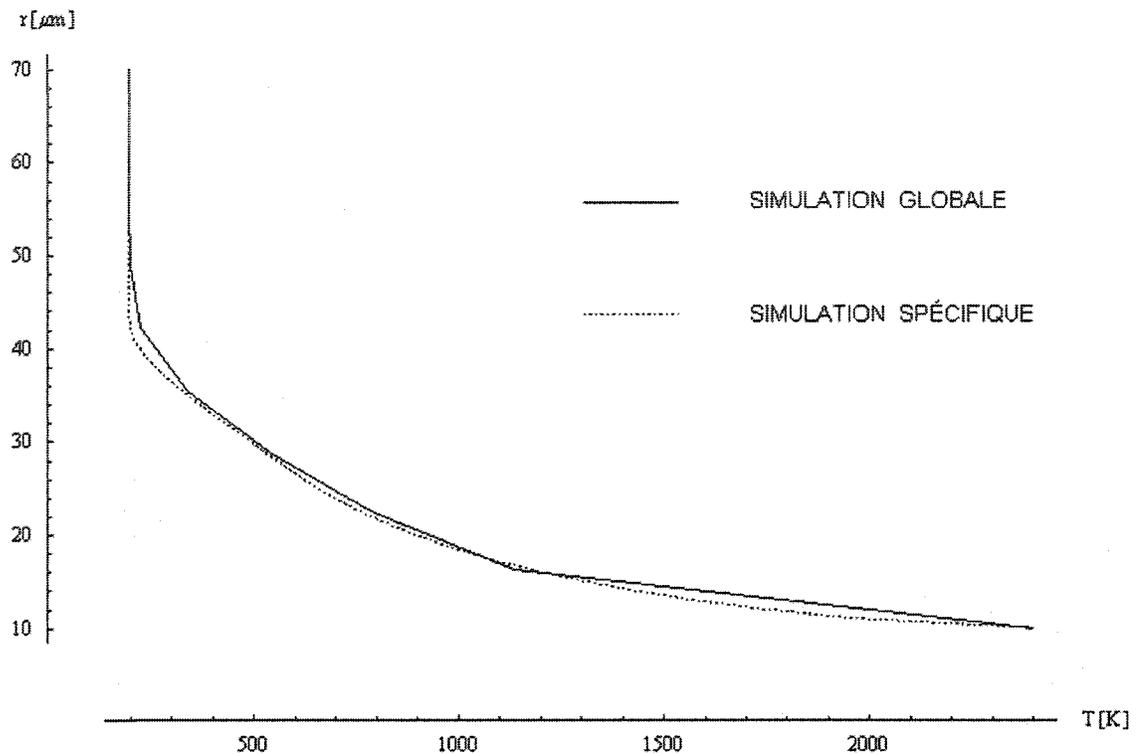


FIG. 6.2 Distribution radiale de température en bout de fibre

que celui de la simulation globale. Cette différence est dû au choix de la condition frontière à la sortie du volume de contrôle spécifique car celle-ci n'est pas associée directement aux valeurs de vitesse d'écoulement de la simulation globale à cet endroit. Cette différence n'influence pas l'étude spécifique en bout de fibre qui consiste à observer les effets du jet d'hydrogène sur l'écoulement du volume de contrôle spécifique plutôt que directement en comparaison avec l'écoulement global. De plus, le maillage de la simulation spécifique est plus raffiné dans l'axe de la fibre, ce qui donne un degré de précision plus élevé que dans le cas de la simulation globale.

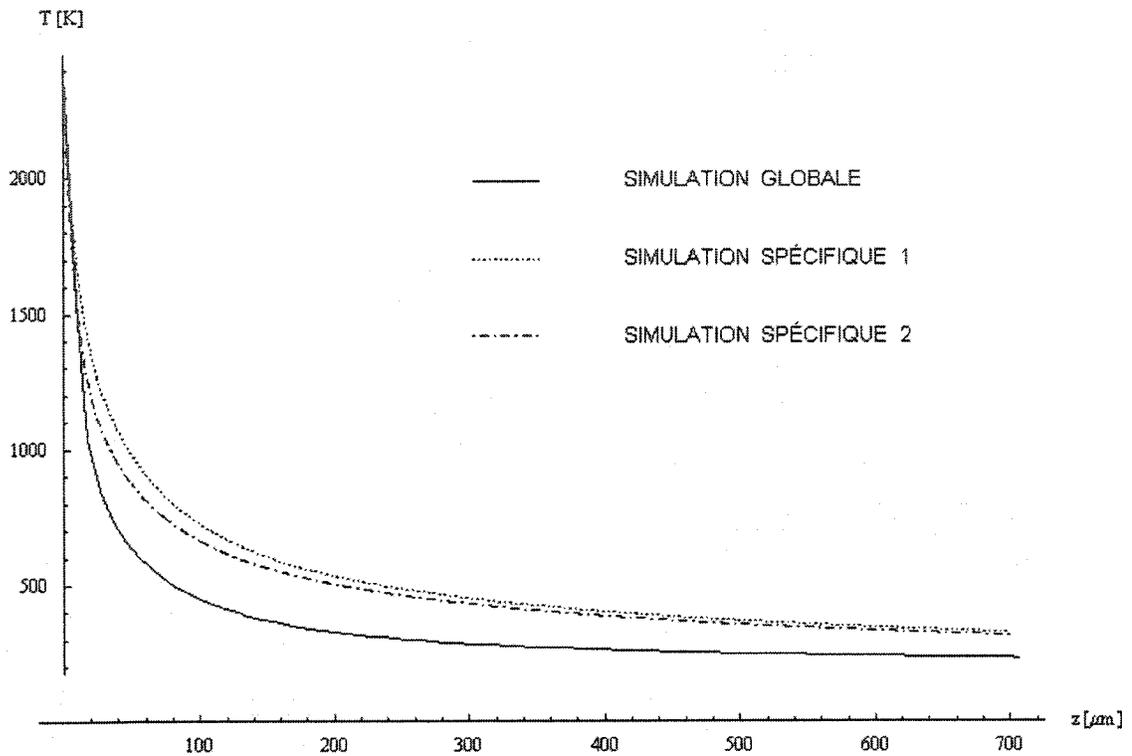


FIG. 6.3 Distribution axiale de température à partir du bout de la fibre

6.2 Simulation spécifique avec jet d'hydrogène

6.2.1 Instabilités de la simulation

Comme démontré auparavant, les propriétés physiques des fluides varient en fonction de la température et les propriétés du mélange d'espèces sont calculées en utilisant les lois de mélange à partir des propriétés individuelles de chaque espèce. Ainsi, l'éjection d'hydrogène chaud à haute vitesse ($T = 2400\text{K}$, $u = 767.4\text{m/s}$) dans l'écoulement de méthane froid à très basse vitesse ($T = 193.15\text{K}$, $u = 1\text{m/s}$) produit un mélange dont les propriétés physiques peuvent varier de façon importante.

La simulation spécifique avec le jet d'hydrogène en bout de fibre est donc un modèle numérique complexe incluant plusieurs paramètres variant de façon significative en fonction de la température. De plus, certaines régions de l'écoulement subissent à la fois un transfert important de masse et d'énergie.

La Fig. 6.4 représente l'évolution des résidus durant la simulation. On remarque que la simulation ne converge pas facilement mais atteint plutôt un état stable et oscillatoire.

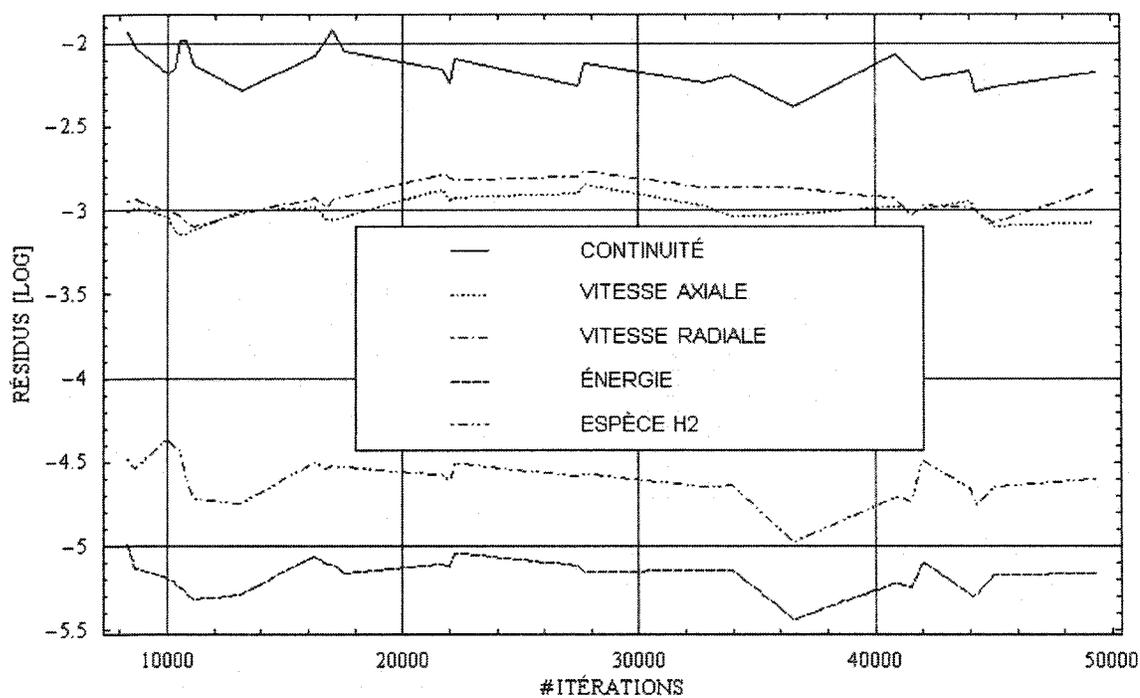


FIG. 6.4 Évolution des résidus

En l'absence de convergence directe de la simulation, on cherche à obtenir un état où les variations de calculs durant la simulation n'affecte plus la distribution de température à la surface de la fibre. Cette distribution de température est en effet le paramètre qui régit le phénomène de déposition.

6.2.2 Effets du jet d'hydrogène

Dans la première partie de la simulation, l'évolution de la distribution de température à la surface de la fibre est tel qu'illustrée en Fig. 6.5.

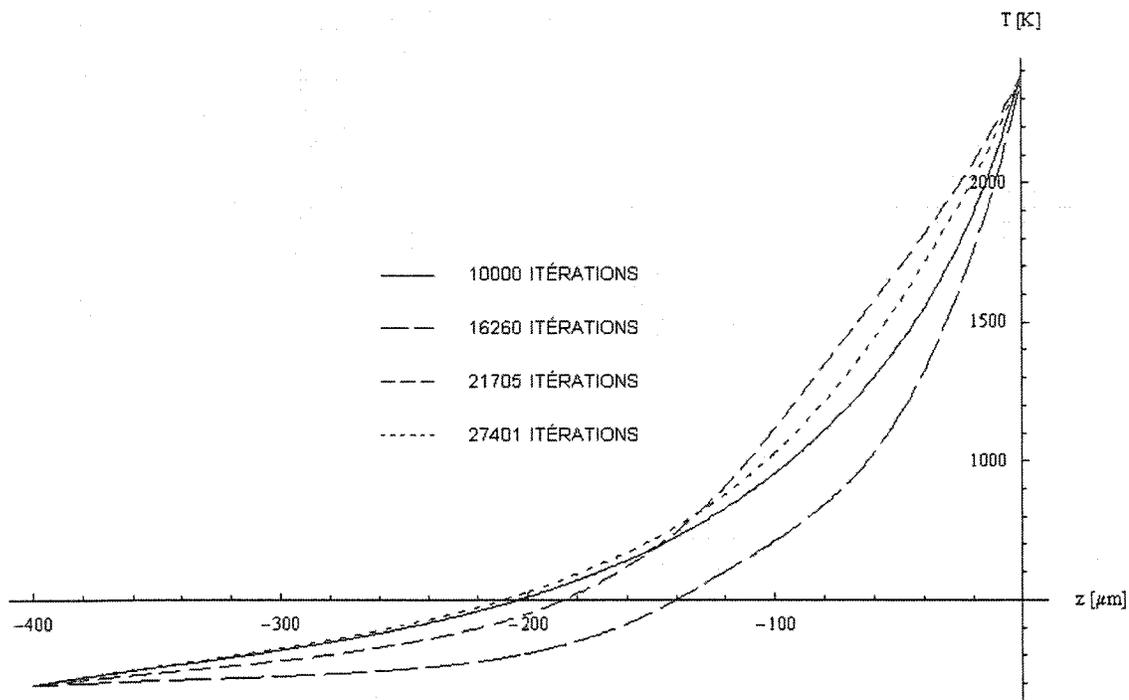


FIG. 6.5 Distribution de température à la surface de la fibre (10000-27401iters)

Par la suite, la distribution de température se stabilise et on remarque qu'en comparaison avec la simulation sans jet d'hydrogène, ce jet provoque un réchauffement longitudinal de la fibre, tel qu'illustré en Fig. 6.6.

6.2.3 Résumé des observations

Le jet d'hydrogène de la simulation spécifique est modélisé comme étant constant en bout de fibre car dans le cas d'une fibre à bout plat, la déposition est constante et ne s'effectue que dans la direction axiale. L'éjection d'hydrogène ne peut donc

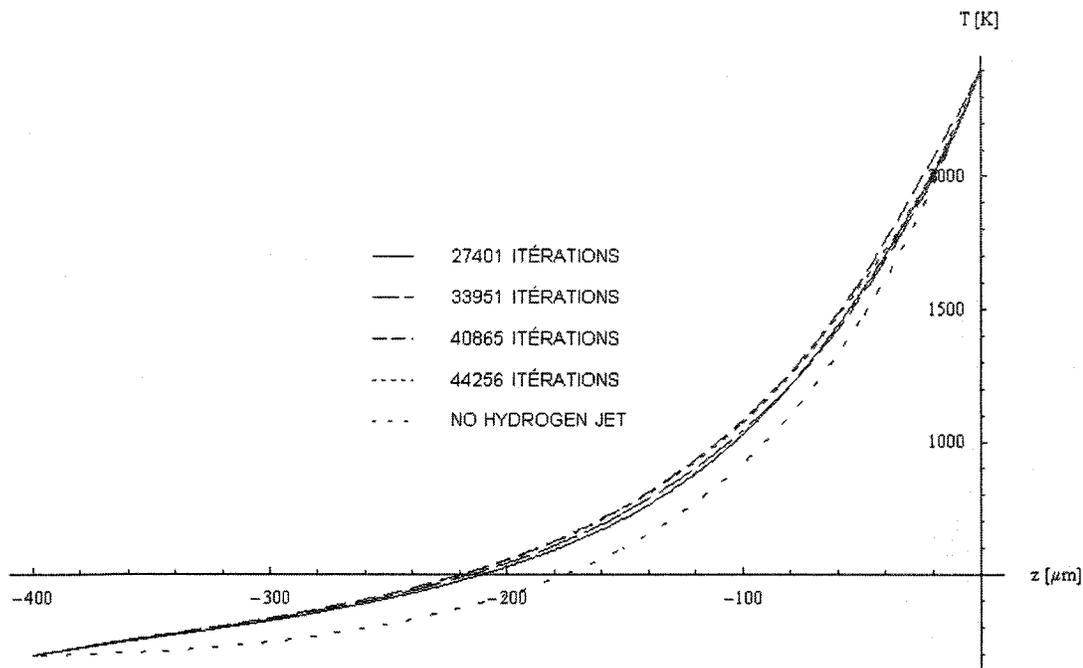


FIG. 6.6 Distribution de température à la surface de la fibre (27401-44256iters)

s'effectuer que dans cette même direction. De plus, comme discuté au chapitre 5, on modélise le jet d'hydrogène comme ayant un diamètre similaire à celui de la fibre (à 80%) puisqu'on considère qu'il y a nécessairement éjection d'hydrogène lorsqu'il y a une déposition de carbone, soit sur toute la surface du bout plat de la fibre.

D'après les observations expérimentales et les calculs réalisés au sein du Laboratoire de Fabrication en Formes Libres, les fibres déposées ont généralement un bout à géométrie elliptique (la déposition est plus intense au centre dû à un plus grand gradient de température). Une déposition plus élevée provoque ainsi une éjection d'hydrogène plus grande, ce qui correspond à un profil d'éjection en bout de fibre tel qu'illustré en Fig. 6.7 (profil logarithmique).

On remarque que la majorité de l'éjection d'hydrogène est localisée au centre du bout de la fibre, à l'endroit où la déposition est maximale. Dans le cas d'une fibre

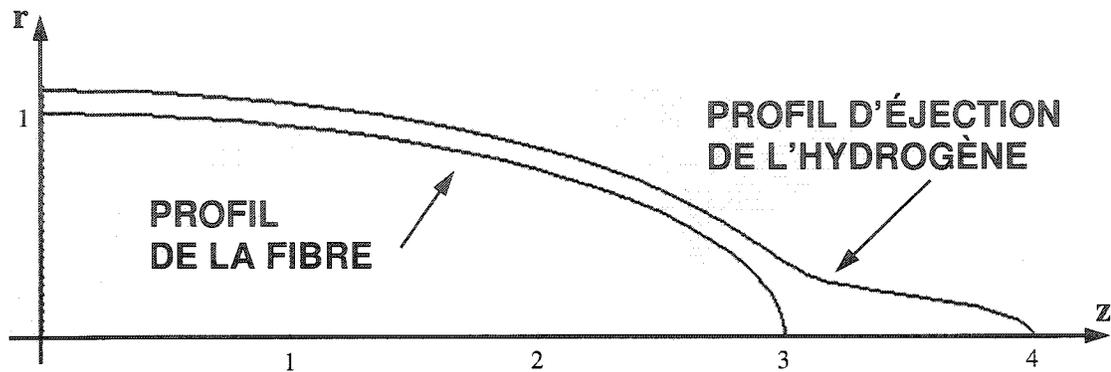


FIG. 6.7 Profil logarithmique d'éjection d'hydrogène

à bout elliptique, on suppose qu'une grande vitesse d'éjection d'hydrogène provoquera un entraînement de l'écoulement environnant dans la direction d'éjection, augmentant ainsi la convection forcée à la surface de la fibre tel que schématisé à la Fig. 6.8.

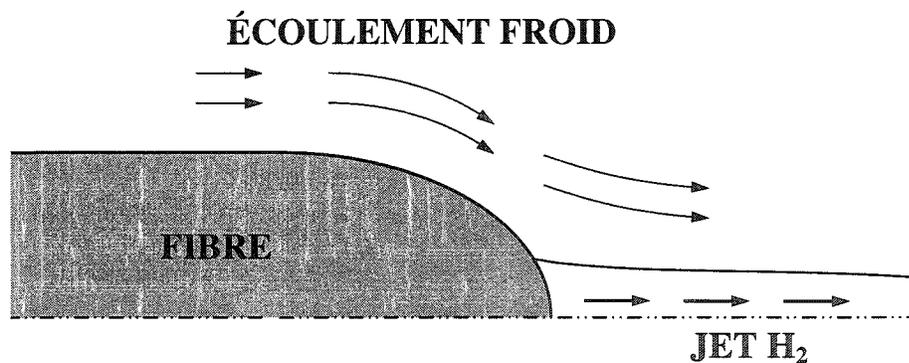


FIG. 6.8 Entraînement de l'écoulement par l'éjection d'hydrogène

L'utilisation d'un modèle de fibre à bout plat pose ici problème si on modélise un jet d'hydrogène ayant un diamètre trop important. Celui-ci provoque un réchauffement de la surface longitudinale de la fibre qui se trouve trop près du jet d'hydrogène.

Pour un débit fixe d'éjection d'hydrogène (calculé à partir de la vitesse axiale de déposition), il est préférable de modéliser un jet d'hydrogène ayant un diamètre plus petit que celui de la fibre afin d'empêcher un transfert thermique direct entre

le jet et la surface de la fibre.

Une modélisation optimale de l'éjection d'hydrogène doit donc comporter les éléments suivants :

- L'éjection d'hydrogène est en majorité localisée au centre du bout de la fibre ;
- Le diamètre du jet d'hydrogène est beaucoup plus petit que celui de la fibre ;
- Une géométrie elliptique en bout de fibre, représentant plus fidèlement les résultats expérimentaux ;

La modélisation d'un jet d'hydrogène éjecté d'une fibre à bout plat permet tout de même de montrer que ce jet a une influence sur le transfert thermique à la surface de la fibre si celui-ci est d'un diamètre important. Comme démontré par les calculs des paramètres du jet d'hydrogène (au chapitre 5), pour un débit constant représentatif de la déposition de carbone, le jet d'hydrogène possède une très grande énergie cinétique. Il est raisonnable de soumettre l'hypothèse que, même si le jet d'hydrogène est très petit, celui-ci aura une influence sur l'écoulement environnant. La simulation spécifique montre donc qu'il est important d'inclure ce phénomène lors des analyses du procédé HP-LCVD. Des études subséquentes pourront montrer si ce jet a une influence positive ou négative sur le phénomène de déposition.

CONCLUSION

Cette étude dégage deux aspects importants à inclure dans l'analyse du procédé HP-LCVD :

1. Il est nécessaire d'étudier les effets des produits de réaction sur le procédé. Dans le cas de la déposition de fibres de carbone à partir du méthane, il a été montré que l'éjection d'hydrogène qui en résulte a une influence importante en bout de fibre sur la déposition. Il est donc important d'inclure les produits de réaction lors d'une analyse du procédé, afin d'améliorer le contrôle de celui-ci lors de la fabrication de fibres en mode continu.
2. Un écoulement forcé parallèle à la fibre produit une convection forcée qui concentre la zone thermiquement affectée en bout de fibre et diminue la propagation de cette zone dans la direction radiale. Cela permet un meilleur contrôle de la région de déposition et la possibilité de déposer des fibres ayant un plus petit diamètre.

La déposition de fibre est caractérisée par une zone de réaction très localisée, ce qui complexifie la création d'un modèle numérique représentant entièrement le procédé. Les modèles numériques de la présente étude comportent donc les limites suivantes :

- L'utilisation d'un modèle de fibre à bout plat simplifie l'application des conditions d'opération. Il a par contre été observé durant cette étude que cette géométrie peut influencer l'écoulement en bout de fibre. Il est ainsi recommandé d'utiliser une géométrie plus représentative du bout de la fibre (sphérique ou elliptique) lors d'études subséquentes.
- Les paramètres d'opération initialement imposés prédisposent le modèle numérique à des instabilités, car ceux-ci placent le procédé dans une zone où les fluides utilisés sont à l'état supercritique et où leurs propriétés physiques varient de fa-

çon non négligeable lors d'une faible variation de température. Il est conseillé d'utiliser des paramètres d'opération différents où les propriétés physiques des fluides sont plus stables.

- L'outil d'analyse numérique utilisé démontre certaines difficultés à modéliser les phénomènes microfluidiques possédant un grand facteur d'échelle entre eux et incluant des phénomènes superposés.

En tenant compte des contraintes et des limites de cette étude et à la lumière des résultats obtenus, la recherche sur les sujets suivants apparaît comme une étape importante dans l'étude du procédé de déposition de fibres par LCVD :

- Étude de modélisation sur l'absorption et l'éjection simultanées et superposées des composants participants à la réaction de déposition : Il serait intéressant d'étudier l'interaction directe, en bout de fibre, de l'absorption des réactifs et de l'éjection des produits de réaction et d'en évaluer les différentes possibilités de modélisation.
- Étude des écoulements annulaires microfluidiques : Avec l'intérêt grandissant concernant les micromachines et la micropropulsion, il semble important d'approfondir les connaissances sur le comportement d'un écoulement annulaire à l'échelle microscopique et d'évaluer si les études existantes sur les écoulements annulaires sont applicables ou non au domaine des microfluides.
- Étude spécifique de l'influence des produits de réaction sur le procédé de déposition de fibre : Puisqu'il a été montré que l'éjection d'hydrogène a une influence sur le procédé de déposition, il faudrait analyser si les produits de réaction ont toujours une influence sur le procédé, peut importe le choix de gaz précurseur ou de conditions d'opération.

Il est nécessaire d'acquérir une connaissance plus approfondie de tous les aspects du procédé de déposition tridimensionnelle par LCVD. Ceci permettra un contrôle

optimal du procédé et permettra la fabrication en masse de fibres et autres structures à l'échelle microscopique, pouvant être utilisés dans diverses applications par exemple, la micro-électronique ou encore dans le domaine des composites à haute performance.

RÉFÉRENCES

- ABDEL-HAMEED, H. and BELLAN, J. (2002). Direct numerical simulations of two-phase laminar jet flows with different cross-section injection geometries. *Physics of Fluids*, **14**(1), 192–197.
- ARNOLD, N., THOR, E., KIRICHENKO, N., and BAUERLE, D. (1996). Pyrolytic lcvd of fibers : a theoretical description. *Applied Physics A (Materials Science Processing)*, **A62**(6), 503–508.
- BAUERLE, D. (1996). *Laser Processing and Chemistry*. Springer-Verlag, 2nd edition.
- BAUERLE, D., LUK'YANCHUK, B., and PIGLMAYER, K. (1990). On the reaction kinetics in laser-induced pyrolytic chemical processing. *Applied Physics A (Solids and Surfaces)*, **A50**(4), 385–396.
- CUSSLER, E. (1984). *Diffusion : Mass Transfer in Fluid Systems*. Cambridge Univeristy Press.
- DUTY, C., JOHNSON, R., GILLESPIE, J., FEDOROV, A., and LACKEY, J. (2003). Heat and mass-transfer modeling of an angled gas-jet lcvd system. *Applied Physics A (Materials Science Processing)*, **A77**(5), 697–705.
- FAUTEUX, C., LONGTIN, R., PEGNA, J., and BOMAN, M. (2004). Microstructure and growth mechanism of laser grown carbon microrods as a function of experimental parameters. *Journal of Applied Physics*, **95**(5), 2737–2743.
- FLUENT (2003). *FLUENT 6.1 User's Guide*. FLUENT Inc.
- INCROPERA, F. and DEWITT, D. (1984). *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. John Wiley, 4th edition.
- INSPI (2004). Hydrogen properties package (http://inspi.ufl.edu/data/h_prop_package.html). Page consultée le 10 mars 2005.

- JEAN, D., DUTY, C., JOHNSON, R., BONDI, S., and LACKEY, W. (2002). Carbon fiber growth kinetics and thermodynamics using temperature controlled lcvd. *Carbon*, **40**(9), 1435–1445.
- LAN, H., NASSAR, R., DAI, W., and ZHANG, C. (2003). Mathematical model for simulating axisymmetric rod growth with kinetically limited and mass transport limited rates. In *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering : Micromachining and Microfabrication Process Technology VII*, volume 27-29, pages 549–560.
- LI, Y., KIRKPATRICK, A., and WILLSON, B. (2002). Characteristics and computational fluid dynamics modeling of high-pressure gas jet injection. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, **126**(10), 3655–3674.
- LONGTIN, R., FAUTEUX, C., CORONEL, E., WIKLUND, U., PEGNA, J., and BOMAN, M. (2004). Nanoindentation of carbon microfibers deposited by laser-assisted chemical vapor deposition. *Applied Physics A (Materials Science & Processing)*, **A79**(3), 573–577.
- MAXWELL, J. (1996). *Three-Dimensional Laser-Induced Pyrolysis : Modelling, Growth Rate Control, and Application to Micro-Scale Prototyping*. PhD thesis, Rensselaer Polytechnic Institute.
- MAXWELL, J., PEGNA, J., and MESSIA, D. (1998). Real-time volumetric growth rate measurements and feedback control of three-dimensional laser chemical vapor deposition. *Applied Physics A (Materials Science Processing)*, **A67**(3), 323–329.
- NASSAR, R., DAI, W., and CHEN, Q. (2002). An axisymmetric numerical model for simulating kinetically-limited growth of a cylindrical rod in 3d laser-induced chemical vapor deposition. *Journal of Materials Science and Technology*, **18**(2), 127–132.

- NELSON, L. and RICHARDSON, N. (1972). Formation of thin rods of pyrolytic carbon by heating with a focused carbon dioxide laser. *Materials Research Bulletin*, **7**(9), 971–975.
- NIST (2003). Thermophysical properties of fluid systems (<http://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/>). Page consultée le 28 novembre 2004.
- PERRY, R., GREEN, D., and MALONEY, J. (1997). *Perry's Chemical Engineer's Handbook*. McGraw-Hill, 7th edition.
- PIERSON, H. (1993). *Handbook of Carbon, Graphite, Diamond, and Fullerenes : Properties, Processing and Applications*. Noyes Publications.
- RYHMING, I. (1991). *Dynamique des Fluides*. Presses Polytechnique et Universitaires Romandes, 2e edition.
- SHAARAWI, M., SANCHEZ, J., KAN, H., and MANTHIRAM, A. (2000). Modeling of laser-induced chemical vapor deposition of silicon carbide rods from tetramethylsilane. *Journal of the American Ceramic Society*, **83**(8), 1947–1952.
- WALLENBERGER, F. (1997). Inorganic fibres and microfabricated parts by laser assisted chemical vapour deposition (lcvd) : Structures and properties. *Ceramics International*, **23**(2), 119–126.
- WALLENBERGER, F. and NORDINE, P. (1993). Strong, pure, and uniform carbon fibers obtained directly from the vapor phase. *Science*, **260**(5104), 66–68.
- WHITE, F. (1994). *Fluid Mechanics*. McGraw-Hill, Inc., 3rd edition.
- YU, D. and DUNCAN, A. (1998). Investigation of induced thermal and fluid transport phenomena in laser assisted chemical vapor deposition. In *Proceedings of the 1998 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition*, volume 361-364, pages 183–191.

CHAPITRE 7

SIMULATION GLOBALE - FONCTIONS DÉFINIES PAR
L'UTILISATEUR (UDF)

```

/*****
  Déclaration des variables
*****/

#include "udf.h"

#define DIAM_FIBRE 20.0e-06
#define DIAM_INLET 340.0e-06
#define DIAM_OUTER_SECONDINLET 6.00e-03
#define DIAM_INNER_SECONDINLET 1.50e-03
#define U_MAX 1.0
#define USECOND_MAX 0.1
#define U_FIBRE -0.5

/*****
  Fonction de l'écoulement principal
*****/

DEFINE_PROFILE(cylindricalvelocity_profile, t, i) {
  real a, b, y, x[ND_ND];
  face_t f;
```

```

b = DIAM_FIBRE / 2.0;
a = DIAM_INLET / 2.0;

begin_f_loop(f, t)
{
  F_CENTROID(x, f, t);
  y = x[1];

  F_PROFILE(f, t, i) = ( U_MAX - U_FIBRE*log( 2.0*a/(a-b) )
    /log( 1.0*a/b ) ) / ( a*a - 0.25*(a-b)*(a-b) - (a*a-b*b)
    *log( 2.0*a/(a-b) )/log( 1.0*a/b ) ) * ( a*a-y*y - 1.0
    *(a*a-b*b)*log( 1.0*a/y )/log( 1.0*a/b ) ) +
    ( 1.0*U_FIBRE*log( 1.0*a/y )/log( 1.0*a/b ) );

}
end_f_loop(f, t)
}

/*****
Fonction de l'écoulement secondaire
*****/

DEFINE_PROFILE(cylindricalparabolic_profile, t, i) {
  real a, b, y, x[ND_ND];
  face_t f;

  a = DIAM_OUTER_SECONDINLET / 2.0;
  b = DIAM_INNER_SECONDINLET / 2.0;

```

```
begin_f_loop(f, t)
{
    F_CENTROID(x, f, t);
    y = x[1];

    F_PROFILE(f, t, i) = ( USECOND_MAX * ( a*a-y*y + 1.0*(a*a-b*b)
    /log( 1.0*b/a )*log( 1.0*a/y ) ) ) / ( a*a - 1.0*(a*a - b*b)
    /(2.0*log( 1.0*a/b )) + 1.0*(a*a-b*b)/log( 1.0*b/a )
    *log( 1.0*a/sqrt( (a*a-b*b)/(2.0*log( 1.0*a/b )) ) ) );
}
end_f_loop(f, t)
}
```

CHAPITRE 8

SIMULATION SPÉCIFIQUE - FONCTIONS DÉFINIES PAR
L'UTILISATEUR (UDF)

```

/*****
Déclaration des variables
*****/

#include "udf.h"

#define DIAM_FIBRE 20.0e-06
#define DIAM_INLET 340.0e-06
#define DIAM_OUTER_SECONDINLET 6.00e-03
#define DIAM_INNER_SECONDINLET 1.50e-03
#define U_MAX 1.0
#define USECOND_MAX 0.1
#define U_FIBRE -0.5
#define VISCOSITY 1.7929e-05

/*****
Coefficient de diffusion de l'hydrogène
*****/

DEFINE_DIFFUSIVITY(hydrogen_diff, c, t, i)
{
    real T = C_T(c,t);
```

```

return (-1.1852576294664507e-6) + (8.122349662502388e-9)*T -
(2.635901534614855e-13)*T*T + (4.080428418584522e-15)*T*T*T -
(1.843018678375854e-18)*T*T*T*T + (2.7948266920770216e-22)*T*T*T*T*T;
}

```

```

/*****

```

```

    Vitesse axiale - Entrée supérieure gauche

```

```

*****/

```

```

DEFINE_PROFILE(upleft_axial, t, i)

```

```

{

```

```

    real z, x[ND_ND];

```

```

    face_t f;

```

```

    begin_f_loop(f, t)

```

```

    {

```

```

        F_CENTROID(x, f, t);

```

```

        z = x[0];

```

```

        F_PROFILE(f, t, i) = 0.8442767291506337 - 65.4341588717882*z +

```

```

        (1.182336838804871e6)*pow(z,2) + (3.9398510277978373e9)*pow(z,3) +

```

```

        (3.8221264510595713e12)*pow(z,4);

```

```

    }

```

```

    end_f_loop(f, t)

```

```

}

```

```

/*****

```

```

    Vitesse axiale - Entrée supérieure droite

```

```
*****/
```

```
DEFINE_PROFILE(upright_axial, t, i)
```

```
{
```

```
  real z, x[ND_ND];
```

```
  face_t f;
```

```
  begin_f_loop(f, t)
```

```
  {
```

```
    F_CENTROID(x, f, t);
```

```
    z = x[0];
```

```
    F_PROFILE(f, t, i) = 0.8421152466168517 + 27.84460403552879*z -
      (6.762432188006591e6)*pow(z,2) + (8.82160708609436e10)*pow(z,3) -
      (4.743982314920859e14)*pow(z,4) + (1.0812927096106985e18)*pow(z,5) -
      (2.9641654114218213e20)*pow(z,6) - (2.967032741481931e24)*pow(z,7) +
      (4.815024357412132e27)*pow(z,8) - (2.3085612415941864e30)*pow(z,9);
```

```
  }
```

```
  end_f_loop(f, t)
```

```
}
```

```
/******
```

```
  Vitesse radiale - Entrée supérieure gauche
```

```
*****/
```

```
DEFINE_PROFILE(upleft_radial, t, i)
```

```
{
```

```
  real z, x[ND_ND];
```

```

face_t f;

begin_f_loop(f, t)
{
  F_CENTROID(x, f, t);
  z = x[0];

  if ( z <= -109.917e-6 )
    F_PROFILE(f, t, i) = -0.014692329117906015 - 1100.9621566872963*z -
      (9.532736744384184e6)*pow(z,2) - (3.6076625693633064e10)*pow(z,3) -
      (6.580398739155658e13)*pow(z,4) - (4.6938961632094016e16)*pow(z,5);
  else
    F_PROFILE(f, t, i) = 0.015079896736652476 - 302.13220323893756*z -
      (1.762155121186417e7)*pow(z,2) - (2.494193354920917e12)*pow(z,3) -
      (1.5199106550033286e17)*pow(z,4) - (4.647937896118357e21)*pow(z,5) -
      (7.85665229822487e25)*pow(z,6) - (7.473669239767624e29)*pow(z,7) -
      (3.7533705941776386e33)*pow(z,8) - (7.750137812035552e36)*pow(z,9);
}
end_f_loop(f, t)
}

/*****
  Vitesse radiale - Entrée supérieure droite
*****/

DEFINE_PROFILE(upright_radial, t, i)
{
  real z, x[ND_ND];

```

```

face_t f;

begin_f_loop(f, t)
{
    F_CENTROID(x, f, t);
    z = x[0];

    F_PROFILE(f, t, i) = 0.015047369094529917 - 246.8407680783048*z -
        (1.0338679660781235e7)*pow(z,2) + (3.099966809230208e11)*pow(z,3) -
        (3.8099855256837835e15)*pow(z,4) + (2.6599599398063047e19)*pow(z,5) -
        (1.1470124900191923e23)*pow(z,6) + (3.1427529265698884e26)*pow(z,7) -
        (5.465068665681825e29)*pow(z,8) + (5.83124631141826e32)*pow(z,9) -
        (3.478719921397927e35)*pow(z,10) + (8.880751230347998e37)*pow(z,11);
}
end_f_loop(f, t)
}

/*****
    Vitesse axiale - Entrée gauche
*****/

DEFINE_PROFILE(farleft400_axial, t, i)
{
    real r, x[ND_ND];
    face_t f;

    begin_f_loop(f, t)
    {

```

```

F_CENTROID(x, f, t);
r = x[1];

F_PROFILE(f, t, i) = -1.7132658629003021 + 159816.84638395134*r -
(4.501955669789108e9)*pow(r,2) + (6.3261412731258266e13)*pow(r,3) -
(3.452377433851189e17)*pow(r,4);
}
end_f_loop(f, t)
}

/*****
Vitesse radiale - Entrée gauche
*****/

DEFINE_PROFILE(farleft400_radial, t, i)
{
real r, x[ND_ND];
face_t f;

begin_f_loop(f, t)
{
F_CENTROID(x, f, t);
r = x[1];

F_PROFILE(f, t, i) = 0.02037734680222917 - 4111.171358719593*r +
(2.7898487806902295e8)*pow(r,2) - (8.146674833866949e12)*pow(r,3) +
(1.0970188249775542e17)*pow(r,4) - (5.591548640172809e20)*pow(r,5);
}
}

```

```
    end_f_loop(f, t)
}
```