



HAL
open science

Caractérisation des propriétés thermiques de liquides semi-transparents à haute température : application aux liquides silicatés

Johann Meulemans

► **To cite this version:**

Johann Meulemans. Caractérisation des propriétés thermiques de liquides semi-transparents à haute température : application aux liquides silicatés. Thermique [physics.class-ph]. Université de Lorraine, 2018. Français. NNT : 2018LORR0134 . tel-01913316

HAL Id: tel-01913316

<https://theses.hal.science/tel-01913316>

Submitted on 6 Nov 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



**UNIVERSITÉ
DE LORRAINE**

**THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE**

Spécialité : Mécanique et Energétique

École doctorale n°409: EMMA – Energie, Mécanique et Matériaux

réalisée

au Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée

sous la direction de Benjamin RÉMY

présentée par

Johann MEULEMANS

pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Sujet de la thèse :

**Caractérisation des propriétés thermiques de liquides
semi-transparents à haute température. Application aux
liquides silicatés.**

soutenue le 20 juillet 2018

devant le jury composé de :

M.	Franck ENGUEHARD	CentraleSupélec	Président du jury
M ^{me}	Agnès DELMAS	INSA Lyon	Rapportrice
M.	Philippe LE MASSON	Université Bretagne Sud	Rapporteur
M.	Benjamin RÉMY	Université de Lorraine	Directeur de thèse
M ^{me}	Myriam LAZARD	Université de Poitiers	Examinatrice
M.	Bruno HAY	LNE	Examineur
M.	Stéphane ANDRÉ	Université de Lorraine	Examineur
M.	Vincent SCHICK	Université de Lorraine	Examineur
M ^{me}	Clothilde CHARMANTRAY	Saint-Gobain Isover	Invitée

« A wise man begins in the end, a fool ends in the beginning. »
George Pólya

A mon père

Remerciements

Ce manuscrit est l'aboutissement d'un long cheminement personnel et professionnel dans lequel de nombreuses personnes ont été impliquées. Je me devais de les remercier ici.

Tout d'abord, je tiens à remercier mon directeur de thèse, Benjamin RÉMY, Professeur à l'Université de Lorraine, d'avoir accepté de m'accompagner dans mon aventure doctorale à la sortie de l'école de printemps METTI à Biarritz en mars 2015. Merci pour ta disponibilité lors de mes passages au laboratoire et pour les discussions, toujours passionnantes et enrichissantes, sur de multiples sujets scientifiques et académiques.

Je remercie également Denis MAILLET, Professeur émérite à l'Université de Lorraine et ancien directeur de l'école doctorale EMMA, pour m'avoir incité à réaliser mon doctorat par la voie « classique ».

J'adresse aussi mes remerciements à Fabrice LEMOINE et Pascal BOULET, Professeurs à l'Université de Lorraine, respectivement ancien directeur et directeur du LEMTA pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire.

Je tiens à remercier vivement les membres de mon jury d'avoir accepté de rapporter/examiner mes travaux de thèse en cette période estivale et caniculaire. Je remercie ainsi Agnès DELMAS, Maître de Conférences HDR à l'INSA Lyon, et Philippe LE MASSON, Professeur à l'Université Bretagne Sud, d'avoir rapporter mes travaux. Je remercie également Franck ENGUEHARD, Professeur à CentraleSupélec, d'avoir présider mon jury ; Bruno HAY, Directeur du département Matériaux au Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE), Myriam LAZARD, Maître de Conférences HDR à l'Université de Poitiers, Stéphane ANDRÉ, Professeur à l'Université de Lorraine, Vincent SCHICK, Maître de Conférences à l'Université de Lorraine, et Clothilde CHARMANTRAY, Responsable de portefeuilles R&D à Saint-Gobain Isover, d'avoir examiner mes travaux.

Je tiens à remercier chaleureusement Vincent SCHICK, Maître de Conférences à l'Université de Lorraine, pour sa contribution indispensable sur toute la partie expérimentale (merci pour les thermogrammes !) et pour son soutien, notamment administratif et logistique, tout au long du doctorat.

Les campagnes de mesure à haute température n'aurait pu être réalisées sans le concours précieux de : Jérémy BIANCHIN, technicien au LEMTA, et Franck DEMEURIE, ingénieur au LEMTA, pour les (nombreuses) pièces en stumatite ; Fabien CAPON, Maître de Conférences à l'Université de Lorraine, pour les dépôts de titane réalisés à l'Institut Jean Lamour (IJL) ; Vanni FAELLA et Erick LAMOTTE, techniciens de recherche à Saint-Gobain Recherche (SGR), pour le nettoyage à l'acide fluorhydrique des creusets en platine rhodié.

J'adresse tous mes remerciements à Irène LÉONARD et Valérie REICHHART, secrétaires au LEMTA, pour leur disponibilité et leur diligence dans la dernière ligne droite, administrative et logistique, avant ma soutenance.

Mes remerciements vont également à Alain DEGIOVANNI, Professeur émérite à l'Université de Lorraine, avec qui les travaux sur la caractérisation des propriétés thermiques des silicates fondus ont débuté il y a quelques années de cela et qui a toujours suivi mes travaux de près. Je tiens aussi à remercier Yves JANNOT, Ingénieur de Recherche CNRS au LEMTA, pour son soutien et l'intérêt porté à mes travaux.

J'adresse mes remerciements à ma hiérarchie à Saint-Gobain Recherche (SGR) pour leur confiance et leur soutien : François CREUZET, Directeur scientifique de SGR, et René GY, Directeur du département Thermique, Mécanique et Modélisation.

J'aimerais remercier mes collègues de Saint-Gobain, les verriers et les autres, pour leur soutien et leurs encouragements : Eric J., Octavio, Jean-Patrick, Eric L., William, Hélène, Sophie, Clothilde, Fabien, Laurent et Vassilis. Je souhaite également remercier des collègues (thermiciens) du monde académique : Thomas, Jérôme, Laurent et Frédéric.

J'aimerais maintenant remercier ma famille proche.

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à mes parents, Alain et Christine MEULEMANS.

Mon père, Alain, a été sans conteste l'instigateur de mon appétence certaine pour la recherche scientifique et m'a vivement encouragé à poursuivre mon doctorat en parallèle de mon emploi d'ingénieur de recherche à Saint-Gobain. J'aurais tellement aimé pouvoir partager ces moments avec toi mais la vie en a malheureusement décidé autrement. Je pense très fort à toi.

Ma mère, Christine, m'avait promis de relire avec attention et minutie mon manuscrit pour y dénicher les fautes d'orthographe et les erreurs de syntaxe qu'il pouvait subsister. Elle s'en est acquittée avec brio.

Malgré la distance qui nous séparent, ma belle-sœur, Begüm AYBAR-DAMALI, et mon beau-frère, Uzey DAMALI, m'ont toujours témoigné leur soutien et leurs encouragements.

Ma fille Tana, 9 ans, a elle aussi fortement contribué à cette aventure par un intérêt et une curiosité de tous les instants. Papa en a maintenant terminé avec son doctorat ; plus de soirées, ni de week-ends et encore moins de vacances à dissenter sur les vertus supposées ou avérées de tel ou tel modèle ou algorithme.

Enfin, j'aimerais particulièrement remercier celle sans qui rien n'aurait vraiment été possible, celle qui m'a toujours soutenu et encouragé pendant toutes ces années. Merci à Bahar, mon épouse.

I	Introduction	1
1	Introduction générale	3
2	Caractérisation des propriétés thermiques des liquides silicatés à haute température : état de l’art	5
2.1	Introduction	5
2.2	Méthodes en régime permanent	5
2.2.1	Méthode du gradient thermique linéaire	5
2.2.2	Méthode du gradient thermique radial	7
2.3	Méthodes en régime périodique établi	8
2.4	Méthodes en régime quasi-établi	8
2.4.1	Méthode du fil chaud	8
2.4.2	Méthode de la sonde thermique	9
2.5	Méthodes en régime transitoire	9
2.6	Discussion	10
2.7	Conclusion	11
II	Théorie et modèles	13
3	Problèmes inverses en métrologie thermique	15
3.1	Introduction	15
3.2	Coefficients de sensibilité et matrice de sensibilité	17
3.3	Matrices de variance-covariance et de corrélation	18
3.4	Problème d’estimation de paramètres mal conditionnés et stratégies pour évaluer le véritable degré de liberté	21
3.5	Analyse des résidus et présence éventuelle d’un biais	22
3.6	Algorithme de Levenberg-Marquardt	24
3.7	Conclusion	27
4	Transferts radiatifs dans les milieux semi-transparentes	29
4.1	Introduction	29
4.2	L’équation de transfert radiatif (ETR)	29
4.3	Flux et sources radiatives	30
4.4	L’approximation de Rosseland	31

4.5	Méthodes de résolution de l'ETR	31
4.6	La méthode des harmoniques sphériques et l'approximation P1	32
4.6.1	Principe	32
4.6.2	Mise en équation de l'approximation P1	32
4.6.3	Conditions aux limites	34
4.6.4	Résolution numérique	34
4.6.5	Avantages et inconvénients	34
4.6.6	Brève revue bibliographique	35
4.7	Conclusion	36
5	Modélisation du problème direct	37
5.1	Introduction	37
5.2	Hypothèses et simplifications	38
5.2.1	Propriétés des matériaux	38
5.2.2	Convection naturelle	38
5.2.3	Conduction	39
5.3	Mise en équation du modèle direct	40
5.4	Implémentation	41
5.5	Conclusion	42
6	Identifiabilité des paramètres	45
6.1	Introduction	45
6.2	Etude de sensibilité	46
6.3	Approche stochastique	48
6.4	Réduction du nombre de paramètres	51
6.5	Estimations à partir de signaux synthétiques (Monte Carlo)	54
6.5.1	Signaux synthétiques non bruités	55
6.5.2	Signaux synthétiques bruités	56
6.6	Conclusion	58
III	Etude expérimentale	61
7	Dispositif expérimental	63
7.1	Introduction	63
7.2	Description du banc de mesure	64
7.2.1	Laser CO2 continu	64
7.2.2	Four tubulaire	65
7.2.3	Caméra infrarouge	66
7.3	Cellule de mesure pour les liquides à haute température	66
7.3.1	Géométrie	66
7.3.2	Choix du matériau	67
7.3.3	Validation de la cellule de mesure	68
7.4	Protocole de mesure	68
7.4.1	Remplissage de la cellule de mesure	68
7.4.2	Positionnement de la cellule de mesure	68
7.4.3	Mesures à haute température	68
7.4.4	Nettoyage de la cellule de mesure	69
7.5	Conclusion	69

8	Résultats expérimentaux	71
8.1	Introduction	71
8.2	Présentation des échantillons	71
8.3	Méthodologie	72
8.4	Echantillon AS	74
8.5	Echantillon SC1	75
8.6	Discussion	77
8.6.1	Thermogrammes expérimentaux et qualité des estimations	77
8.6.2	Influence de la composition sur la conductivité thermique estimée	78
8.6.3	Influence de la composition sur le coefficient d'absorption estimé	78
8.7	Conclusion	80
IV	Conclusions et perspectives	81
9	Conclusion générale	83
	Annexes	97
A	Modélisation d'un système tricouche	99
B	Identifiabilité des paramètres – Compléments	103
B.1	Etude de sensibilité et approche stochastique	103
B.2	Réduction du nombre de paramètres	107
B.3	Estimations à partir de signaux synthétiques bruités (Monte Carlo)	110
C	Dispositif expérimental – Optimisation de l'épaisseur de la cellule de mesure	111
D	Données sur les matériaux	113
D.1	Chimie des échantillons	113
D.2	Propriétés des échantillons	113
D.3	Propriétés de l'alliage de platine rhodié	116
E	Résultats expérimentaux – Compléments	117
E.1	Echantillon AS	117
E.1.1	Thermogrammes expérimentaux	117
E.1.2	Estimations	120
E.2	Echantillon SC1	128
E.2.1	Thermogrammes expérimentaux	128
E.2.2	Estimations	130
E.3	Echantillon SC2	136
E.3.1	Thermogrammes expérimentaux	136
E.3.2	Estimations	138
F	Résultats expérimentaux – Estimations de propriétés thermiques apparentes à partir d'un modèle direct conductif pur pour l'échantillon AS	145
F.1	Introduction	145
F.2	Méthodologie	145
F.3	Estimations	145
F.4	Discussion	154
F.4.1	Diffusivité thermique apparente	154

F.4.2	Conductivités thermiques apparente et radiative	154
F.4.3	Estimation de la conductivité thermique phonique avec un modèle de conductivité thermique radiative	155

Première partie

Introduction

CHAPITRE 1

Introduction générale

Les liquides silicatés (ou silicates fondus) [1] sont présents dans la nature (laves volcaniques ou magmas) mais aussi dans les procédés industriels de fabrication de métal (scories fondues) et de verre. Un silicate fondu est un matériau amorphe (i.e., désordonné à l'échelle atomique) à l'état liquide dont la composition diffère entre les verres naturels et les verres artificiels. Les verres naturels sont principalement composés de silice, de magnésie, d'alumine et de fer. Les verres artificiels sont plus riches en silice et la présence d'alcalins et d'alcalino-terreux permet d'abaisser leur température d'élaboration. On peut également ajouter des colorants (fer, chrome, nickel, cobalt, etc.) et/ou du bore suivant les applications visées (vitrages automobile et bâtiment, verres d'emballages et de flaconnerie, fibres de verre, verres de confinement par exemple) [2, 3].

L'étude des silicates fondus intéresse donc à la fois les géophysiciens, les métallurgistes et les verriers afin de mieux comprendre les phénomènes de transferts de chaleur et de masse à l'intérieur de la Terre et dans les procédés industriels. D'un point de vue industriel, l'étude du lien entre la composition (i.e., la structure) des silicates fondus et l'évolution de leurs propriétés thermo-physiques en fonction de la température permet de concevoir des procédés plus respectueux de l'environnement.

Le sujet de l'étude concerne la caractérisation des propriétés thermiques (i.e., diffusivité thermique et conductivité thermique) des liquides silicatés (ou silicates fondus) à haute température (i.e., pour des températures supérieures à 1000 °C). La caractérisation de ces liquides semi-transparents est particulièrement délicate car il faut séparer les contributions des différents modes de transfert thermique (conduction, convection et rayonnement) si l'on veut mesurer des propriétés *intrinsèques*.

Des travaux précédents menés au sein du Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA), en collaboration avec Saint-Gobain Recherche (post-doc de Vincent Schick [4, 5]), ont démontré la faisabilité de la mesure de la conductivité thermique des matériaux semi-transparents émettant-absorbant à l'état liquide à l'aide d'une méthode flash adaptée. Néanmoins, les modèles (directs) utilisés pour réaliser l'estimation de la conductivité thermique ne sont adaptés qu'à des cas asymptotiques particuliers : milieux optiquement minces ou épais. L'utilisation de ces modèles nécessite de connaître les propriétés optiques des matériaux (i.e., indice de réfraction et coefficient d'absorption) afin de s'assurer de leur validité et d'estimer des propriétés thermiques *intrinsèques*. Ces données ne sont pas toujours disponibles et nécessitent des mesures par spectrophotométrie infrarouge à haute température.

Dans les travaux présentés dans ce mémoire, nous allons prendre en compte le couplage conducto-radiatif en résolvant l'équation de la chaleur en régime transitoire et l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu gris émettant, absorbant et non diffusant à l'aide de la méthode des harmoniques sphériques (approximation P_1). L'objectif final de l'étude est de parvenir à estimer la conductivité thermique *phonique* de liquides silicatés quelles que soient leurs propriétés radiatives. On s'intéressera également à l'influence de la composition (i.e., de la structure).

Les travaux présentés dans ce mémoire sont l'aboutissement d'une longue et riche collaboration entre Saint-Gobain Recherche (SGR) et le LEMTA sur la caractérisation des propriétés thermiques des verres.

Le mémoire est structuré en sept chapitres.

- Le Chapitre 2 présente une synthèse bibliographique des méthodes et résultats de mesures concernant la caractérisation des propriétés thermiques de liquides silicatés à haute température.
- Le Chapitre 3 décrit les outils mathématiques nécessaires (à la disposition de l'inverseur-mesureur) pour évaluer l'identifiabilité des paramètres (propriétés thermo-physiques de matériaux par exemple) d'un problème inverse en métrologie thermique.
- Le Chapitre 4 traite des transferts radiatifs dans un milieu semi-transparent. Nous rappelons brièvement l'équation de transfert radiatif (ETR) dans un milieu semi-transparent et l'approximation de diffusion. Nous présentons ensuite la méthode des harmoniques sphériques et plus particulièrement l'approximation P_1 .
- Le Chapitre 5 est consacré à la modélisation des transferts thermiques couplés du problème direct. Les hypothèses et simplifications du problème sont présentées et discutées. On présente également la mise en équation et l'implémentation du modèle dans un code numérique commercial.
- Le Chapitre 6 est dédié à l'identifiabilité des paramètres inconnus du problème à l'aide d'une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique. Nous vérifions ensuite la pertinence et l'efficacité de l'approche retenue à partir d'estimations réalisées sur des signaux synthétiques à l'aide d'une étude statistique (Monte Carlo).
- Le Chapitre 7 présente la description du dispositif expérimental développé et mis en œuvre au laboratoire pour la caractérisation des matériaux liquides à haute température.
- Le Chapitre 8 est consacré à la validation expérimentale de l'approche développée. On présente et discute des résultats expérimentaux obtenus à haute température (i.e., entre 1000 et 1400 °C) sur des liquides silicatés ayant des propriétés radiatives différentes (i.e., des coefficients d'absorption différents).

Caractérisation des propriétés thermiques des liquides silicatés à haute température : état de l'art

2.1 Introduction

La caractérisation des propriétés thermiques (i.e., conductivité thermique et diffusivité thermique) de matériaux peut être réalisée avec une grande variété de méthodes [6]. On citera par exemple la méthode de la plaque chaude gardée [7], la méthode fluxmétrique [8], la méthode du fil chaud [9–12] ou la méthode flash [13–15]. Le choix de la méthode la plus appropriée dépend des critères suivants : la nature du matériau, la taille et la forme de l'échantillon, la gamme de température, la gamme de conductivité thermique (ou de diffusivité thermique), l'incertitude de mesure.

Il convient de distinguer deux grands groupes de méthodes de mesure [16] : les méthodes en régime permanent et les méthodes en régime transitoire. Les méthodes en régime permanent permettent d'obtenir uniquement la conductivité thermique. Celle-ci est dite *apparente* dans le cas de transferts couplés (i.e., elle inclue les contributions de différents modes de transfert thermique). Les méthodes en régime transitoire permettent l'estimation de plusieurs grandeurs : conductivité, diffusivité et effusivité. Ces méthodes sont actuellement les plus utilisées. Elles consistent d'abord à appliquer sur un échantillon à l'équilibre thermique une perturbation thermique. On mesure ensuite une ou plusieurs températures (ou flux) en fonction du temps. Les méthodes se différencient en fonction : (i) du type de perturbation, (ii) du type de mesure et (iii) de la géométrie du problème.

La caractérisation des propriétés thermiques des liquides silicatés à haute température est particulièrement délicate car il faut séparer les contributions des différents modes de transfert thermique (conduction, convection et rayonnement) si l'on veut mesurer des propriétés intrinsèques. On présente ci-dessous une synthèse bibliographique des méthodes et résultats de mesures trouvés dans la littérature.

2.2 Méthodes en régime permanent

2.2.1 Méthode du gradient thermique linéaire

McCauley [17] a été le premier, dès 1925, à présenter une mesure de la conductivité thermique *apparente* du verre fondu à l'aide d'une méthode en régime quasi-stationnaire entre 800 et 2500 F (i.e., entre 430 et 1370 °C). Le verre fondu est contenu dans une cuve en matériaux

réfractaires placé dans un four à flammes. Le profil (vertical) de température est supposé linéaire au centre de la cuve (i.e., le rapport d'aspect est supposé suffisamment important pour s'affranchir de l'influence des pertes aux parois). Le profil vertical de la température du verre fondu et les pertes thermiques par la sole, constituée d'un matériau réfractaire dont la conductivité thermique est connue, sont mesurés. Une conductivité thermique *apparente* est ensuite déduite de ces mesures (elle suit une loi de puissance). McCauley avait déjà bien conscience des difficultés pour séparer les contributions des différents modes de transferts thermiques : « *Savoir quelle part de cette conductivité effective est due au rayonnement, quelle part à la convection et ce qui représente une vraie conductivité serait une simple spéculation à l'heure actuelle.* »

Kruszewski [18] a employé la même méthode pour étudier l'influence de l'ajout de colorants (nickel, fer et chrome) dans des verres silico-sodo-calciques ambre et verts (emballages). Le verre fondu est contenu dans une cuve en matériaux réfractaires de dimensions $300 \times 230 \times 200 \text{ mm}^3$. Ces mesures, réalisées entre 1100 et 1450 °C environ, avaient pour objectif d'apporter des données quantitatives pour aider à la conception de fours industriels (dimensionnement de la profondeur de la cuve par ex.) en fonction du type de verre et de la concentration en colorants. Ces travaux relevaient d'une approche pragmatique et n'avaient pas d'ambition métrologique revendiquée. Les limitations sont les mêmes que pour les travaux de McCauley.

Endrýs *et al.* [19] ont estimé la conductivité thermique *apparente* de verres silico-sodo-calciques fondus pour différentes compositions (différentes teneurs en colorants comme le fer et le chrome). Le verre fondu est contenu dans une cuve en matériaux réfractaires de dimensions $250 \times 250 \times 250 \text{ mm}^3$. La convection naturelle est supposée négligeable par les auteurs. Cette hypothèse semble néanmoins peu plausible compte tenu des dimensions de la cuve et des gradients de température (i.e., $L = H = 200 \text{ mm}$ et $\Delta T = 100 \text{ K}$). Les nombres de Rayleigh associés à la configuration expérimentale sont largement supérieurs au nombre de Rayleigh critique pour la mise en place d'un écoulement [20].

Les conductivités thermiques *apparentes* estimées par Endrýs *et al.* dépendent de l'épaisseur de l'échantillon mesuré. Par ailleurs, les spectres d'absorption à haute température de ces verres ont été mesurés et les coefficients d'absorptions moyens de Rosseland [21] calculés. Les conductivités thermiques *radiatives* calculées à l'aide de l'approximation de Rosseland [22, 23] ont ensuite été comparées aux conductivités thermiques *apparentes* (et ce, pour différentes épaisseurs optiques). Pour autant, les auteurs ne présentent pas d'estimations de la conductivité thermique *phonique*.

Pilon *et al.* [24] ont utilisé la même méthode expérimentale mais ont proposé de prendre en compte la non-linéarité des profils de température (celle-ci est directement liée à l'épaisseur optique du milieu et au nombre de Planck). Pour cela, le profil de température est mesuré en plusieurs points (nombre non précisé par les auteurs) sur la hauteur de la cuve. La conductivité thermique *effective* est supposée suivre une loi polynomiale d'ordre 2 en fonction de la température. Les trois paramètres (inconnus) de la loi polynomiale sont ensuite estimés en minimisant l'écart quadratique entre les mesures et les valeurs estimées à partir du modèle direct. Les auteurs présentent des valeurs de conductivités thermiques *effectives* mesurées entre 1100 et 1500 °C pour des verres silico-sodo-calciques dont la teneur en fer total est comprise entre 0,008 %m (verre pour applications photovoltaïques) et 1,1 %m (verre automobile de teinte grise). La conductivité thermique *effective* croît avec la température et la transparence du verre (i.e., inversement avec la teneur en fer total). On retrouve ici les mêmes limitations que dans les travaux précédents. L'utilité première de ces travaux est de donner des valeurs indicatives pouvant être utilisées pour la conception et le pilotage de procédés verriers.

Dans des travaux plus récents, Pilon *et al.* [25] ont développé un modèle conducto-radiatif

s'appuyant sur la résolution de l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu semi-transparent non-gris (modélisation multi-bandes avec deux bandes) avec une méthode de Monte Carlo [26]. Les auteurs utilisent des données de la littérature pour les spectres d'absorption de verres silico-sodo-calciques ayant des teneurs en fer total différentes pour déterminer les paramètres du modèle à deux bandes ($\lambda_0 = 0 \mu\text{m}$, $\lambda_1 = 2,8 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 4,5 \mu\text{m}$). Le modèle conducto-radiatif développé a ensuite été utilisé pour estimer les propriétés thermiques et radiatives de ces échantillons à l'aide d'une méthode inverse. La conductivité thermique phonique est supposée suivre une loi affine en fonction de la température. Les paramètres de la loi affine, les coefficients d'absorption moyens du modèle à deux bandes (κ_1 et κ_2) et la température du four sont les paramètres inconnus estimés par un algorithme génétique. On regrettera toutefois l'absence d'étude de sensibilité théorique permettant d'apprécier l'identifiabilité des paramètres inconnus.

Le coefficient d'absorption κ_2 estimé ne varie pas avec la température et est identique pour les quatre verres caractérisés. Ce résultat est cohérent avec les spectres d'absorption à ces longueurs d'ondes (i.e., entre 2,8 et 4,5 μm l'absorption est due aux groupes hydroxyles). L'absorption dépend donc de la teneur en eau des verres, i.e. de leur procédé d'élaboration (atmosphère présente lors de leur élaboration). Les verres étudiés ici ayant été élaborés par le même procédé, les teneurs en eau sont proches (voir quasi identiques). Les différences observées sur le coefficient d'absorption κ_1 correspondent aux différences de teneur en fer total (et de l'état d'oxydo-réduction du fer) entre les échantillons étudiés. Les auteurs auraient donc pu s'appuyer sur un modèle gris.

Les paramètres de la loi affine pour la conductivité thermique *phonique* sont relativement proches pour l'ensemble des verres étudiés ici (verres silico-sodo-calciques de compositions proches avec des teneurs en fer total différentes). Les auteurs ont donc proposé une loi affine moyenne issue d'une régression linéaire sur l'ensemble des paramètres estimés entre 1100 et 1550 °C :

$$k(T) = 1,31 + 5,90 \times 10^{-4} (T - 273,15) \quad (2.1)$$

avec k la conductivité thermique *phonique* (en $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$) et T la température absolue (en K).

2.2.2 Méthode du gradient thermique radial

Cette méthode repose sur le même principe que la méthode du gradient linéaire [27]. La modification principale est la géométrie du dispositif expérimental : le verre fondu est contenu entre deux cylindres coaxiaux, la source de chaleur contrôlée est apportée par le cylindre interne. Le rapport d'aspect de la cellule de mesure permet de négliger la convection naturelle. En faisant l'hypothèse d'un transfert thermique purement conductif (i.e., en supposant l'approximation de diffusion valide), le profil de température est alors radial et peut se calculer de manière analytique [28]. La conductivité thermique du verre fondu est alors déduite des mesures de température à la surface des cylindres connaissant le flux imposé et la distance entre les deux cylindres. Cette méthode ne nécessite pas de connaître les propriétés thermiques des matériaux utilisés pour les cylindres. Bien que cette méthode, dans le principe, s'affranchisse de certaines limitations identifiées avec la méthode du gradient linéaire (absence de convection naturelle notamment), elle a été relativement peu mise en œuvre (cf. travaux de Gutop [29] et Eckhardt [30] par exemple) compte tenu du coût de réalisation (cylindres de grandes dimensions en platine rhodié par exemple...).

Eckhardt [30] a mis en évidence l'impact de la teneur en colorants (nickel et fer) sur la conductivité thermique *effective* de verres au phosphate et de verres à vitre. L'auteur avait également caractérisé les spectres d'absorption de ces verres à haute température. Les valeurs

de conductivité thermique *radiative* estimée à l'aide de l'approximation de Rosseland sont relativement proches des valeurs *effectives* mesurées avec la méthode du gradient thermique radial pour les verres colorés.

On citera par ailleurs les travaux de Blažek et Endrýs [27] qui ont appliqué cette méthode sur un verre de soudure à très forte teneur en fer total (8,85 %m). Pour ce verre, les effets radiatifs sont supposés très faibles. Ainsi la conductivité thermique *apparente* mesurée diffère peu de la conductivité thermique *phonique*. Blažek et Endrýs trouvent une dépendance linéaire de la conductivité thermique *phonique* par rapport à la température entre 1000 et 1300 °C :

$$k(T) = 0,290 + 1,587 \times 10^{-3} (T - 273,15) \quad (2.2)$$

avec k la conductivité thermique *phonique* (en $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$) et T la température absolue (en K).

Les auteurs ont essayé d'appliquer sans succès la méthode sur des verres moins absorbants (i.e., des verres silico-sodo-calciques à faible teneur en fer total). Pour ce type de verres, l'hypothèse de linéarité du profil de température est mise en défaut compte tenu de l'importance relative des transferts radiatifs par rapport aux transferts conductifs (i.e., le nombre de Planck est très petit devant 1).

2.3 Méthodes en régime périodique établi

Van Zee et Babcock [31] ont caractérisé la diffusivité thermique *apparente* de verres industriels entre 700 et 1400 °C à l'aide d'une méthode expérimentale s'appuyant sur une (petite) perturbation sinusoïdale de l'échantillon et de la mesure du temps caractéristique du déphasage de la température en deux points distincts. La configuration expérimentale consiste en une cuve de forme cylindrique en matériaux réfractaires (et refroidie par un système de boîtes à eau) contenant le verre fondu. La température est mesurée par deux thermocouples chemisés en deux points à mi-hauteur de la cuve (i.e., au centre et à une distance non nulle du centre). En faisant l'hypothèse d'un transfert thermique purement conductif (i.e., en supposant l'approximation de diffusion valide), la solution analytique du problème est connue [28] et sert à estimer la diffusivité thermique *apparente* des échantillons à partir des mesures. Les valeurs reportées par les auteurs se situent entre $1,6 \times 10^{-5}$ et $2,1 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ et présentent une évolution sous la forme d'une loi de puissance au cube en fonction de la température.

Grove et Charnock [32] ont utilisé une méthode similaire dans leurs travaux. La différence principale est le dispositif expérimental mis en place : la perturbation thermique est appliquée à la surface de l'échantillon, la mesure de l'évolution des températures à la surface et à une distance non nulle de la surface permet d'estimer la diffusivité thermique *apparente* du verre fondu. Charnock [33] a présenté ensuite les justifications théoriques des hypothèses formulées (notamment au niveau de la faible importance de la convection naturelle). Les valeurs reportées sont cohérentes avec celles de Van Zee et Babcock [31] pour des verres silico-sodo-calciques industriels de compositions proches hormis la teneur en fer total.

2.4 Méthodes en régime quasi-établi

2.4.1 Méthode du fil chaud

La méthode du fil chaud appliquée à la mesure de la conductivité thermique des verres (solides) jusqu'à une température de 600 °C a été mise au point à Saint-Gobain Recherche

dans les années 1970 [34, 35]*. Dans les années 1980, des travaux encadrés par Sorin Klarsfeld [42, 43] avaient pour objectif d'étendre l'utilisation de cette technique au verre fondu (B_2O_3). Ces travaux se sont heurtés à des difficultés techniques (principalement au niveau de l'identification des paramètres) et, à notre connaissance, n'ont pas abouti par la suite.

On pourra également mentionner les travaux de Snyder *et al.* [44] sur des mesures avec la méthode du fil chaud sur des liquides silicatés ($CaMgSi_2O_6$). Cet article a suscité de nombreux débats au sein de cette communauté dans les années 1990 [45–47]. Les valeurs reportées, comprises entre $0,03^\dagger$ et $0,3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, sont sensiblement plus faibles que les valeurs usuellement mesurées sur des verres silico-sodo-calciques.

Kang *et al.* [48, 49] se sont intéressés à la caractérisation de la conductivité thermique de liquides silicatés ternaires $CaO - Al_2O_3 - SiO_2$ avec la méthode du fil chaud entre la température de liquidus (i.e., 1200°C minimum) et 1600°C . Les valeurs reportées par les auteurs se situent entre $0,1$ et $1,6 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ suivant la composition du système ternaire étudié. Par ailleurs, les conductivités thermiques mesurées décroissent avec la température.

2.4.2 Méthode de la sonde thermique

Van den Brink et Rongen [50] utilisent une méthode de sonde thermique pour estimer la conductivité thermique d'un verre silico-sodo-calcique industriel jusqu'à 1000°C . Des colorants (fer, cobalt et nickel) ont été ajoutés à la composition du verre de référence ($1,35\%$ au total) afin de modifier l'absorption du verre dans le proche infrarouge et réduire ainsi la contribution de la composante radiative à la conductivité thermique *apparente* mesurée. Les auteurs en déduisent ensuite la conductivité thermique *phonique* du verre en faisant l'hypothèse que l'ajout de colorants, en relative faible proportion, ne modifie pas la valeur de celle-ci. Une valeur constante de $1,2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ est alors déduite des mesures réalisées. On notera toutefois que les valeurs estimées de conductivité thermique *apparente* pour le verre de référence sont sujettes à de fortes incertitudes : au-dessus de 700°C environ, l'évolution de la température de la sonde en fonction du logarithme du temps ne présentait plus de portion linéaire.

Kiyohashi *et al.* [51, 52] ont également utilisé une méthode de sonde thermique pour estimer la conductivité thermique de verres silico-sodo-calciques industriels avec différentes teneurs en fer total jusqu'à 1200°C . Les valeurs estimées de conductivité thermique se situent entre 1 et $3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. L'absence supposée de convection (naturelle) dans le creuset ne semble pas vérifiée expérimentalement à la vue des thermogrammes au-dessus de la température de transition vitreuse. Par ailleurs, l'évolution de la conductivité thermique avec la température semble suivre une loi de puissance au cube, laissant penser que la conductivité thermique estimée est une conductivité thermique *apparente* avec une forte contribution radiative.

2.5 Méthodes en régime transitoire

Ohta *et al.* ont utilisé une méthode flash « face arrière » [53, 54] (système tricouche proposé par Tada *et al.* [55, 56] adapté à haute température) et « face avant » [57–59]. La conductivité thermique est ensuite calculée à partir des valeurs estimées de la diffusivité thermique (méthode flash « face arrière ») ou de l'effusivité thermique (méthode flash

*La poursuite de ces travaux dans les années 1980 a donné lieu à la mise au point d'une mesure de la diffusivité thermique *phonique* des verres (solides) en collaboration avec Stéphane André et Alain Degiovanni du Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMETA) [36–39]. Ces travaux ont ensuite été poursuivis dans la thèse de Myriam Lazard [40, 41].

† Cette valeur, pour le moins faible, correspond à la conductivité thermique *apparente* de matériaux fibreux isolants tels que la laine de verre par exemple.

« face avant ») connaissant la valeur de la capacité thermique des échantillons, mesurée par calorimétrie. Les valeurs obtenues sur des verres silico-sodo-calciques se situent entre 1 et $1,5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. Ces valeurs sont relativement cohérentes avec les précédentes valeurs disponibles dans la littérature pour ce type de verres.

On regrettera néanmoins l'absence d'étude de sensibilité théorique permettant d'apprécier l'identifiabilité des paramètres inconnus et plus généralement les hypothèses sur lesquelles repose la modélisation du problème direct sont peu justifiées *a priori* et/ou pas vérifiées *a posteriori* (absence de convection naturelle ou bien simplification du couplage conducto-radiatif dans le cas de milieux optiquement minces par exemple).

On pourra également mentionner des travaux de géophysiciens [60–67] utilisant la méthode flash « face arrière » avec un appareil commercial. Ces publications ne présentent pas la modélisation du problème direct, notamment la prise (ou non) en compte des transferts couplés conducto-radiatifs. Par ailleurs, aucune étude de sensibilité et aucun thermogramme permettant de juger de la fiabilité des résultats obtenus ne sont présentés.

Des travaux précédents menés au sein du LEMTA, en collaboration avec Saint-Gobain Recherche (post-doc de Vincent Schick [4, 5]), ont démontré la faisabilité de la mesure de la conductivité thermique des matériaux semi-transparents émettant-absorbant à l'état liquide à l'aide d'une méthode flash adaptée. Néanmoins, les modèles (directs) utilisés pour réaliser l'estimation de la conductivité thermique ne sont adaptés qu'à des cas asymptotiques particuliers : milieux optiquement minces ou épais. L'utilisation de ces modèles nécessite de connaître les propriétés optiques des matériaux (i.e., indice de réfraction et coefficient d'absorption) afin de s'assurer de leur validité et d'estimer les propriétés thermiques *intrinsèques*. Ces données ne sont pas toujours disponibles et nécessitent des mesures par spectrophotométrie infrarouge à haute température. Dans le cas de milieux optiquement épais, l'estimation d'une conductivité thermique *phonique* à partir de la conductivité thermique *apparente* estimée avec un modèle conductif dépendra du choix de l'approximation utilisée pour le calcul de la conductivité thermique *radiative* [23, 68, 69].

2.6 Discussion

La Figure 2.1 représente les principales valeurs de conductivité thermique de la littérature. Ces valeurs correspondent à des verres silico-sodo-calciques de type vitrage sauf pour les données de Blažek et Endrýs [27] (verre de soudure à très forte teneur en fer total, i.e. 8,85 %m). Les valeurs issues de mesures par des méthodes en régime quasi-établi (i.e., méthode du fil chaud ou de la sonde thermique) ont été écartées car leur fiabilité est contestable^{‡§}. Par ailleurs, les mesures de conductivité thermique *apparente* (ou *effective*) ne sont pas représentées sur cette figure.

Les valeurs retenues de conductivité thermique varient entre $1,5$ et $2,3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. Les auteurs trouvent des valeurs quasi constantes ou bien augmentant faiblement avec la température.

On peut identifier trois principales limites sur les mesures issues de la littérature. Premièrement, la propriété *intrinsèque* n'est, le plus souvent, pas mesurée, i.e. les auteurs mesurent uniquement une conductivité thermique *apparente* (ou *effective*) qui dépend des hypothèses/approximations utilisées et du dispositif expérimental (épaisseur de l'échantillon par

[‡]En effet, les auteurs ont utilisé ces méthodes sans s'assurer de leur applicabilité et sans s'efforcer de corriger et/ou prendre en compte les contributions convectives et radiatives dans les conductivités thermiques *apparentes* (ou *effectives*) mesurées.

[§]Les critiques formulées à l'encontre de ces travaux n'obèrent pas l'applicabilité de la méthode du fil chaud pour la mesure de la conductivité thermique de matériaux à l'état liquide à des températures élevées. On pourra notamment citer les travaux de Perkins au NIST (Etats-Unis) [70], de Wakeham à l'Imperial College (Grande-Bretagne) [71] et de Nieto de Castro à l'Université de Lisbonne (Portugal) [72].

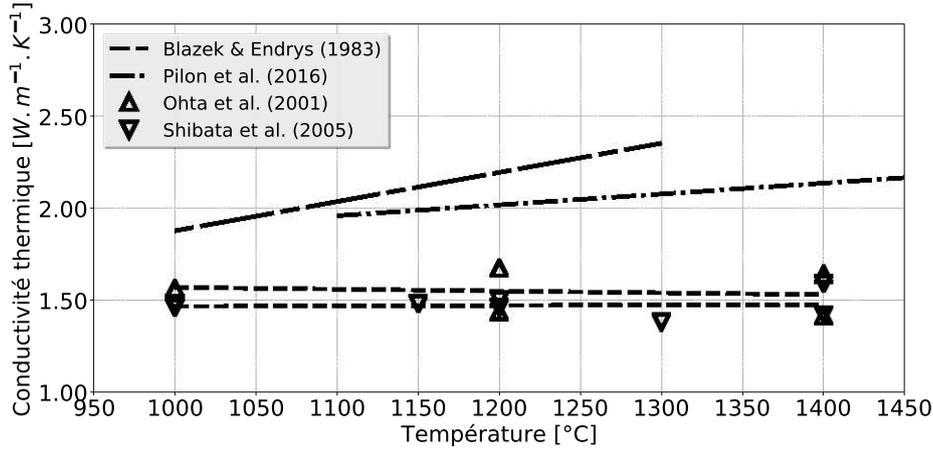


Fig. 2.1 Exemples de valeurs de conductivité thermique en fonction de la température issues de la littérature [25, 27, 57, 58]. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées par les auteurs à partir des mesures réalisées.

exemple). Deuxièmement, les hypothèses sur les transferts thermiques ne sont pas (ou peu) vérifiées (validité de l'approximation de diffusion ou non-prise en compte de la convection naturelle par exemple). Troisièmement, l'influence de la composition du matériau n'est pas (ou peu) étudiée.

2.7 Conclusion

A travers cette revue bibliographique, nous avons présenté et discuté les avantages et les inconvénients des différentes méthodes utilisées pour la caractérisation des propriétés thermiques des liquides silicatés à haute température. L'objectif de nos travaux est la mesure des propriétés thermiques intrinsèques, nous avons donc écarté les méthodes ne donnant accès qu'à des propriétés thermiques *apparentes* (ou *effectives*).

Les méthodes impulsives de type flash nous semblent les plus appropriées. Des travaux précédents, menés au LEMTA, ont d'ailleurs permis de démontrer leur potentiel. Il conviendra néanmoins d'étendre leur applicabilité à des milieux d'épaisseurs optiques quelconques et de s'affranchir de la connaissance des propriétés radiatives des matériaux que l'on souhaite caractériser.

Deuxième partie
Théorie et modèles

3.1 Introduction

La mesure d'une grandeur physique est possible à partir d'un dispositif expérimental donné si cette grandeur peut « s'exprimer » autant que possible (notion de *sensibilité*). Considérons un modèle, noté \mathcal{M} , liant les variables dites indépendantes (en général le temps), le vecteur d'état \mathbf{x} composé d'une ou plusieurs variables dépendantes (l'état initial \mathbf{x}_0 , les variables d'entrée $u(t)$ et les paramètres structurels β caractéristiques du système physique) et les variables de sortie (ou d'observation) du modèle \mathbf{y}_{mo} (cf. Figure 3.1).

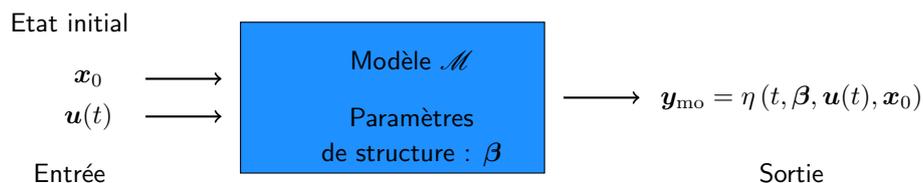


Fig. 3.1 Modèle entrée/sortie (adapté de Maillet *et al.* [73])

La fonction η modélisant le (ou les) phénomène(s) physique(s) mis en jeu peut prendre diverses structures mathématiques. Ce modèle, appelé *modèle direct*, peut être construit à partir de lois physiques et/ou de principes de conservation (*modèle de connaissance*). Connaissant l'état initial \mathbf{x}_0 , les données d'entrée $\mathbf{u}(t)$ et la valeur du vecteur de paramètres β , les sorties du modèle peuvent être prédites (*simulation directe*).

Le problème inverse consiste à estimer les paramètres β_j (i.e., les composantes du vecteur de paramètre β) à partir des sorties du modèle \mathbf{y}_{mo} pour des données d'entrée et des observations \mathbf{y} données (cf. Figure 3.2). On parle alors de *processus d'estimation* (ou *d'identification*).

Le processus d'estimation de paramètres consiste à réduire l'écart quadratique entre les données expérimentales et théoriques (i.e., les résidus) à travers une fonction objectif :

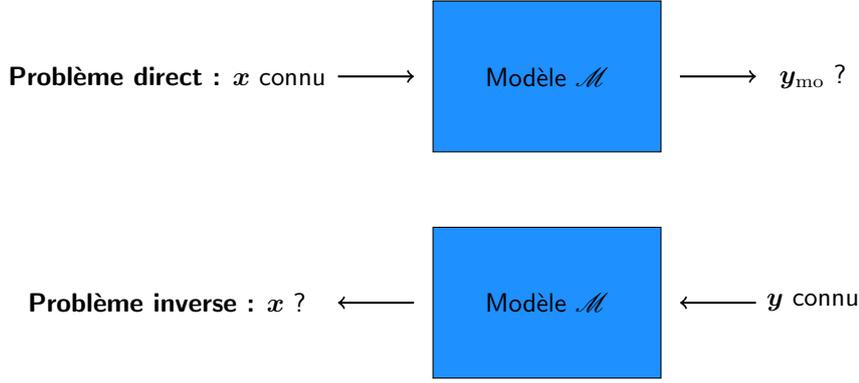


Fig. 3.2 Problème direct et problème inverse (adapté de Maillet *et al.* [73])

$$J(\boldsymbol{\beta}) = \sum_{i=1}^m (y_i - y_{\text{mo}}(t_i, \boldsymbol{\beta}))^2 \quad (3.1)$$

$$= (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta}))^T (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta})) \quad (3.2)$$

$$= \mathbf{r}(t, \boldsymbol{\beta})^T \mathbf{r}(t, \boldsymbol{\beta}) \quad (3.3)$$

où m est le nombre d'observations (i.e., le nombre de points de mesure).

Les difficultés proviennent de deux points principaux : (i) les observations (i.e., les mesures) sont sujettes à des perturbations aléatoires (bruit de mesure intrinsèque) [erreur stochastique]; (ii) le modèle mathématique peut ne pas représenter parfaitement l'expérience et conduit à une estimation biaisée, i.e. l'espérance du paramètre estimé n'est pas égale à la vraie valeur du paramètre [erreur déterministe]*.

L'objectif de l'analyse des problèmes d'estimation de paramètres (PEP) consiste à évaluer les incertitudes liées aux estimations des paramètres inconnus du problème. On peut y parvenir à partir de la méthode des moindres carrés ordinaires non-linéaires et d'outils statistiques (espérance et variance). La valeur estimée d'un paramètre β_j sera considérée comme « bonne » (i.e., « correcte ») si elle n'est pas biaisée et si sa variance est minimale. La quantification du biais et de la variance peut également être utile pour déterminer quelle expérience/modèle est le plus approprié pour estimer un (ou des) paramètre(s) donné(s). Dans le cas de paramètres multiples (i.e., on a alors un vecteur de paramètres $\boldsymbol{\beta}$), il est aussi nécessaire de déterminer quels paramètres (i.e., quelles composantes du vecteur $\boldsymbol{\beta}$) peuvent être correctement estimés pour une expérience donnée. On parlera alors d'*identifiabilité* des paramètres.

Dans ce chapitre, nous rappelons brièvement les outils mathématiques nécessaires (à la disposition de l'inverseur-mesureur) pour évaluer l'identifiabilité des paramètres (propriétés thermo-physiques de matériaux par exemple) d'un problème inverse. Pour plus de détails, le lecteur est invité à se reporter aux ouvrages de références [73–82].

*Les six composantes de l'erreur d'estimation sont les suivantes [74] : (1) l'erreur de calcul direct, (2) l'erreur d'hypothèse et de modèle, (3) l'erreur due au bruit de mesure, (4) l'erreur due au(x) capteur(s), (5) l'erreur due aux paramètres « supposés connus », et (6) l'erreur due à la paramétrisation (ou à la régularisation).

L'erreur d'estimation d'un paramètre β , notée e_β , peut alors s'écrire sous la forme :

$$e_\beta = \hat{\beta} - \beta \approx e_1 + e_2 + (e_3 \text{ ou } e_6) + e_4 + e_5 \quad (3.4)$$

avec $\hat{\beta}$, β et e_i la valeur estimée du paramètre β , sa valeur exacte et la $i^{\text{ème}}$ composante de l'erreur d'estimation, respectivement. On fait ici l'hypothèse (simplificatrice) qu'il n'y a pas de couplage entre les erreurs.

3.2 Coefficients de sensibilité et matrice de sensibilité

La matrice de sensibilité \mathbf{S} , de dimension $m \times n$, est définie par :

$$\forall i \in \llbracket 1; m \rrbracket, \forall j \in \llbracket 1; n \rrbracket : S_{ij} = \left. \frac{\partial y_{\text{mo}}(t_i, \boldsymbol{\beta}^{\text{nom}})}{\partial \beta_j} \right|_{\beta_k \text{ pour } k \neq j} \quad (3.5)$$

Dans le cas de PEP non-linéaires (NL), la matrice de sensibilité a uniquement un sens local, i.e. pour une valeur donnée (nominale) du vecteur de paramètre $\boldsymbol{\beta}^{\text{nom}}$.

Le coefficient de sensibilité $\mathbf{S}_j(t)$ au $j^{\text{ème}}$ paramètre β_j correspond à la $j^{\text{ème}}$ colonne de la matrice \mathbf{S} . Les paramètres d'un modèle n'ayant en général pas la même unité, on utilise les coefficients de sensibilité réduite \mathbf{S}_j^* avec :

$$\mathbf{S}_j^* = \beta_j \mathbf{S}_j = \beta_j \left. \frac{\partial y_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta}^{\text{nom}})}{\partial \beta_j} \right|_{t, \beta_k \text{ pour } k \neq j} \quad (3.6)$$

La matrice de sensibilité réduite, notée \mathbf{S}^* , peut alors s'écrire en fonction de la matrice de sensibilité :

$$\mathbf{S}^* = \mathbf{R}_{\text{nom}} \mathbf{S} \quad \text{avec} \quad \mathbf{R}_{\text{nom}} = \begin{bmatrix} \beta_1^{\text{nom}} & 0 & \dots & \\ 0 & \ddots & & \\ \vdots & & \ddots & \\ & & & \beta_n^{\text{nom}} \end{bmatrix} \quad (3.7)$$

Outil n° 1. *L'observation des coefficients de sensibilité réduite $\mathbf{S}_j^*(t)$ permet une première évaluation qualitative des paramètres les plus influents du problème (i.e., les paramètres ayant la sensibilité réduite la plus grande) et l'existence de possibles corrélations entre les paramètres (i.e., les coefficients de sensibilité ont une évolution similaire).*

On pourra reprendre la terminologie introduite par Jupp et Vozoff [83] pour classer les différents paramètres à l'aide de leurs coefficients de sensibilité et des corrélations présentes (ou non) : (i) un paramètre ayant une sensibilité non nulle pourra être considéré comme un paramètre important (ou influent) ; (ii) à l'inverse, un paramètre ayant une sensibilité nulle sera considéré comme un paramètre non pertinent ; (iii) la présence de corrélations entre paramètres signifiera que l'information disponible est redondante.

La Figure 3.3 représente un exemple de thermogramme et de sensibilités réduites associées pour un système tricouche (cuivre-eau-cuivre) soumis à une sollicitation de type flash en « face avant » [84]. Les paramètres inconnus du problème inverse sont la racine carrée du temps caractéristique diffusif dans le liquide ($\beta_1 = e_l/\sqrt{a_l}$), la résistance thermique du liquide ($\beta_2 = e_l/k_l$), la densité de flux surfacique en face avant ($\beta_3 = Q/S$) et le coefficient de pertes thermiques ($\beta_4 = h$). Les dimensions géométriques du problème et les propriétés thermo-physiques du matériau composant les parois (ici, le cuivre) sont supposées connus. La description complète du cas est reportée en Annexe A.

Le paramètre le plus influent est β_1 (i.e., la magnitude de sa sensibilité réduite est la plus importante). Le maximum du coefficient de sensibilité réduite associée à β_1 est atteint aux environ du temps de demi-montée. Les paramètres β_2 et β_3 ont également une sensibilité réduite non nulle mais celle-ci atteint son maximum aux temps longs (i.e., après que le thermogramme ait atteint son maximum). La sensibilité au paramètre β_4 est très faible, le paramètre pourra être considéré comme non pertinent. On notera qu'aux temps longs, les sensibilités réduites de tous les paramètres sont corrélées (petit corps qui refroidit).

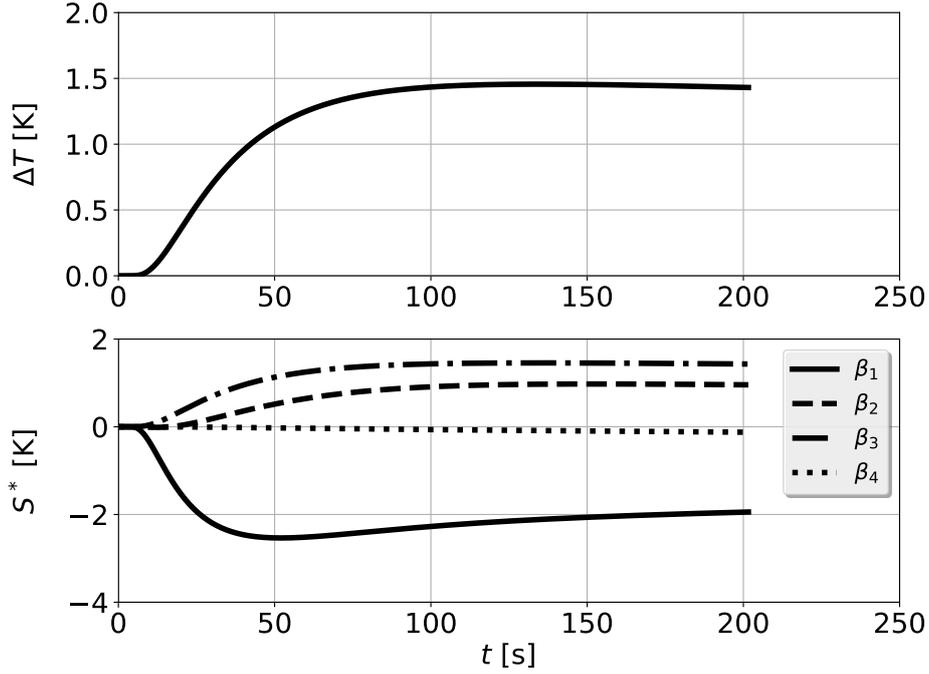


Fig. 3.3 Exemple de thermogramme et sensibilités réduites associées ($\beta_1 = e_l/\sqrt{a_l}$, $\beta_2 = e_l/k_l$, $\beta_3 = Q/S$ et $\beta_4 = h$) pour un système tricouche (cuivre-eau-cuivre) soumis à une sollicitation de type flash en « face avant » [84]

3.3 Matrices de variance-covariance et de corrélation

Le processus d'estimation/identification consiste à réduire l'écart quadratique entre les données expérimentales et théoriques (i.e., les résidus) à travers une fonction objectif J (cf. Equations 3.1 à 3.3). On souhaite donc annuler les dérivées partielles de la fonction objectif J pour chaque paramètre β_j :

$$\forall t \geq 0, j \in \llbracket 1; n \rrbracket : \left. \frac{\partial J(t, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \right|_{t, \beta_k \text{ pour } k \neq j} = 0 \quad (3.8)$$

$$\sum_{i=1}^m \left. \frac{\partial y_{\text{mo}}(t_i, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \right|_{\beta_k \text{ pour } k \neq j} (y_i - y_{\text{mo}}(t_i, \boldsymbol{\beta})) = 0 \quad (3.9)$$

On voit ici apparaître les coefficients de sensibilité $S_{ij}(t, \boldsymbol{\beta}) = \left. \frac{\partial y_{\text{mo}}(t_i, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \right|_{\beta_k \text{ pour } k \neq j}$.

Cette condition peut s'écrire sous forme matricielle :

$$2 \left(- \frac{\partial \mathbf{y}_{\text{mo}}^T(t, \boldsymbol{\beta})}{\partial \boldsymbol{\beta}} \right) (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta})) = 0 \quad (3.10)$$

On voit qu'il apparaît la matrice de sensibilité \mathbf{S} (c'est aussi la matrice Jacobienne) :

$$\mathbf{S}(\boldsymbol{\beta}) = \left(\frac{\partial \mathbf{y}_{\text{mo}}^T(t, \boldsymbol{\beta})}{\partial \boldsymbol{\beta}} \right)^T \quad (3.11)$$

L'Equation 3.10 peut alors s'écrire :

$$-2\mathbf{S}^T(\boldsymbol{\beta}) (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta})) = 0 \quad (3.12)$$

Dans le cas de PEP non-linéaires, la matrice de sensibilité a une valeur locale (i.e., à proximité du vecteur de paramètres β^{nom}). La résolution de l'Equation 3.12 nécessite l'utilisation d'une méthode itérative à l'aide d'un développement en série de Taylor au 1^{er} ordre à proximité des valeurs nominales des paramètres :

$$\mathbf{y}_{\text{mo}}(\beta) \approx \mathbf{y}_{\text{mo}}(\hat{\beta}^{(k)}) + \mathbf{S}^{(k)}(\beta - \hat{\beta}^{(k)}) \quad (3.13)$$

où $\hat{\beta}^{(k)}$, $\mathbf{y}_{\text{mo}}(\hat{\beta}^{(k)})$ et $\mathbf{S}^{(k)}$ sont les paramètres, les sorties du modèle direct et les matrices de sensibilités estimés à l'itération k , respectivement.

En combinant les Equations 3.12 et 3.13, il vient :

$$\hat{\beta}^{(k+1)} = \hat{\beta}^{(k)} + \left((\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{S}^{(k)} \right)^{-1} (\mathbf{S}^{(k)})^T (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(\hat{\beta}^{(k)})) \quad (3.14)$$

La méthode itérative donnée par l'Equation 3.14 est la méthode de Gauss-Newton.

La matrice $(\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{S}^{(k)}$, appelée *matrice d'information*, doit être inversible, i.e. non singulière :

$$\det \left((\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{S}^{(k)} \right) \neq 0 \quad (3.15)$$

Cela signifie que les coefficients de sensibilité doivent être non nuls et linéairement indépendants.

La méthode itérative converge lorsque les résidus sont du même ordre de grandeur que le bruit de mesure :

$$J(\hat{\beta}^{(k_f)}) \approx m\sigma^2 \quad (3.16)$$

L'écart-type de l'erreur d'estimation des paramètres peut être évaluée à convergence à l'aide de la matrice de covariance de l'estimateur, notée $\mathbf{cov}(\hat{\beta})$. On peut ainsi caractériser la précision obtenue lors du processus d'estimation des paramètres à partir d'hypothèses statistiques faites sur les mesures.

Dans le cas où le modèle est supposé non biaisé et le signal est corrompu par un bruit additif noté ε , on a :

$$\mathbf{y} = \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \beta) + \varepsilon \quad (3.17)$$

Le bruit est traité comme une variable stochastique de moyenne nulle, d'écart-type constant, et supposé connu, σ et non corrélé au cours du temps [75]. On a alors :

$$\mathbf{E}(\varepsilon) = 0; \quad \text{var}(\varepsilon) = \sigma^2; \quad \mathbf{cov}(\varepsilon) = \sigma^2 \mathbf{I} \quad (3.18)$$

L'espérance de l'estimateur vaut ainsi :

$$\mathbf{E}(\hat{\beta}) = \beta + \mathbf{E} \left[(\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \varepsilon(t) \right] \quad (3.19)$$

$$= \beta + (\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \mathbf{E}[\varepsilon(t)] \quad (3.20)$$

On considère un bruit de moyenne nulle, il vient alors :

$$\mathbf{E}(\hat{\beta}) = \beta \quad (3.21)$$

L'espérance montre que les valeurs estimées sont égales, en moyenne, aux valeurs exactes des paramètres (*estimateur non biaisé*).

Par définition de la matrice de covariance, on a :

$$\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) = \mathbf{E} \left[\left(\hat{\boldsymbol{\beta}} - \mathbf{E}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \right) \left(\hat{\boldsymbol{\beta}} - \mathbf{E}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \right)^T \right] \quad (3.22)$$

$$= \mathbf{E} \left[(\hat{\boldsymbol{\beta}} - \boldsymbol{\beta})(\hat{\boldsymbol{\beta}} - \boldsymbol{\beta})^T \right] \quad (3.23)$$

En remplaçant $\hat{\boldsymbol{\beta}}$ par son expression, il vient :

$$\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) = \mathbf{E} \left[(\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \boldsymbol{\varepsilon} \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{S} (\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \right] \quad (3.24)$$

$$= (\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \mathbf{E}(\boldsymbol{\varepsilon} \boldsymbol{\varepsilon}^T) \mathbf{S} (\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \quad (3.25)$$

Le bruit étant supposé non corrélé et d'écart-type constant, on a :

$$\mathbf{E}(\boldsymbol{\varepsilon} \boldsymbol{\varepsilon}^T) = \sigma^2 \mathbf{I} \quad (3.26)$$

On obtient alors l'expression suivante pour la matrice de covariance :

$$\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) = \sigma^2 (\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \quad (3.27)$$

$$\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \approx \begin{bmatrix} \text{var}(\hat{\beta}_1) & \text{cov}(\hat{\beta}_1, \hat{\beta}_2) & \cdots & \text{cov}(\hat{\beta}_1, \hat{\beta}_p) \\ \text{cov}(\hat{\beta}_1, \hat{\beta}_2) & \text{var}(\hat{\beta}_2) & \cdots & \text{cov}(\hat{\beta}_2, \hat{\beta}_p) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \text{cov}(\hat{\beta}_1, \hat{\beta}_p) & \text{cov}(\hat{\beta}_2, \hat{\beta}_p) & \cdots & \text{var}(\hat{\beta}_p) \end{bmatrix} = \sigma^2 \left(\mathbf{S}^T(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \mathbf{S}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \right)^{-1} \quad (3.28)$$

La matrice $\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ dépend du rapport signal sur bruit et de l'inverse de la matrice d'information $\mathbf{S}^T \mathbf{S}$. Les termes diagonaux sont les variances associées à l'estimation de chaque paramètre. Ils quantifient l'erreur associée à l'estimation des paramètres (limite inférieure). Cela est vrai si le modèle est non biaisé et les hypothèses faites sur le bruit de mesure sont cohérentes avec les expériences.

On peut également évaluer les possibles corrélations entre les paramètres à l'aide la matrice de corrélation $\mathbf{cor}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ définie par :

$$\mathbf{cor}(\hat{\boldsymbol{\beta}}) \approx \begin{bmatrix} 1 & \rho_{ij} & \cdots \\ \rho_{ij} & 1 & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad \rho_{ij} = \frac{\text{cov}(\hat{\beta}_i, \hat{\beta}_j)}{\sqrt{\sigma_{\hat{\beta}_i}^2 \sigma_{\hat{\beta}_j}^2}} \quad (3.29)$$

Les coefficients de corrélation (termes hors diagonale) quantifient la corrélation existante entre deux estimations de paramètres β_i et β_j et plus précisément, entre leurs erreurs associées. Les coefficients de corrélation varient entre -1 et 1. Une valeur proche de 0 signifie qu'il n'y a aucune corrélation et une valeur proche de 1 (ou -1) signifie que les paramètres sont fortement corrélés. Les coefficients de corrélation sont des quantités globales (i.e., moyennés sur l'intervalle de temps choisi pour l'analyse).

Une matrice hybride $\mathbf{Vcor}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ peut être construite à partir des matrices de variance-covariance et de corrélation [85, 86]. Les termes diagonaux correspondent aux incertitudes associées à l'estimation de chaque paramètre et les termes hors diagonales correspondent aux facteurs de corrélation (en valeur absolue) entre les paramètres.

$$\mathbf{Vcor}(\hat{\beta}) \approx \begin{bmatrix} \sqrt{\text{var}(\hat{\beta}_i)/\hat{\beta}_i} & |\rho_{ij}| & \cdots \\ |\rho_{ij}| & \sqrt{\text{var}(\hat{\beta}_j)/\hat{\beta}_j} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix} \quad (3.30)$$

Outil n° 2. La matrice $\mathbf{Vcor}(\hat{\beta})$ permet une évaluation quantitative de l'identifiabilité des paramètres. La diagonale donne une évaluation (limite inférieure) de l'erreur liée à l'estimation des paramètres (dans le cas d'un estimateur supposé non biaisé). Les termes hors diagonales (coefficients de corrélation) sont généralement d'un intérêt moindre car leur valeur est globale (i.e., moyennée sur l'intervalle de temps considéré pour l'analyse). Des valeurs proches de 1 peuvent expliquer des variances (erreurs) importantes sur les paramètres estimés du fait de corrélations.

La matrice $\mathbf{Vcor}(\hat{\beta})$ calculée à partir des sensibilités réduites de l'exemple précédent est reportée dans la Table 3.1. On a considéré $\sigma = 1$. L'incertitude relative la plus faible est obtenue pour le paramètre β_1 (paramètre le plus influent du problème considéré). Les incertitudes relatives liées aux trois autres paramètres sont environ quatre fois plus élevées et de valeurs quasi identiques. Les couples de paramètres (β_1, β_3) et (β_2, β_3) présentent de fortes corrélations (i.e., leurs coefficients de corrélation sont supérieurs à 0,99 [75]).

$$\begin{bmatrix} 0,5271 & 0,9774 & 0,9955 & 0,1237 \\ & 2,2275 & 0,9918 & 0,0479 \\ & & 2,2287 & 0,0700 \\ & & & 2,1417 \end{bmatrix}$$

Tab. 3.1 Exemple de matrice $\mathbf{Vcor}(\hat{\beta})$ calculée à partir de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* . On représente uniquement la diagonale supérieure pour faciliter la lecture.

3.4 Problème d'estimation de paramètres mal conditionnés et stratégies pour évaluer le véritable degré de liberté

La bonne identifiabilité de paramètres est liée à la convexité locale de la fonction objectif J dans l'espace d'hyper-paramètre. Dans le cas de paramètres corrélés, une conséquence évidente est que plusieurs minimums locaux existent et l'algorithme d'estimation échouera. La matrice de corrélation renseigne sur les corrélations entre chaque couple de paramètres (β_i, β_j) . Il peut cependant exister des corrélations entre des combinaisons linéaires de plusieurs paramètres. Le véritable nombre de degrés de liberté (ddl) paramétrique du problème inverse est donc lié au rang de la matrice de sensibilité (réduite).

Les composantes de la matrice de sensibilité réduite sont linéairement indépendantes seulement si :

$$\sum_{j=1}^n a_j \mathbf{S}_{\beta_j}^* = 0 \quad \Rightarrow \quad \forall j \in \llbracket 1; n \rrbracket : a_j = 0 \quad (3.31)$$

Le rang de la matrice de sensibilité réduite vaudra alors $r \leq n$ s'il existe $n-r$ coefficient(s) a_j non nul(s).

La décomposition en valeurs singulières [87] (ou SVD, de l'anglais : *Singular Value Decomposition*) de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* permet également d'avoir une idée du

véritable degré de liberté du problème (le rang de \mathbf{S}^* est égal au nombre de valeurs singulières non nulles de \mathbf{S}^*). Néanmoins, la SVD ne permet pas d'identifier explicitement les corrélations/combinaisons linéaires entre les paramètres.

Outil n° 3. *Le véritable degré de liberté du problème peut être évalué à l'aide du rang de la matrice de sensibilité réduite et/ou de l'observation de ses valeurs singulières.*

La Figure 3.4 illustre la mise en évidence d'une combinaison linéaire entre les trois premiers paramètres du problème inverse précédemment décrit. Par ailleurs, les valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* valent $w_1 = 81,0956$, $w_2 = 10,7830$, $w_3 = 0,4651$ et $w_4 = 0,3137$. Le rang de la matrice de sensibilité réduite est égal au nombre de paramètres initiaux du problème (i.e., $n = 4$). Pour autant, la combinaison linéaire mise en évidence sur la Figure 3.4 (et les deux valeurs singulières proches de zéro) semble indiquer que le véritable degré de liberté du problème est inférieur à quatre (i.e., $\text{ddl} \leq n = 4$).

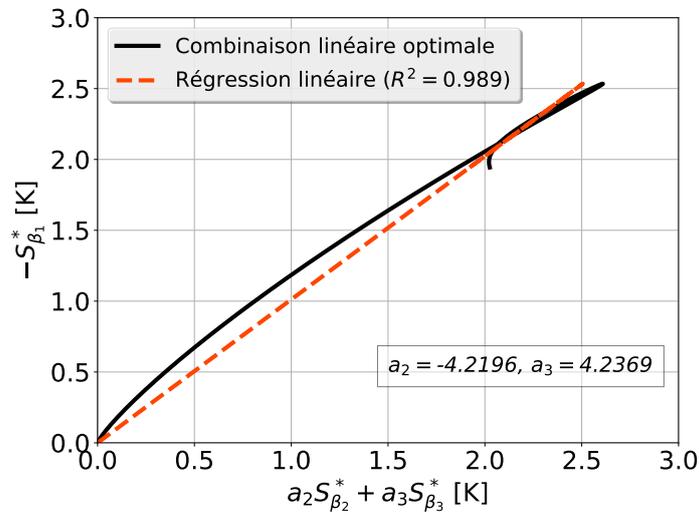


Fig. 3.4 Exemple de combinaison linéaire entre sensibilités réduites de plusieurs paramètres

3.5 Analyse des résidus et présence éventuelle d'un biais

L'espérance des résidus s'écrit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}(t, \hat{\boldsymbol{\beta}})) = \mathbf{E}(\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \hat{\boldsymbol{\beta}})) \quad (3.32)$$

$$= \mathbf{E}(\mathbf{S}(\boldsymbol{\beta} - \hat{\boldsymbol{\beta}})) \quad (3.33)$$

$$= \mathbf{E}\left(-\mathbf{S}(\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \boldsymbol{\varepsilon}(t, \hat{\boldsymbol{\beta}})\right) \quad (3.34)$$

$$= -\mathbf{S}(\mathbf{S}^T \mathbf{S})^{-1} \mathbf{S}^T \mathbf{E}(\boldsymbol{\varepsilon}(t, \hat{\boldsymbol{\beta}})) \quad (3.35)$$

On doit donc avoir une espérance nulle pour les résidus (car l'espérance du bruit est nulle) si le modèle utilisé pour décrire l'expérience est adapté (i.e., si le modèle n'est pas biaisé). On dira que les résidus sont décorrélés (ou bien non signés). Le cas contraire (i.e., les résidus sont corrélés ou signés) peut être la manifestation d'une estimation biaisée. Le biais peut avoir différentes origines/sources : (i) valeurs supposées connues (et donc fixées) pour des valeurs nominales des paramètres ; (ii) les aspects non-idéaux de l'expérience ne sont pas pris en compte dans le modèle.

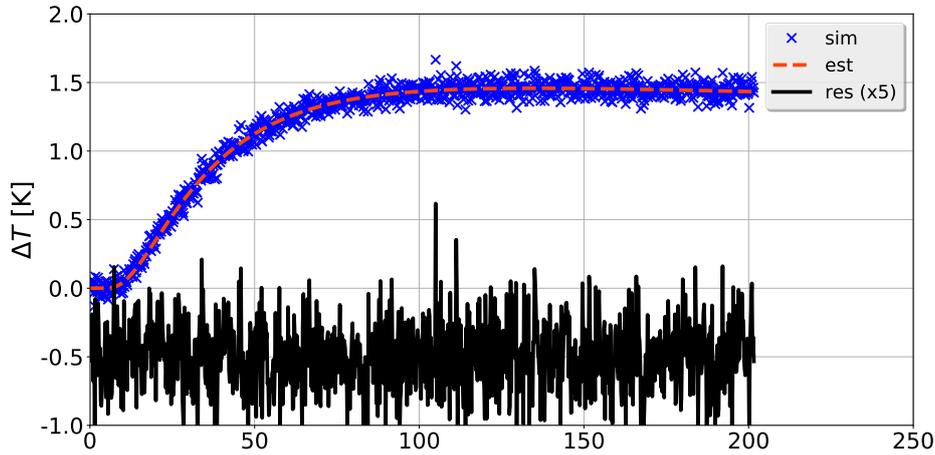
L'existence d'un biais signifie qu'il peut exister une inconsistance systématique et généralement inconnue entre les données expérimentales et les sorties du modèle.

Cependant, les résidus peuvent être « plats » et non signés car le problème est sur-déterminé (i.e., le nombre de paramètres est plus important que le degré de liberté du problème).

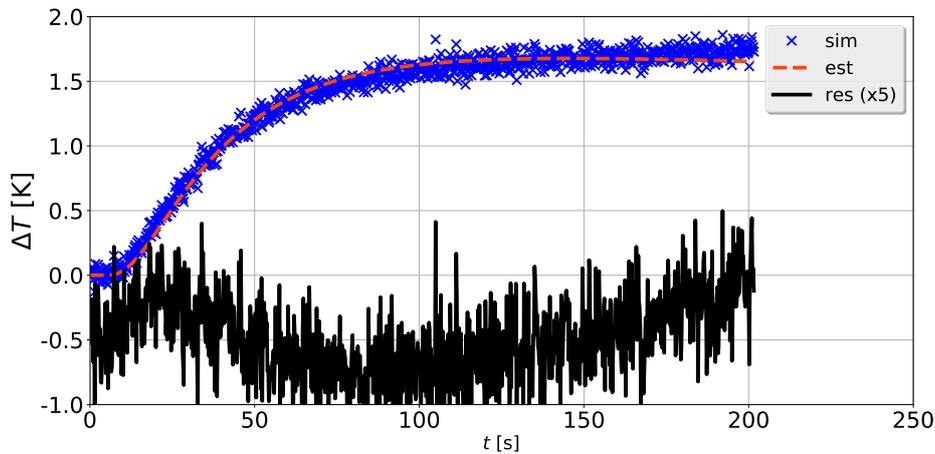
Outil n° 4. *Les résidus issus des estimations doivent être analysés avec précaution pour vérifier la présence d'un biais systématique. La magnitude des résidus pourra être comparée à l'écart-type d'un bruit blanc. L'invariance des estimations en fonction de l'intervalle de temps choisi pour réaliser l'estimation peut également indiquer que le biais est acceptable.*

La Figure 3.5 représente un exemple d'estimation non biaisée et biaisée par la présence d'une dérive linéaire (cf. Equation 3.36). Les valeurs des paramètres estimés (ici la diffusivité thermique et la conductivité thermique du liquide) sont reportées dans la Table 3.2. Dans le cas de l'estimation biaisée, l'erreur relative sur la conductivité thermique est supérieure à 20%.

$$\mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \boldsymbol{\beta}) = \boldsymbol{\eta}(t, \boldsymbol{\beta}) + \mathbf{b}(t) + \boldsymbol{\varepsilon} \quad (3.36)$$



(a) Estimation non biaisée (i.e., résidus décorrélés)



(b) Estimation biaisée (i.e., résidus corrélés)

Fig. 3.5 Exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques bruités. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,5 pour faciliter la lecture.

	Paramètres	
	Diffusivité thermique [m ² s ⁻¹ (×10 ⁷)]	Conductivité thermique [W m ⁻¹ K ⁻¹]
valeur exacte	1,4300	0,5970
valeur estimée (non biaisée)	1,4407 (+0,75%)	0,6034 (+1,07%)
valeur estimée (biaisée)	1,3938 (-2,53%)	0,4674 (-21,7%)

Tab. 3.2 Valeurs des paramètres estimés à partir de signaux synthétiques bruités. Les erreurs relatives sont données entre parenthèses.

3.6 Algorithme de Levenberg-Marquardt

On a vu que la résolution du problème d'optimisation s'effectue de manière itérative et le problème de la convergence se pose. La matrice d'information $\mathbf{S}^T \mathbf{S}$ joue un rôle central. Le caractère éventuellement mal posé du problème [88] implique que le déterminant de la matrice d'information n'est pas nul mais a une valeur proche de zéro. Il faut alors utiliser un processus de régularisation.

Levenberg [89] a proposé d'ajouter un terme de pénalisation[†] dans l'Equation 3.14 :

$$\hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k+1)} = \hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k)} + \left((\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{S}^{(k)} + \mu^{(k)} \boldsymbol{\Omega}^{(k)} \right)^{-1} (\mathbf{S}^{(k)})^T (\mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(\hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k)})) \quad (3.37)$$

où μ est un paramètre d'amortissement et $\boldsymbol{\Omega}$ est une matrice diagonale définie positive. L'Equation 3.37 peut également s'écrire sous la forme suivante :

$$\boldsymbol{\delta}^{(k)} = \left((\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{S}^{(k)} + \mu^{(k)} \boldsymbol{\Omega}^{(k)} \right)^{-1} (\mathbf{S}^{(k)})^T \mathbf{r}^{(k)} \quad (3.38)$$

avec $\boldsymbol{\delta}^{(k)} = \hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k+1)} - \hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k)}$ et $\mathbf{r}^{(k)} = \mathbf{y} - \mathbf{y}_{\text{mo}}(\hat{\boldsymbol{\beta}}^{(k)})$ l'incrément du vecteur de paramètres et les résidus à l'itération k , respectivement.

On enlève les exposants ^(k) pour une meilleure lisibilité dans la suite de ce chapitre.

En utilisant la matrice identité comme matrice diagonale (i.e., $\boldsymbol{\Omega} = \mathbf{I}$), l'Equation 3.38 devient :

$$\boldsymbol{\delta} = (\mathbf{S}^T \mathbf{S} + \mu \mathbf{I})^{-1} \mathbf{S}^T \mathbf{r} \quad (3.39)$$

On utilise ensuite la décomposition en valeurs singulières de la matrice de sensibilité :

$$\mathbf{S} = \mathbf{U} \mathbf{W} \mathbf{V}^T \quad (3.40)$$

L'Equation 3.39 s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\delta} = [\mathbf{V} (\mathbf{W}^2 + \mu \mathbf{I}) \mathbf{V}^T]^{-1} \mathbf{S}^T \mathbf{r} \quad (3.41)$$

$$= \mathbf{V} (\mathbf{W}^2 + \mu \mathbf{I})^{-1} \mathbf{u} \quad (3.42)$$

avec $\mathbf{u} = \mathbf{V}^T \mathbf{S}^T \mathbf{r}$.

[†]Cette approche est similaire à la régularisation introduite par Tikhonov [90].

La norme de l'incrément du vecteur de paramètres peut s'écrire :

$$|\boldsymbol{\delta}|^2 = \boldsymbol{\delta}^T \boldsymbol{\delta} \quad (3.43)$$

$$= \mathbf{u}^T \left[(\mathbf{W}^2 + \mu \mathbf{I})^2 \right]^{-1} \mathbf{u} \quad (3.44)$$

$$= \sum_{i=1}^n \frac{u_i^2}{(w_i^2 + \mu)^2} \quad (3.45)$$

Marquardt [91] applique l'algorithme à partir d'une version normalisée du problème [92, 93] en introduisant la matrice normalisée $[\mathbf{S}^T \mathbf{S}]^*$ et le vecteur normalisé $[\mathbf{S}^T \mathbf{r}]^*$ tels que, $\forall i, j \in \llbracket 1; n \rrbracket$:

$$[\mathbf{S}^T \mathbf{S}]_{ij}^* = s_{ii} s_{jj} (\mathbf{S}^T \mathbf{S})_{ij} \quad (3.46)$$

$$[\mathbf{S}^T \mathbf{r}]_i^* = s_{ii} (\mathbf{S}^T \mathbf{r})_i \quad (3.47)$$

$$s_{ii} = \frac{1}{\sqrt{(\mathbf{S}^T \mathbf{S})_{ii}}} \quad (3.48)$$

On note que les termes diagonaux de la matrice $[\mathbf{S}^T \mathbf{S}]^*$ valent 1.

On obtient alors la relation suivante :

$$[\mathbf{S}^T \mathbf{S}]^* = \boldsymbol{\delta}^* [\mathbf{S}^T \mathbf{r}]^* \quad (3.49)$$

Une fois l'Equation 3.49 résolue, on peut calculer les composantes du vecteur $\boldsymbol{\delta}$ avec :

$$\forall i \in \llbracket 1; n \rrbracket : \delta_i = s_{ii} \delta_i^* \quad (3.50)$$

On peut ensuite calculer l'incrément pour le vecteur de paramètre et évaluer la fonction objectif. Dans le cas où la fonction objectif est plus grande à l'itération $k + 1$ par rapport à l'itération k , la valeur du paramètre d'amortissement est augmentée (en général d'un ordre de grandeur) et on recalcule l'incrément pour le vecteur de paramètre. Dans le cas contraire, le paramètre d'amortissement est diminué (en général d'un ordre de grandeur). L'algorithme s'arrêtera (i.e., convergera) si un (ou plusieurs) critère(s) est (sont) satisfait(s) : (i) la valeur de la fonction objectif est inférieure à un seuil (utilisateur) prédéfini ; (ii) le gradient de la fonction objectif est inférieur à un seuil (utilisateur) prédéfini ; (iii) l'incrément du vecteur paramètre est inférieur à un seuil (utilisateur) prédéfini et/ou (iv) la variation relative de l'incrément du vecteur paramètre est inférieure à un seuil (utilisateur) prédéfini.

Lorsque le paramètre d'amortissement est nul, la méthode de Levenberg-Marquardt [91] est équivalente à la méthode de Gauss-Newton : la convergence est relativement rapide mais nécessite d'avoir des valeurs initiales proches des valeurs optimales. Pour des valeurs très grandes du paramètre d'amortissement, la méthode de Levenberg-Marquardt est équivalente à la méthode du gradient : la convergence est lente mais cette méthode ne nécessite pas d'avoir des valeurs initiales proches des valeurs optimales. La méthode de Levenberg-Marquardt permet donc de cumuler les propriétés de la méthode du gradient et de la méthode de Gauss-Newton.

Levenberg a proposé d'utiliser la matrice identité ou bien la diagonale de la matrice d'information. La valeur du paramètre d'amortissement peut varier au cours des itérations, on utilise généralement une grande valeur au début lorsque les valeurs initiales sont relativement

éloignées des valeurs optimales et on réduit peu à peu la valeur du paramètre d'amortissement lorsque l'on se rapproche des valeurs optimales. Plusieurs possibilités ont été proposées dans la littérature pour le choix du paramètre d'amortissement (cf. [83, 94] par exemple). On retiendra qu'il n'y a pas de choix universel : il faut le plus souvent s'en remettre à un processus d'essai-erreur pour trouver le meilleur compromis rapidité de convergence (i.e., nombre d'appels au modèle direct) et précision.

L'algorithme de Levenberg-Marquardt utilisé dans les travaux présentés ici [95] a les caractéristiques suivantes : (i) la matrice diagonale du terme de pénalisation est la matrice identité ; (ii) on s'appuie sur la version normalisée du problème et sur une décomposition en valeurs singulières de la matrice de sensibilité ; (iii) la valeur du paramètre d'amortissement est optimisée pour minimiser les résidus calculés à l'itération courante. L'algorithme est décrit brièvement ci-dessous.

Algorithme 1 : Mise en œuvre de l'algorithme de Levenberg-Marquardt

1. $k = 0$, $\mu^{(k=0)} = 10^{-3}$ (par exemple), initialisation de $\hat{\beta}^{(k=0)}$
 2. Résolution du problème direct pour obtenir $\mathbf{y}_{\text{mo}}(t, \hat{\beta}^{(k)})$
 3. Calcul de la matrice de sensibilité $\mathbf{S}^{(k)}$
 4. Décomposition en valeurs singulières de la matrice de sensibilité et normalisation du problème
 5. Calcul de $\hat{\beta}^{(k+1)}$
 6. Résolution du problème direct avec $\hat{\beta}^{(k+1)}$
 7. Calcul de la valeur de la fonction objectif $J(\hat{\beta}^{(k+1)})$
 8. Si $J(\hat{\beta}^{(k+1)}) > J(\hat{\beta}^{(k)})$, alors on prend $\mu^{(k)} = 10\mu^{(k)}$ et on revient au point 5
 9. Si $J(\hat{\beta}^{(k+1)}) < J(\hat{\beta}^{(k)})$, alors on prend $\mu^{(k)} = \frac{1}{10}\mu^{(k)}$
 10. Test d'arrêt : quatre possibilités :
 - i. sur la valeur de la fonction objectif : $J(\hat{\beta}^{(k+1)}) < \epsilon_1$;
 - ii. sur son gradient : $\|\nabla J(\hat{\beta}^{(k+1)})\| < \epsilon_2$;
 - iii. sur les valeurs successives du vecteur de paramètres : $\|\hat{\beta}^{(k+1)} - \hat{\beta}^{(k)}\| < \epsilon_3$;
 - iv. et/ou sur les variations relatives du vecteur de paramètres : $\|\hat{\beta}^{(k+1)} - \hat{\beta}^{(k)}\| / \|\hat{\beta}^{(k)}\| < \epsilon_4$.
-

L'introduction d'un terme de pénalisation (régularisation) dans l'algorithme de Levenberg-Marquardt introduit un biais, noté \mathbf{b} , dans l'estimation des paramètres. L'estimateur régularisé est donc un estimateur biaisé au sens statistique (i.e., $\mathbf{E}(\hat{\beta}_{\text{reg}}) = \beta + \mathbf{b}$) mais la dispersion (i.e., l'incertitude relative liée à l'estimation des paramètres) est plus faible (cf Figure 3.6).

On pourra évaluer le biais de régularisation à l'aide d'une étude statistique réalisée sur un grand nombre d'estimations à partir de signaux synthétiques bruités (approche statistique

de type Monte Carlo) [96][‡].

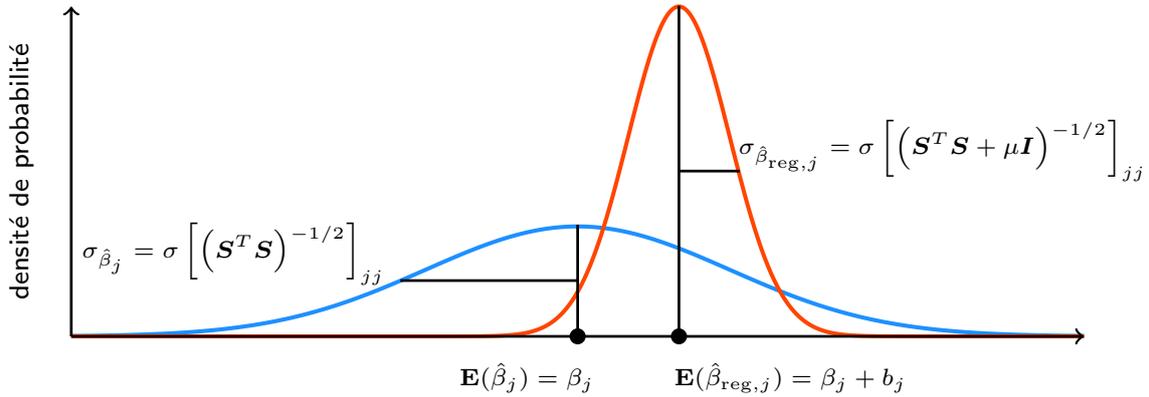


Fig. 3.6 Régularisation par compromis biais/dispersion (adapté de Rémy *et al.* [86])

3.7 Conclusion

Il n'y a pas de « recette magique » pour traiter les problèmes inverses en métrologie thermique. Néanmoins, il existe un ensemble d'outils mathématiques que l'inverseur-mesureur averti doit utiliser pour étudier l'identifiabilité des paramètres inconnus du problème et optimiser, le cas échéant, le dispositif expérimental afin d'avoir la meilleure estimation (au sens métrologique) des paramètres (i.e., les propriétés thermo-physiques de matériaux).

On retiendra que plus le nombre de paramètres recherchés est élevé, plus la dispersion relative de leurs estimations est forte (principe de parcimonie [97]). L'utilisation d'un modèle d'ordre réduit (i.e., d'un nombre réduit de paramètres) implique l'existence d'un biais d'estimation mais celui-ci peut-être compatible avec l'objectif de précision associé au problème traité (compromis).

L'ensemble des outils présentés dans ce chapitre sera mis en œuvre dans le Chapitre 6.

[‡]Dans le cas d'un estimateur non biaisé, on doit retrouver l'écart-type prédit par l'approche stochastique pour un niveau de bruit donné (i.e., pour un rapport signal sur bruit donné).

 Transferts radiatifs dans les milieux semi-transparents

4.1 Introduction

Aux températures rencontrées dans les procédés d'élaboration du verre, typiquement 1100 – 1500 °C, le rayonnement thermique à prendre en compte se concentre dans la bande spectrale comprise entre 0,8 et 10 μm d'après la loi de Wien [21]. Or, le verre est un matériau transparent dans le visible, opaque dans le proche infrarouge et semi-transparent entre les deux [2, 3, 98]. Le caractère semi-transparent du verre complique sensiblement la résolution numérique de l'équation de transfert radiatif (ETR) nécessaire à la modélisation des écoulements et de la thermique dans les procédés verriers.

Dans les travaux présentés ici, on souhaite prendre en compte le couplage conducto-radiatif dans le modèle direct utilisé pour l'inversion en résolvant de manière combinée l'équation de la chaleur en régime transitoire et l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu émettant, absorbant et non diffusant. La difficulté est d'avoir un modèle général valable pour différentes épaisseurs optiques du milieu, prenant en compte l'émission des parois et peu « gourmand » en temps de calcul et espace mémoire.

Le modèle choisi ici est la méthode des harmoniques sphériques [99], notée P_N , et plus particulièrement l'approximation P_1 [100]. P_1 est un très bon compromis précision/« coût » par rapport aux autres méthodes de résolution numérique de l'ETR [100], i.e. une seule équation différentielle à résoudre sur le rayonnement incident, pas de précaution particulière à prendre concernant la discrétisation et un « coût » de calcul légèrement supérieur à l'utilisation de l'approximation de Rosseland [22, 23].

Dans ce chapitre, nous rappelons brièvement l'équation de transfert radiatif (ETR) dans un milieu semi-transparent et l'approximation de Rosseland. Nous présentons ensuite la méthode des harmoniques sphériques et plus particulièrement l'approximation P_1 . Pour plus de détails, le lecteur est invité à se reporter aux ouvrages de références [21, 100, 101].

4.2 L'équation de transfert radiatif (ETR)

Pour un milieu semi-transparent émettant, absorbant et non diffusant, l'équation de transfert radiatif (ETR) s'écrit :

$$\nabla \cdot (\mathbf{s}L(\mathbf{x})) = -\kappa L(\mathbf{x}) + \kappa L^0(T) \quad (4.1)$$

avec $L(\mathbf{x}, \mathbf{s})$ la luminance au point \mathbf{x} dans la direction \mathbf{s} (cf. Figure 4.1), $L^0(T)$ la luminance de corps noir à la température locale $T(\mathbf{x})$ et κ le coefficient d'absorption du milieu*.

Le premier terme du second membre de l'équation 4.1 correspond à l'absorption dans la direction \mathbf{s} et le second terme à l'émission du rayonnement d'équilibre (isotrope) dans cette même direction.

La résolution de l'ETR nécessite de connaître l'intensité entrant dans le milieu par les frontières du domaine. Cela revient à fixer L pour toutes les directions \mathbf{s} telles que $\mathbf{s} \cdot \mathbf{n} > 0$, \mathbf{n} étant la normale locale orientée vers l'intérieur du milieu. Dans le cas de parois opaques, lambertiennes et diffuses, ce sont des conditions de la forme :

$$L(\mathbf{x}_p, \mathbf{s}) = \varepsilon L^0(T_p) + \frac{1 - \varepsilon}{\pi} \int_{\mathbf{s}' \cdot \mathbf{n} < 0} L(\mathbf{x}_p, \mathbf{s}') |\mathbf{s}' \cdot \mathbf{n}| d\Omega' \quad (4.2)$$

où ε est l'émissivité de la paroi et T_p sa température au point \mathbf{x}_p .

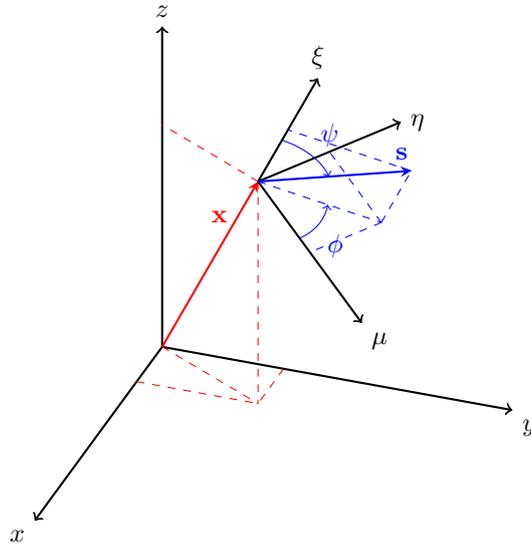


Fig. 4.1 Système d'axes repérant la position \mathbf{x} du point courant et la direction de propagation \mathbf{s} (coordonnées cartésiennes). Les angles ψ et ϕ sont les angles polaires (zénith et azimut) caractérisant \mathbf{s} et μ, η, ξ ses cosinus directeurs.

4.3 Flux et sources radiatives

Le transfert radiatif au sein d'un milieu semi-transparent se caractérise par un champ (vectoriel) de densité de flux, \mathbf{q}_r , duquel on déduit un champ (scalaire) de sources volumiques, S_r . Ces sources peuvent se calculer en tout point par :

$$S_r = -\nabla \cdot \mathbf{q}_r = \kappa (G - 4\pi L^0(T)) \quad (4.3)$$

*Toutes ces grandeurs sont *a priori* des grandeurs monochromatiques, mais elles peuvent être considérées comme des grandeurs totales dans l'hypothèse d'un milieu gris (i.e., un milieu dans lequel le coefficient d'absorption est supposé indépendant de la longueur d'onde). Dans ce cas, la luminance de corps noir correspond, en grandeur totale, à :

$$L^0(T) = \frac{n^2 \sigma T^4}{\pi}$$

où n est l'indice de réfraction du milieu et σ la constante de Stefan-Boltzmann.

avec G le rayonnement incident et \mathbf{q}_r la densité de flux radiatif définis par :

$$G(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) d\Omega \quad (4.4)$$

$$\mathbf{q}_r(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \mathbf{s} d\Omega \quad (4.5)$$

La rayonnement incident et la densité de flux radiatif sont donc les moments d'ordre 0 et 1, respectivement, de la luminance.

4.4 L'approximation de Rosseland

L'approximation de Rosseland [22, 23] est largement utilisée pour les calculs de transferts thermiques radiatifs dans les procédés verriers [102, 103]. Cette approximation permet de représenter les transferts radiatifs comme un phénomène diffusif, analogue à la conduction thermique. Elle est justifiée dans le cas de milieux optiquement épais, c'est-à-dire dans lesquels la longueur de pénétration du rayonnement est petite devant l'échelle typique sur laquelle on s'intéresse aux variations des paramètres physiques du système.

On introduit la notion d'épaisseur optique d'un milieu semi-transparent gris, notée τ_0 , avec $\tau_0 = \kappa d$ où κ est le coefficient d'absorption gris (ou moyen) et d une dimension caractéristique du milieu. On considérera le milieu optiquement épais lorsque $\tau_0 \gg 1$ (en pratique pour $\tau_0 \geq 10$ [98]).

Pour un milieu gris de coefficient d'absorption κ , la conductivité thermique « radiative » [104] s'écrit :

$$k_{rad} = \frac{16n^2\sigma T^3}{3\kappa} \quad (4.6)$$

où n est l'indice de réfraction, σ la constante de Stefan-Boltzmann et T la température absolue. Dans le cas d'un milieu non gris dans lequel l'indice de réfraction dépend peu de la longueur d'onde, la formule précédente se généralise en :

$$k_{rad} = \frac{4\pi n^2}{3} \int_0^{+\infty} \frac{1}{\kappa_\lambda} \frac{\partial L_\lambda^0(T)}{\partial T} d\lambda \quad (4.7)$$

A proximité des frontières, l'approximation de Rosseland n'est plus valable : en effet, la taille pertinente est alors la distance à la paroi, qui peut être arbitrairement petite et donc inférieure à la longueur de pénétration du rayonnement. Pour cette raison, des corrections à l'approximation de Rosseland ont été proposées par divers auteurs [68, 69, 105–107] afin d'étendre ses conditions de validité jusqu'aux frontières d'un milieu optiquement épais et prendre en compte l'émission des parois.

4.5 Méthodes de résolution de l'ETR

L'ETR est une équation intégral-différentielle dépendant de cinq variables (trois coordonnées spatiales et deux coordonnées directionnelles). La résolution de l'ETR pour des cas généraux nécessite l'utilisation de méthodes numériques (approchées) déterministes (méthode zonale [108], méthode des ordonnées discrètes [109], méthode des volumes finis [110] ou bien méthode des harmoniques sphériques [99] par exemple) ou bien statistiques (méthode de Monte Carlo) [26]. Pour plus de détails, le lecteur est invité à se reporter aux textes spécialisés [21, 100, 101]. Dans la suite de ce chapitre, nous présentons la méthode des harmoniques sphériques.

4.6 La méthode des harmoniques sphériques et l'approximation P_1

4.6.1 Principe

La méthode des harmoniques sphériques [99], notée P_N , permet d'obtenir des solutions d'ordre arbitrairement élevé en transformant l'équation de transfert radiatif (ETR) en un système d'équations aux dérivées partielles (EDP). L'approche a été proposée par Jeans [99] dans le cadre de ses travaux en astrophysique (rayonnement des étoiles).

La luminance peut s'écrire comme une série de Fourier généralisée de la forme :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l L_l^m(\mathbf{x}) Y_l^m(\mathbf{s}) \quad (4.8)$$

où $L_l^m(\mathbf{x})$ sont des coefficients fonctions de la position et $Y_l^m(\mathbf{s})$ des harmoniques sphériques données par :

$$Y_l^m(\mathbf{s}) = (-1)^{(m+|m|)/2} \left[\frac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!} \right]^{1/2} e^{im\phi} P_l^{|m|}(\cos \psi) \quad (4.9)$$

avec ψ et ϕ les angles polaire et azimutal décrivant le vecteur de direction \mathbf{s} (cf. Figure 4.1) et P_l^m les polynômes de Legendre.

La solution obtenue par la méthode des harmoniques sphériques est exacte si la série est calculée de 0 à l'infini. En pratique, la série est tronquée après un nombre fini N de termes, i.e. $L_l^m(\mathbf{x}) = 0$ pour $l > N$. Cette approximation est appelée P_N avec N l'ordre de la troncature. Le champ de luminance inconnu $L(\mathbf{x}, \mathbf{s})$, fonction de la position et de la direction, est remplacé par $(N+1)^2$ coefficients inconnus $L_l^m(\mathbf{x})$ fonctions de la position uniquement.

4.6.2 Mise en équation de l'approximation P_1

Si la série de l'Equation 4.8 est tronquée au premier ordre, on obtient l'approximation P_1 . La luminance peut alors être approchée par :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \simeq L_0^0(\mathbf{x}) Y_0^0(\mathbf{s}) + L_1^{-1}(\mathbf{x}) Y_1^{-1}(\mathbf{s}) + L_1^0(\mathbf{x}) Y_1^0(\mathbf{s}) + L_1^1(\mathbf{x}) Y_1^1(\mathbf{s}) \quad (4.10)$$

Comme $P_0^0(\cos \psi) = 1$, $P_1^0(\cos \psi) = \cos \psi$ et $P_1^1(\cos \psi) = \sin \psi$, il vient :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \simeq L_0^0(\mathbf{x}) + \frac{L_1^{-1}(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} e^{-i\phi} \sin \psi + L_1^0(\mathbf{x}) \cos \psi - \frac{L_1^1(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} e^{i\phi} \sin \psi \quad (4.11)$$

L'Equation 4.11 a quatre fonctions inconnues : L_0^0 , L_1^{-1} , L_1^0 et L_1^1 .

On peut réécrire l'Equation 4.11 sous la forme suivante :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \simeq \underbrace{L_0^0(\mathbf{x})}_{a(\mathbf{x})} + \underbrace{\frac{L_1^{-1}(\mathbf{x}) - L_1^1(\mathbf{x})}{\sqrt{2}}}_{b_1(\mathbf{x})} \underbrace{\cos \phi \sin \psi}_{\mu} - i \underbrace{\frac{L_1^{-1}(\mathbf{x}) + L_1^1(\mathbf{x})}{\sqrt{2}}}_{b_2(\mathbf{x})} \underbrace{\sin \phi \sin \psi}_{\eta} + \underbrace{L_1^0(\mathbf{x})}_{b_3(\mathbf{x})} \underbrace{\cos \psi}_{\xi} \quad (4.12)$$

On peut alors écrire l'Equation 4.12 de manière plus compacte en introduisant deux nouvelles fonctions, a (un scalaire) et \mathbf{b} (un vecteur avec trois composantes), avec :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \simeq a(\mathbf{x}) + \mathbf{b}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{s} \quad (4.13)$$

En intégrant L , puis $\mathbf{s}L$, sur toutes les directions de l'espace, on montre que[†] :

$$a(\mathbf{x}) = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) d\Omega = \frac{1}{4\pi} G(\mathbf{x}) \quad (4.14)$$

$$\mathbf{b}(\mathbf{x}) = \frac{3}{4\pi} \int_{4\pi} L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \mathbf{s} d\Omega = \frac{3}{4\pi} \mathbf{q}_r(\mathbf{x}) \quad (4.15)$$

Le champ de luminance est ainsi approché par l'expression suivante :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{s}) \simeq \frac{1}{4\pi} (G + 3\mathbf{q}_r \cdot \mathbf{s}) \quad (4.16)$$

Les inconnues du problème sont donc le champ de rayonnement incident G et les trois composantes du vecteur de densité de flux \mathbf{q}_r .

On multiplie maintenant l'ETR par le vecteur \mathbf{s} et on intègre sur toutes les directions de l'espace, il vient :

$$\int_{4\pi} \mathbf{s} \nabla \cdot (\mathbf{s}L) d\Omega + \kappa \mathbf{q}_r = 0 \quad (4.17)$$

En utilisant la formule approchée de la luminance (cf. Equation 4.16), il vient :

$$\nabla \cdot (\mathbf{s}L) = \frac{1}{4\pi} \nabla \cdot (\mathbf{s}G) + \frac{3}{4\pi} \nabla \cdot [\mathbf{s}(\mathbf{q}_r \cdot \mathbf{s})] \quad (4.18)$$

Après un long et fastidieux développement[‡], on peut montrer qu'on obtient la relation suivante :

$$\int_{4\pi} \mathbf{s} \nabla \cdot (\mathbf{s}L) d\Omega = \frac{1}{3} \nabla G \quad (4.19)$$

D'après l'Equation 4.17, on a alors :

$$\mathbf{q}_r(\mathbf{x}) = -\frac{1}{3\kappa} \nabla G(\mathbf{x}) \quad (4.20)$$

On utilise maintenant l'expression du champ de sources volumiques S_r (cf. Equation 4.3) pour obtenir la relation suivante :

$$\nabla \cdot \left(\frac{1}{3\kappa} \nabla G \right) = \kappa \left(G - 4\pi L^0(T) \right) \quad (4.21)$$

Si κ est indépendant de la position \mathbf{x} , il vient :

$$\nabla^2 G - 3\kappa^2 G = -12\pi\kappa^2 L^0(T) \quad (4.22)$$

L'Equation 4.22[§] est une EDP elliptique dont la résolution fournit le champ de rayonnement incident dans tout le domaine. On peut ensuite calculer la densité de flux radiatif par la relation 4.20 et le champ de sources volumiques radiatives par la relation 4.3.

[†]On s'appuie ici sur les égalités suivantes : $\int_{4\pi} d\Omega = 4\pi$, $\int_{4\pi} \mathbf{s} d\Omega = 0$ et $\int_{4\pi} \mathbf{s}\mathbf{s} d\Omega = \frac{4\pi}{3} \boldsymbol{\delta}$ avec $\boldsymbol{\delta}$ le tenseur unité et $\mathbf{s}\mathbf{s}$ le tenseur symétrique d'ordre deux dont les composantes sont les produits des cosinus directeurs de \mathbf{s} pris deux à deux.

[‡]On s'appuie ici encore sur les égalités suivantes : $\int_{4\pi} d\Omega = 4\pi$, $\int_{4\pi} \mathbf{s} d\Omega = 0$ et $\int_{4\pi} \mathbf{s}\mathbf{s} d\Omega = \frac{4\pi}{3} \boldsymbol{\delta}$. On utilise également le fait que $\int_{4\pi} \mathbf{s}\mathbf{s}\mathbf{s} d\Omega = \mathbf{0}$ où $\mathbf{s}\mathbf{s}\mathbf{s}$ est le tenseur symétrique d'ordre trois dont les composantes sont les produits des cosinus directeurs de \mathbf{s} pris trois à trois.

[§]On peut ici introduire un coefficient d'absorption *effectif* (ou *apparent*), noté κ' , avec $\kappa' = \sqrt{3}\kappa$. La valeur du coefficient d'absorption *effectif* de l'approximation P_1 se situe entre la valeur du modèle de substitution de noyau de Lick [111] ($\kappa' = \frac{3}{2}\kappa$) et celle du modèle à deux flux de Schuster-Schwarzschild [109] ($\kappa' = 2\kappa$).

4.6.3 Conditions aux limites

La résolution de l'équation différentielle 4.22 nécessite de définir des conditions aux limites sur la frontière du domaine pour le rayonnement incident G . Or, la relation 4.2 définit des conditions aux limites sur la luminance L .

On utilise la formulation de Marshak [112] fondée sur la conservation globale de la composante normale du flux radiatif à travers la frontière. Ainsi, en utilisant l'expression approchée de la luminance L (cf. Equation 4.16), la densité de flux radiatif pénétrant dans le milieu depuis le point \mathbf{x}_p de la frontière vaut :

$$J_p = \int_{\mathbf{s} \cdot \mathbf{n} > 0} L(\mathbf{x}_p, \mathbf{s}) \mathbf{s} \cdot \mathbf{n} d\Omega = \frac{1}{4} [G(\mathbf{x}_p) + 2\mathbf{q}_r(\mathbf{x}_p) \cdot \mathbf{n}] \quad (4.23)$$

On peut alors utiliser la relation entre la densité de flux radiatif et le rayonnement incident (cf. Equation 4.20), il vient :

$$4J_p = G(\mathbf{x}_p) - \frac{2}{3\kappa} \frac{\partial G}{\partial n}(\mathbf{x}_p) \quad (4.24)$$

où $\frac{\partial G}{\partial n} = \mathbf{n} \cdot \nabla G$ représente la dérivée de G selon la normale à la paroi pointant vers l'intérieur du domaine.

La densité de flux radiatif nette quittant la paroi vaut alors :

$$\mathbf{q}_r(\mathbf{x}_p) \cdot \mathbf{n} = \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} \left(\pi L^0(T_p) - J_p \right) \quad (4.25)$$

On en déduit alors la condition limite suivante :

$$-\frac{2}{3\kappa} \frac{2 - \varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial G}{\partial n}(\mathbf{x}_p) + G(\mathbf{x}_p) = 4\pi L^0(T_p) \quad (4.26)$$

Il s'agit d'une condition limite du troisième type (appelée également condition limite de Robin).

4.6.4 Résolution numérique

La résolution de l'Equation 4.22 associée aux conditions aux limites 4.26 ne pose pas de problèmes particuliers. Il s'agit d'une équation aux dérivées partielles elliptique du second ordre linéaire et à conditions limites linéaires. On peut utiliser des méthodes numériques de type différences finies, éléments finis ou bien volumes finis [113, 114]. Par ailleurs, l'approximation P_1 est implémentée dans de nombreux codes numériques (libres ou commerciaux).

4.6.5 Avantages et inconvénients

Les avantages de la méthode P_1 ont été évoqués ci-dessus : simplicité de formulation, une seule équation à résoudre, de même nature que les équations de conservation classiques en thermique et mécanique des fluides. Néanmoins, son principal inconvénient vient du traitement approximatif de la luminance et des flux issus des parois. La troncature précoce du développement de L et le modèle de Marschak (pour les conditions aux limites) supposent implicitement une certaine isotropie de la luminance[¶] : c'est légitime lorsque le milieu est optiquement épais (dans ce cas, L tend à devenir égale à L^0 , qui est isotrope) mais pas

[¶]L'équation 4.17 peut s'écrire sous la forme $\nabla \mathbf{P} + \kappa \mathbf{q}_r = 0$ où \mathbf{P} est le tenseur des pressions radiatives $\mathbf{P} = \int_{4\pi} L \mathbf{s} \mathbf{s} d\Omega$ (i.e., le moment d'ordre 2 de la luminance). Si L est isotrope, alors $\mathbf{P} = \frac{4\pi}{3} L \delta$ et $G = 4\pi L$. Donc $\mathbf{P} = \frac{1}{3} G \delta$. On a ainsi $\frac{1}{3} \nabla G + \kappa \mathbf{q}_r = 0$, ce qui correspond à la relation 4.20 établit avec l'approximation P_1 .

lorsque le milieu est optiquement mince (i.e., $\tau_0 \leq 0,1$) dans des configurations donnant lieu à de fortes anisotropies de la luminance^{||}.

Pour remédier à cela, des versions modifiées de la méthode P_1 ont été développées dans lesquelles le traitement du rayonnement se fait en séparant ce qui est issu des parois – et qui génère le plus d’anisotropie – de ce qui vient du milieu lui-même [100].

4.6.6 Brève revue bibliographique

L’approximation P_1 est une méthode relativement peu présente dans la littérature traitant des transferts radiatifs dans les liquides semi-transparents tels que les liquides silicatés. On mentionnera toutefois les travaux de Ratzel et Howell [115], Derby *et al.* [116], Cheong *et al.* [117], N’Guyen *et al.* [118–120] au LEMTA et Meulemans à Saint-Gobain Recherche [121].

Ratzel et Howell [115] se sont intéressés à un problème de rayonnement pur dans une cavité 2D dont le rapport d’aspect A et l’épaisseur optique τ_0 varient ($A \in [0,1;5]$ et $\tau_0 \in [0,1;1]$). Les transferts radiatifs sont modélisés à l’aide de P_1 , de P_3 et d’une méthode zonale [108] (référence). La précision de P_1 est satisfaisante lorsque l’épaisseur optique vaut 1 mais pas en deçà.

Derby *et al.* [116] ont étudié l’écoulement dans un cylindre, rempli d’un fluide newtonien semi-transparent gris dont les propriétés sont constantes, soumis à une chauffe latérale. Les transferts radiatifs sont modélisés à l’aide de l’approximation de Rosseland avec et sans la correction d’Howell-Goldstein [105, 106], de P_1 et d’une méthode par éléments finis de Brandon et Derby (référence). Les résultats obtenus avec P_1 sont très proches qualitativement et quantitativement de la solution de référence. En revanche, l’approximation de Rosseland ne permet pas de capturer la structure de l’écoulement compte tenu de l’intensité convective ($Gr = 2,06 \times 10^3$) malgré l’épaisseur optique du milieu ($\tau_0 = 10$).

Cheong *et al.* [117] ont traité le cas d’un écoulement 2D de verre sur une plaque plane pour différentes épaisseurs optiques ($\tau_0 = 1, 3$ et 10). Les transferts radiatifs sont modélisés à l’aide de l’approximation de Rosseland avec et sans la correction de Deissler [68] et de l’approximation P_1 . Les résultats obtenus avec l’approximation de Rosseland avec et sans la correction de Deissler sont éloignés, qualitativement et quantitativement, de la solution de référence lorsque l’épaisseur optique vaut 1. L’approximation P_1 obtient des résultats très précis quelle que soit l’épaisseur optique considérée.

Au sein du LEMTA, l’approximation P_1 a déjà été utilisée dans le cadre de travaux liés au remplissage de moules verriers, et ceci pour une large gamme d’épaisseurs optiques (cf. thèse de H. Q. Nguyen [118–120]). Une version modifiée de l’approximation P_1 a été proposée en utilisant le coefficient d’absorption *effectif* du modèle de substitution de noyau de Lick [111] (i.e., $\kappa' = \frac{3}{2}\kappa$ au lieu de $\kappa' = \sqrt{3}\kappa$)**. Cette modification permet à l’approximation P_1 modifiée d’être plus précise que les approximations P_1 et P_3 classiques sur l’ensemble des cas tests réalisés.

A Saint-Gobain-Recherche, Meulemans [121] a évalué la précision de l’approximation P_1 sur des cas tests représentatifs de la thermique des procédés d’élaboration du verre (i.e., cas tests de couplage conduction – rayonnement, conduction – convection naturelle – rayonnement et bain de verre simplifié, respectivement). Pour chaque cas test, les résultats obtenus avec la méthode des ordonnées discrètes (référence), l’approximation P_1 et l’approximation de Rosseland avec et sans la correction d’Howell-Goldstein ont été comparés. Les résultats obtenus ont permis de démontrer les limitations de l’approximation de Rosseland lorsque l’épaisseur optique d’un milieu est inférieure à 10. La correction d’Howell-Goldstein permet

^{||}On notera toutefois que l’approximation P_1 prend partiellement en compte l’anisotropie du champ de luminance à travers le coefficient d’absorption *effectif* (ou *apparent*) (i.e., $\kappa' = \sqrt{3}\kappa$).

**Dans le cas limite d’un milieu émettant, absorbant et non-diffusant, la solution de l’ETR en 1D est alors exacte.

d'améliorer quelque peu la situation sans toutefois y remédier complètement. L'approximation P_1 permet de reproduire, qualitativement et quantitativement, les solutions obtenues avec la méthode des ordonnées discrètes (solution de référence) pour un « coût » de calcul bien moindre.

4.7 Conclusion

L'objectif principal de l'étude est la caractérisation des propriétés thermiques *intrinsèques* des liquides silicatés, i.e. l'estimation de la diffusivité thermique et de la conductivité thermique (ou bien tout autre combinaison de ces deux propriétés comme l'effusivité ou la capacité thermique) par méthode inverse.

Le modèle direct doit prendre en compte le couplage conducto-radiatif à travers le champ de sources volumiques radiatives (i.e., la divergence de la densité de flux radiatif) dans l'équation de conservation de l'énergie. L'approximation P_1 présente ainsi un très bon compromis précision/« coût » de calcul pour traiter le problème inverse de notre étude.

5.1 Introduction

Avant de présenter la modélisation du problème, nous allons commencer par décrire brièvement le principe de l'expérience qui sera détaillée dans le Chapitre 7. Le dispositif expérimental est basé sur une méthode pulsée de type flash [13]. L'échantillon, placé au centre d'une enceinte à température contrôlée, est soumis à une excitation de type créneau délivrée par un laser continu au dioxyde de carbone (CO_2) pendant quelques secondes sur la face avant (cf. Figure 5.1). L'élévation de température de l'échantillon qui en résulte est mesurée sur la face arrière à l'aide d'une caméra infrarouge refroidie. L'échantillon liquide est placé dans une cellule de mesure, optimisée, en platine rhodié 10% (de dimensions $40 \times 40 \times 6 \text{ mm}^3$, parois de 1 mm d'épaisseur). On renvoie le lecteur au Chapitre 7 pour la description détaillée du dispositif expérimental.

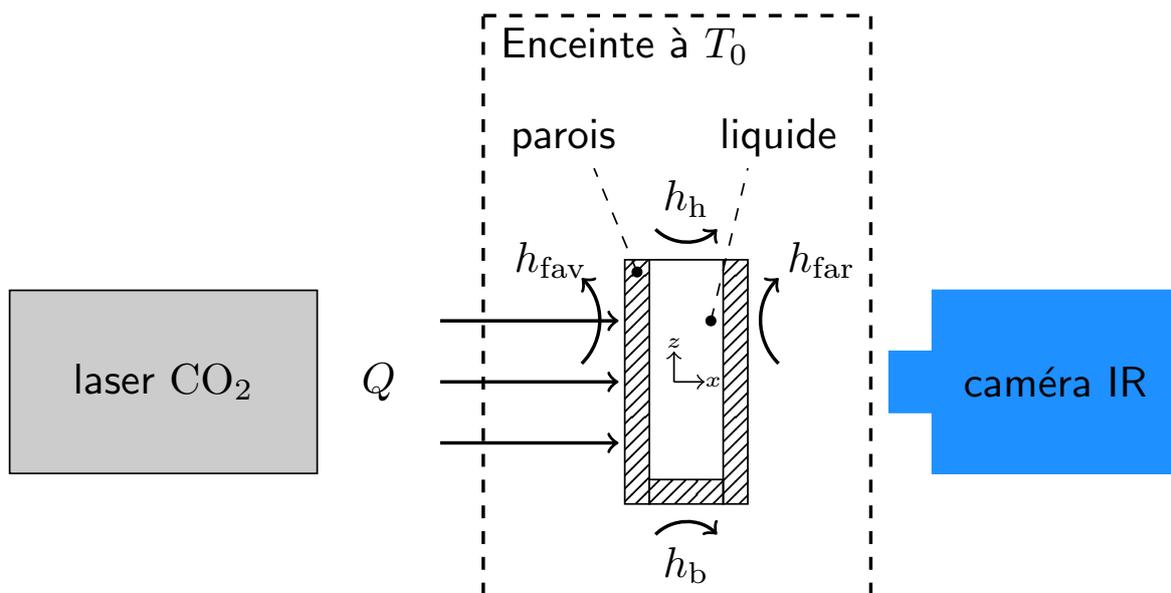


Fig. 5.1 Schéma de principe du dispositif expérimental

Le problème considéré implique *a priori* un couplage entre les trois modes de transferts thermiques : la conduction dans le matériau de la cellule de mesure et dans le liquide, la

convection naturelle dans le liquide et le rayonnement.

Dans ce chapitre, nous présentons la modélisation des transferts thermiques couplés du problème direct. Les hypothèses et simplifications du problème sont présentées et discutées. On présentera ensuite la mise en équation et l’implémentation du modèle dans un code numérique commercial.

5.2 Hypothèses et simplifications

5.2.1 Propriétés des matériaux

Les propriétés thermo-physiques des matériaux sont considérées comme homogènes et isotropes. Le matériau utilisé pour la cellule de mesure (Pt/Rh 10%) est considéré comme un milieu non participant. Le liquide est traité comme un milieu participant (i.e., émettant, absorbant et non diffusant).

Les propriétés radiatives des matériaux (i.e., indice de réfraction et coefficient d’absorption du liquide, émissivité des parois) sont considérées comme grises. Cette simplification se justifie pleinement ici car la prise en compte du caractère non gris des propriétés radiatives des liquides silicatés (en utilisant un modèle multi-bandes par exemple*) n’influe pas, dans le cas où les parois sont réfléchissantes, sur l’estimation de la diffusivité thermique [37, 39].

5.2.2 Convection naturelle

Le rapport d’aspect de la cellule de mesure n’est pas assez grand (i.e., il vaut 10) pour pouvoir négliger *a priori* la convection naturelle [122]. Néanmoins, les liquides considérés ici (i.e., les liquides silicatés) sont très visqueux (i.e., leur viscosité dynamique est comprise entre 1 et 1000 Pa s) [2, 3], les nombres de Rayleigh associés à la configuration expérimentale sont ainsi très petits (i.e., de l’ordre de l’unité au maximum) et inférieurs à la valeur critique nécessaire à la mise en place d’un écoulement en présence de rayonnement (i.e., de l’ordre de 10^2) [20]. On peut donc réduire le problème à un couplage conduction-rayonnement.

Les propriétés thermo-physiques de différents liquides (eau, huile et verre fondu) et les caractéristiques de la configuration expérimentale permettant d’évaluer les nombres de Prandtl, Grashof et Rayleigh sont reportées dans la Table 5.1.

Les nombres de Prandtl, Grashof et Rayleigh sont définis ci-dessous :

$$Pr = \frac{\nu}{a} = \frac{\mu C_p}{k} \quad (5.1)$$

$$Gr = \frac{g\beta\Delta T L_x^3}{\nu^2} \quad (5.2)$$

$$Ra = PrGr \quad (5.3)$$

$$= \frac{g\beta\Delta T L_x^3}{\nu a} \quad (5.4)$$

avec L_x la distance entre les parois internes verticales de la cellule (i.e., l’épaisseur du liquide) et ΔT l’écart de température entre les parois de la cellule.

La Figure 5.2 représente l’évolution des nombres de Prandtl et Rayleigh pour les différents liquides considérés ici (eau, huile et verre fondu).

*L’utilisation d’un modèle non-gris ajouterait des paramètres dans le modèle direct et ceux-ci ne seraient ensuite pas identifiables (présence probable de corrélations fortes entre les paramètres). On rappelle que l’objectif principal de nos travaux est l’estimation des propriétés thermiques *intrinsèques* des liquides silicatés. La modélisation du couplage conducto-radiatif doit être traité avec cet objectif en tête.

Grandeur	Symbole	Unité	Liquide		
			eau	huile	verre fondu
Conductivité thermique	k	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	0,597	0,132	2
Chaleur spécifique	C_p	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	4183	2028	1600
Viscosité dynamique	μ	Pa.s	0,001	0,8	1 – 1000
Masse volumique	ρ	kg m^{-3}	998	888	2500
Coeff. d'exp. volumique	β	K^{-1}	3×10^{-4}	7×10^{-4}	5×10^{-5}
Distance caractéristique	L_x	m	4×10^{-3}		
Ecart de température	ΔT	K	10		
Nombre de Prandtl	Pr		7,00	$1,23 \times 10^4$	$8,00 \times 10^2 - 10^5$
Nombre de Grashof	Gr		$1,88 \times 10^3$	$5,41 \times 10^{-3}$	$1,96 \times 10^{-3} - 10^{-9}$
Nombre de Rayleigh	Ra		$1,31 \times 10^4$	$6,66 \times 10^1$	$1,57 \times 10^0 - 10^{-3}$

Tab. 5.1 Propriétés thermo-physiques des matériaux et nombres adimensionnés associés à la configuration expérimentale

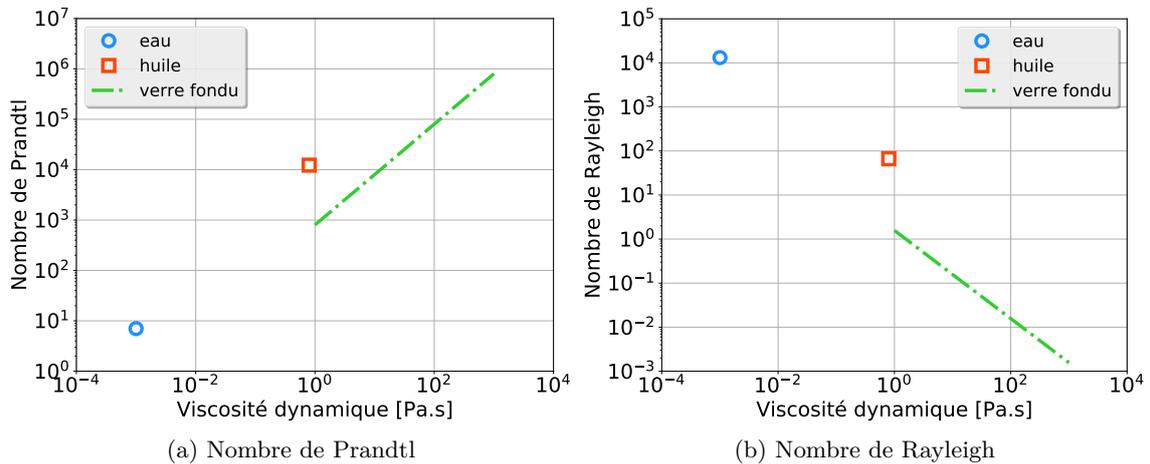


Fig. 5.2 Nombres adimensionnés associés à la configuration expérimentale pour différents liquides

5.2.3 Conduction

Compte tenu de la géométrie du problème (asymétrie due à la surface libre) et de la différence de diffusivité thermique entre le liquide (verre fondu) et le matériau de la cellule de mesure (Pt/Rh 10%)[†], le modèle direct développé doit prendre en compte le caractère tridimensionnel des transferts thermiques conductifs. Pour s'en convaincre, nous avons réalisé des simulations directes du problème en considérant des géométries unidimensionnelle, bi-dimensionnelle et tridimensionnelle (cf. Figure 5.3). Un exemple de thermogrammes réduits obtenus en face arrière est illustré sur la Figure 5.4.

Par ailleurs, des mesures réalisées à température ambiante sur de l'eau gélifiée [4, 5] ont permis de confirmer la nécessité de prendre en compte le caractère tridimensionnel des transferts thermiques conductifs.

[†]Le verre fondu est environ quarante fois moins diffusif que le platine rhodié à 10% (i.e., les diffusivités thermiques sont de l'ordre de 5×10^{-7} et $2 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, respectivement).

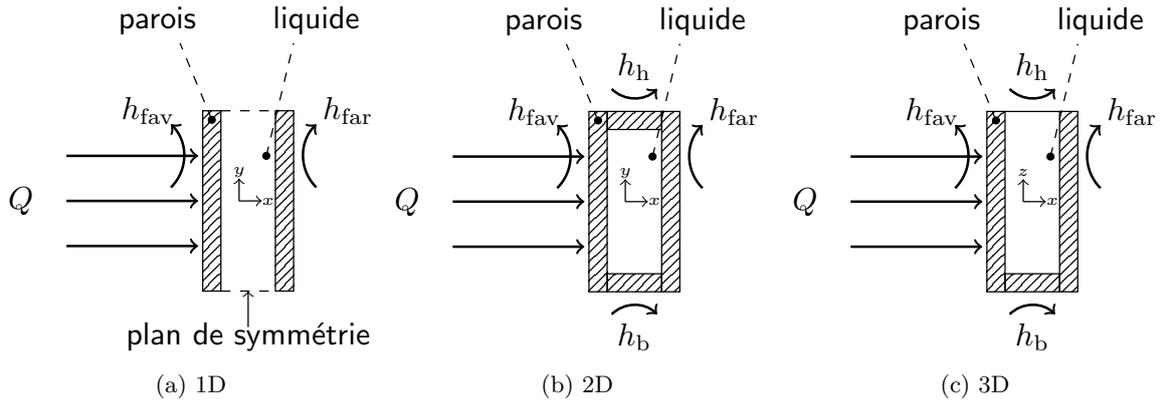


Fig. 5.3 Géométries unidimensionnelle, bidimensionnelle et tridimensionnelle

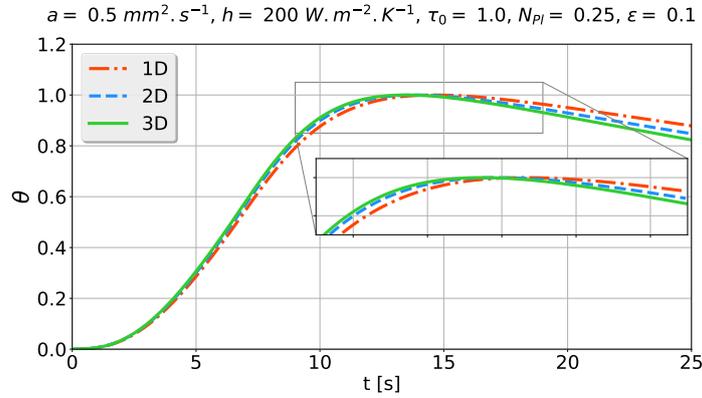


Fig. 5.4 Exemples de thermogrammes réduits en face arrière obtenus avec une excitation de type créneau d'une durée de 6,8 s en considérant des géométries unidimensionnelle, bidimensionnelle et tridimensionnelle

5.3 Mise en équation du modèle direct

Le modèle direct développé prend en compte le caractère tridimensionnel des transferts thermiques et néglige les transferts thermiques convectifs dans le liquide car les nombres de Rayleigh sont suffisamment faibles. On doit alors résoudre l'équation de conservation de l'énergie dans les deux matériaux (i.e., dans les deux domaines \mathcal{D}_w et \mathcal{D}_l) et prendre en compte le couplage conducto-radiatif dans le liquide.

L'équation de conservation de l'énergie peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\forall \mathbf{x} \in \mathcal{D}_w : (\rho c)_w \frac{\partial T}{\partial t} = k_w \nabla^2 T \quad (5.5)$$

$$\forall \mathbf{x} \in \mathcal{D}_l : \rho c \frac{\partial T}{\partial t} = k \nabla^2 T - \nabla \cdot \mathbf{q}_r \quad (5.6)$$

$$= k \nabla^2 T + \kappa (G - 4n^2 \sigma T^4) \quad (5.7)$$

L'indice w renvoie au matériau de la cellule de mesure.

On utilise l'approximation P_1 (cf. Chapitre 4) pour déterminer le champ de rayonnement incident G , solution de l'équation différentielle elliptique suivante :

$$\forall \mathbf{x} \in \mathcal{D}_l : \nabla^2 G - 3\kappa^2 G = -12\kappa^2 n^2 \sigma T^4 \quad (5.8)$$

On doit maintenant définir les conditions aux limites aux frontières du domaine, notées $\partial\mathcal{D}_w$ et $\partial\mathcal{D}_l$.

La condition limite sur la face externe avant de la cellule de mesure est définie par :

$$-k_w \frac{\partial T}{\partial n} = -h(T_p(t) - T_0) + \dot{Q}_0 \bar{R}_0(x, y) H(t_d - t) \quad (5.9)$$

où \dot{Q}_0 , H , t_d , \bar{R}_0 , h , T_0 et T_p sont la densité de flux thermique surfacique du laser, la fonction de Heaviside, la durée de l'impulsion du laser, le rayon normalisé de la tâche laser, le coefficient de pertes thermiques[‡], la température ambiante et la température de la paroi, respectivement.

\bar{R}_0 est défini par une loi gaussienne de la forme :

$$\bar{R}_0(x, y) = \exp\left(-\left[\frac{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2}{r_0^2}\right]\right) \quad (5.10)$$

avec (x_0, y_0) la position de la tâche laser et r_0 son rayon.

Sur toutes les autres frontières externes, une condition limite du troisième type (i.e., condition de Robin) est prescrite :

$$-k_w \frac{\partial T}{\partial n} = -h(T_p(t) - T_0) \quad (5.11)$$

On considère que le contact est parfait entre le liquide et la cellule de sorte qu'il n'y a pas de résistance de contact (i.e., il n'y a pas de saut de température à l'interface et le flux de chaleur est conservé).

On notera qu'on utilisera un coefficient de pertes thermiques unique pour l'ensemble des frontières extérieures. L'utilisation de coefficients de pertes thermiques distincts n'est pas nécessaire ici car ils seraient fortement corrélés et donc non identifiables lors de la procédure d'estimation [6].

Par ailleurs, on utilise une condition limite de type Marshak (cf. Chapitre 4) pour le rayonnement incident :

$$\forall \mathbf{x}_p \in \partial\mathcal{D}_l : -\frac{2}{3\kappa} \frac{2 - \varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial G}{\partial n}(\mathbf{x}_p) + G(\mathbf{x}_p) = 4n^2 \sigma T_p^4 \quad (5.12)$$

A l'état initial, le système est supposé être à l'équilibre thermique avec une température constante uniforme (i.e., $T(t = 0) = T_0$).

5.4 Implémentation

Le modèle direct conducto-radiatif avec l'approximation P_1 est implémenté dans le code commercial ANSYS Fluent v14.5 [123] à l'aide de fonctions utilisateurs [124]. L'excitation de type créneau délivrée par le laser étant centrée sur la cellule de mesure, on a un plan de symétrie vertical au centre du domaine de calcul. Celui-ci est discrétisé en espace à l'aide d'un maillage composé de 307 200 hexaèdres réguliers (i.e., $dx = 0,25$ mm). Un pas de temps fixe inférieur ou égal à 50 ms a été utilisé. On utilise des schémas numériques du second ordre [113, 114]. Le choix des discrétisations spatiales et temporelles s'est appuyé sur une étude systématique pour évaluer *a posteriori* l'indépendance des solutions obtenues vis-à-vis des discrétisations [125, 126]. Par souci de brièveté, les résultats de cette étude ne sont pas présentés ici.

[‡]Le coefficient de pertes thermiques considéré ici est la somme des coefficients de pertes thermiques conducto-convectifs et radiatifs. Ce dernier peut-être linéarisé compte tenu de la relative faible élévation de température (i.e., de l'ordre de quelques degrés) de l'échantillon et de la cellule de mesure.

La Figure 5.5 représente la géométrie tridimensionnelle du problème avec le plan de symétrie vertical au centre du domaine de calcul et le maillage de la face arrière de la cellule de mesure.

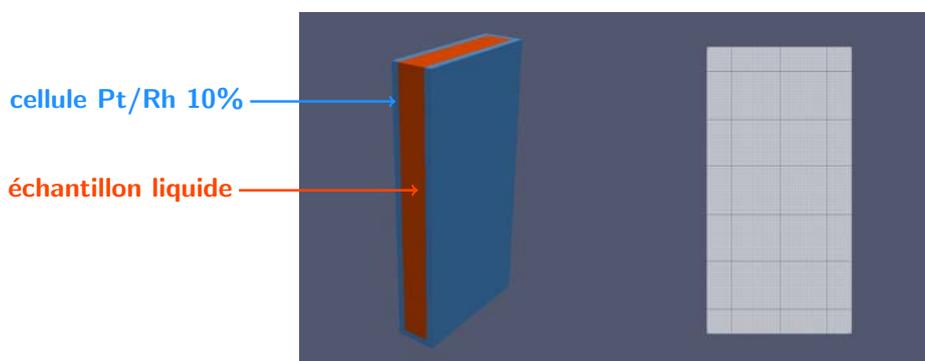


Fig. 5.5 Vue du domaine de calcul (à gauche) et maillage de la face arrière (à droite)

La Figure 5.6 représente des thermogrammes réduits en face arrière obtenus à partir du modèle direct en traitant le couplage conducto-radiatif avec l'approximation P_1 ou bien avec la méthode des ordonnées discrètes[§] (ou DOM, de l'anglais : *Discrete Ordinates Method*). Les thermogrammes réduits obtenus avec les deux méthodes sont quasi identiques (i.e., l'écart relatif moyen est inférieur à 0,25%) et permettent de confirmer la pertinence[¶] de l'approximation P_1 pour traiter le couplage conducto-radiatif du problème direct.

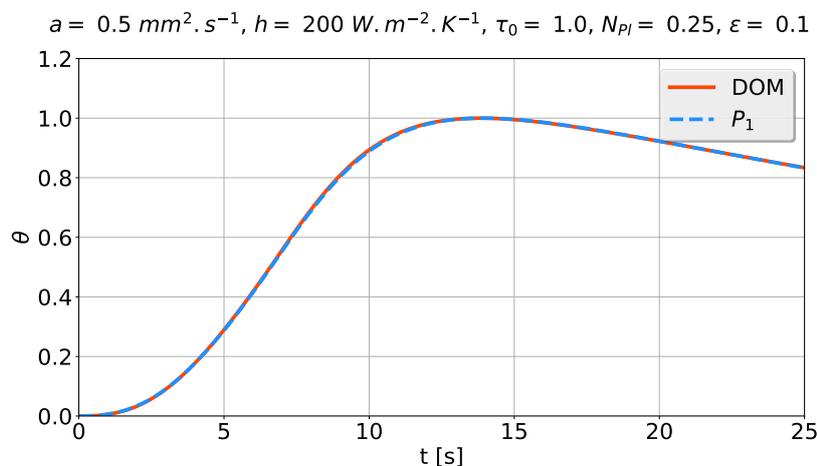


Fig. 5.6 Exemple de thermogrammes réduits en face arrière obtenus avec la méthode des ordonnées discrètes (DOM) et l'approximation P_1

5.5 Conclusion

La modélisation du problème direct prend en compte le couplage conducto-radiatif en résolvant de manière combinée l'équation de la chaleur en régime transitoire et l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu gris émettant, absorbant et non diffusant à l'aide de la méthode des harmoniques sphériques (approximation P_1). Ce modèle est valable pour

[§]L'angle solide est ici discrétisé en $N_{\Omega} = 8N_{\psi}N_{\phi}$ ordonnées discrètes avec $N_{\psi} = N_{\phi} = 3$, soit 72 ordonnées discrètes.

[¶]L'approximation P_1 nécessite la résolution d'une seule équation aux dérivées partielles contre soixante-douze pour la méthode des ordonnées discrètes utilisée ici.

une large gamme d'épaisseurs optiques du milieu (i.e., pour une large gamme de coefficients d'absorption de l'échantillon liquide) et relativement peu gourmand en temps de calcul et espace mémoire.

Le problème direct est fonction des paramètres suivants : le temps de diffusion dans le liquide ($\tau = e^2/a$), l'épaisseur optique du milieu ($\tau_0 = \kappa e$), le nombre de Planck ($N_{Pl} = k\kappa/4n^2\sigma T_0^3$), l'émissivité des parois internes de la cellule, des coefficients de pertes thermiques (ou nombres de Biot associés), des caractéristiques de l'excitation (i.e., durée, forme et densité de flux thermique de la tâche laser), des dimensions de la cellule de mesure et des propriétés thermo-physiques du matériau utilisé pour celle-ci (Pt/Rh 10%).

Certains paramètres sont supposés connus et d'autres seront estimés (les propriétés thermiques des échantillons que l'on souhaite caractériser par exemple) : il s'agit d'un problème inverse en métrologie thermique. Dans le chapitre suivant, nous chercherons donc à déterminer s'il est possible d'estimer simultanément les paramètres inconnus à l'aide d'une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique.

6.1 Introduction

L'objectif principal est la caractérisation des propriétés thermiques (intrinsèques) des liquides silicatés, i.e. l'estimation de la diffusivité thermique et de la conductivité thermique ou bien tout autre combinaison de ces deux propriétés comme l'effusivité ou la capacité thermique.

Le modèle direct est fonction de différents paramètres. Certains sont supposés connus et d'autres seront estimés (les propriétés thermiques des échantillons que l'on souhaite caractériser par exemple) : il s'agit d'un problème inverse en métrologie thermique.

Dans ce chapitre, nous chercherons donc à déterminer s'il est possible d'estimer simultanément les paramètres inconnus à partir de thermogrammes expérimentaux. L'identifiabilité des paramètres inconnus du problème sera investiguée à l'aide d'une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique (cf. Chapitre 3). L'étude initiale portera sur les six paramètres suivants : la diffusivité thermique, le coefficient de pertes thermiques, l'épaisseur optique, le nombre de Planck, l'émissivité interne des parois et la puissance surfacique déposée en face avant. L'analyse portera également sur les thermogrammes réduits (i.e., adimensionnés) car, en pratique, les estimations sont réalisées à partir de thermogrammes expérimentaux réduits. Dans ce cas, la valeur du maximum du thermogramme sera également estimée afin d'évaluer la qualité des normalisations réalisées [84].

Le problème d'estimation étant non-linéaire, les coefficients de sensibilité ont une valeur locale, i.e. pour une valeur nominale du vecteur de paramètres β . Nous étudierons donc plusieurs cas représentatifs du dispositif expérimental et des propriétés thermo-physiques et radiatives de liquides silicatés à haute température.

L'analyse nous permettra de déterminer les paramètres influents, non pertinents et l'information redondante du problème d'estimation non-linéaire [83]. L'étude initiale à six paramètres nous amènera à faire un choix (averti) pour réduire le nombre de paramètres avec un objectif métrologique, i.e. réduire la variance sur les grandeurs physiques que l'on souhaite estimer avec une incertitude la plus faible possible. Nous appliquerons ainsi le principe de parcimonie [97].

Nous vérifierons enfin la pertinence et l'efficacité de l'approche retenue à partir d'estimations réalisées sur des signaux synthétiques à l'aide d'une étude statistique (Monte Carlo).

Les concepts et les outils mathématiques utilisés dans ce chapitre ont été présentés dans le Chapitre 3. Le modèle direct conducto-radiatif a été détaillé dans le Chapitre 5.

6.2 Etude de sensibilité

On supposera les grandeurs suivantes connues : les dimensions de la cellule de mesure (volume de $40 \times 40 \times 6 \text{ mm}^3$ et parois d'épaisseur 1 mm), la position (au centre de la cellule de mesure) et le rayon de la tâche du laser ($r_0 = 2,3 \text{ mm}$), la durée du créneau ($t_d = 6,8 \text{ s}$), l'épaisseur de l'échantillon $e = 4 \text{ mm}$, l'indice de réfraction de l'échantillon $n = 1,467$, la conductivité thermique et la capacité thermique du matériau de la cellule de mesure ($k_w = 72 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $(\rho c)_w = 3,6 \text{ MJ m}^{-3} \text{ K}^{-1}$) et la température initiale de l'échantillon $T_0 = 1600 \text{ K}$.

Le modèle est alors fonction de six paramètres inconnus : la diffusivité thermique a , le coefficient de pertes thermiques h , l'épaisseur optique ($\tau_0 = \kappa e$), le nombre de Planck ($N_{Pl} = k\kappa/4n^2\sigma T_0^3$), l'émissivité interne des parois ε et la puissance surfacique déposée en face avant \dot{Q}_0 . Ce dernier paramètre pourra être remplacé par la valeur maximum du thermogramme si on travaille à partir de thermogrammes réduits*.

On a donc le vecteur de paramètres suivant : $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ \dot{Q}_0]^T$.

Les valeurs nominales des paramètres inconnus sont reportées dans la Table 6.1. On étudie quatre cas correspondant à des épaisseurs optiques et des nombres de Planck différents avec des parois grises réfléchissantes. Les valeurs nominales choisies pour les paramètres correspondent à la configuration du dispositif expérimental (dimensions, matériau de la cellule de mesure) et à des propriétés thermo-physiques et radiatives proches de celles des liquides silicatés qui nous intéressent dans ces travaux (cf. Chapitres 7 et 8).

Cas	Paramètres					
	a [$\text{mm}^2 \text{ s}^{-1}$]	h [$\text{W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$]	τ_0 [-]	N_{Pl} [-]	ε [-]	\dot{Q}_0 [$\text{W m}^{-2} (\times 10^6)$]
1	0,5	200	0,5	0,125	0,1	1,0
2	0,5	200	1	0,25	0,1	1,0
3	0,5	200	5	1,25	0,1	1,0
4	0,5	200	10	2,50	0,1	1,0

Tab. 6.1 Valeurs nominales des paramètres

A partir des valeurs nominales choisies, on en déduit les valeurs des grandeurs physiques suivantes : le coefficient d'absorption, la conductivité thermique et la capacité thermique de l'échantillon. Le coefficient d'absorption est calculé à partir de l'épaisseur optique ($\kappa = \tau_0/e$), la conductivité thermique est calculée à partir du nombre de Planck et du coefficient d'absorption ($k = 4n^2\sigma T_0^3 N_{Pl}/\kappa$), la capacité thermique est ensuite calculée à partir de la conductivité thermique et de la diffusivité thermique ($\rho c = k/a$).

On calcule les sensibilités réduites (cf. Equations 6.1 à 6.3) à partir des thermogrammes simulés avec le modèle direct conducto-radiatif en utilisant un schéma aux différences centrées du second ordre.

*Ce dernier paramètre permet d'estimer la qualité des normalisations réalisées [84]. L'analyse à partir des thermogrammes réduits est reportée en Annexe B dans un souci de brièveté.

$$\forall t \geq 0, j \in \llbracket 1, n \rrbracket : S_{\beta_j}^*(t, \boldsymbol{\beta}) = \beta_j \left. \frac{\partial T(t, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \right|_{t, \beta_k \text{ pour } k \neq j} \quad (6.1)$$

$$\forall t \geq 0, j \in \llbracket 1, n \rrbracket : \Sigma_{\beta_j}^*(t, \boldsymbol{\beta}) = \beta_j \left. \frac{\partial \theta(t, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \right|_{t, \beta_k \text{ pour } k \neq j} \quad (6.2)$$

$$\theta(t, \boldsymbol{\beta}) = K \times \frac{T(t, \boldsymbol{\beta}) - T_0}{\max(T(t, \boldsymbol{\beta}) - T_0)} \quad (6.3)$$

L'intervalle de temps choisi pour réaliser l'étude de sensibilité correspond au thermogramme coupé à 90% de son maximum (une fois le maximum du thermogramme atteint). En effet, aux temps longs (i.e., $t \geq 2t_{\max}$), les paramètres présentent de fortes corrélations (cas du refroidissement d'un système à température quasi-uniforme) [84]. On aurait tout aussi bien pu choisir de travailler entre $t = 0$ et $t = 1,5t_{\max}$ (les intervalles de temps sont quasi identiques dans les cas étudiés ici). On utilise le même nombre de points (1000) pour chaque cas.

La Figure 6.1 représente les thermogrammes et les sensibilités réduites pour les différentes configurations étudiées. Les sensibilités réduites à la diffusivité thermique, à l'épaisseur optique et au nombre de Planck sont relativement élevées. La sensibilité réduite au coefficient de pertes thermiques augmente avec le temps quasi linéairement une fois le maximum du thermogramme atteint. La sensibilité réduite à l'émissivité interne est très faible et semble pouvoir être négligée ici (i.e., le paramètre est non pertinent). La sensibilité réduite à la densité de flux thermique surfacique \dot{Q}_0 correspond au thermogramme.

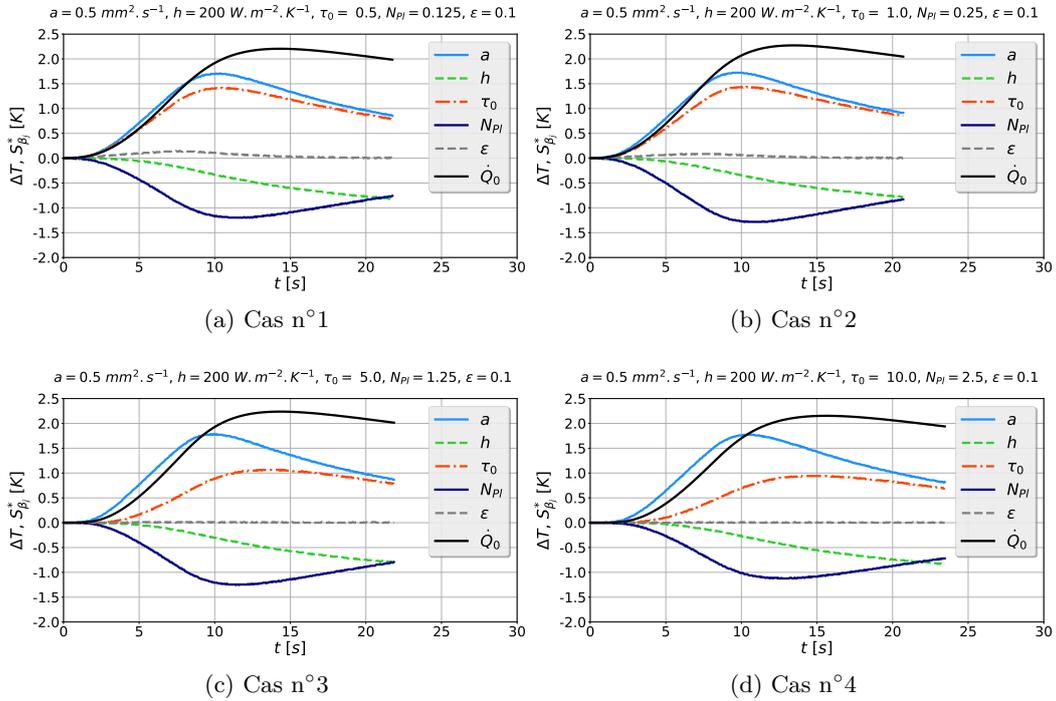


Fig. 6.1 Thermogrammes et sensibilités réduites associées avec $\boldsymbol{\beta} = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ \dot{Q}_0]^T$. La sensibilité réduite à la densité de flux thermique surfacique \dot{Q}_0 correspond au thermogramme.

Les éventuelles corrélations entre les paramètres peuvent être observées qualitativement sur la Figure 6.1. La diffusivité thermique, l'épaisseur optique et le nombre de Planck

semblent être corrélés dans les deux premiers cas (i.e., cas n°1 et 2). Pour les deux autres cas, il n'apparaît pas clairement de corrélation entre ces paramètres. Le coefficient de pertes thermiques et la densité de flux surfacique sont corrélés aux temps longs (i.e., pour $t \geq t_{\max}$).

La Figure 6.2 illustre la mise en évidence d'une combinaison linéaire des sensibilités réduites de la diffusivité thermique, de l'épaisseur optique et du nombre de Planck (cf. Equation 6.4).

$$\exists(a_1, a_2, a_3) \in \mathbb{R}^{*3} : S_a^* + a_1 S_{\tau_0}^* + a_2 S_{N_{Pl}}^* = 0 \quad (6.4)$$

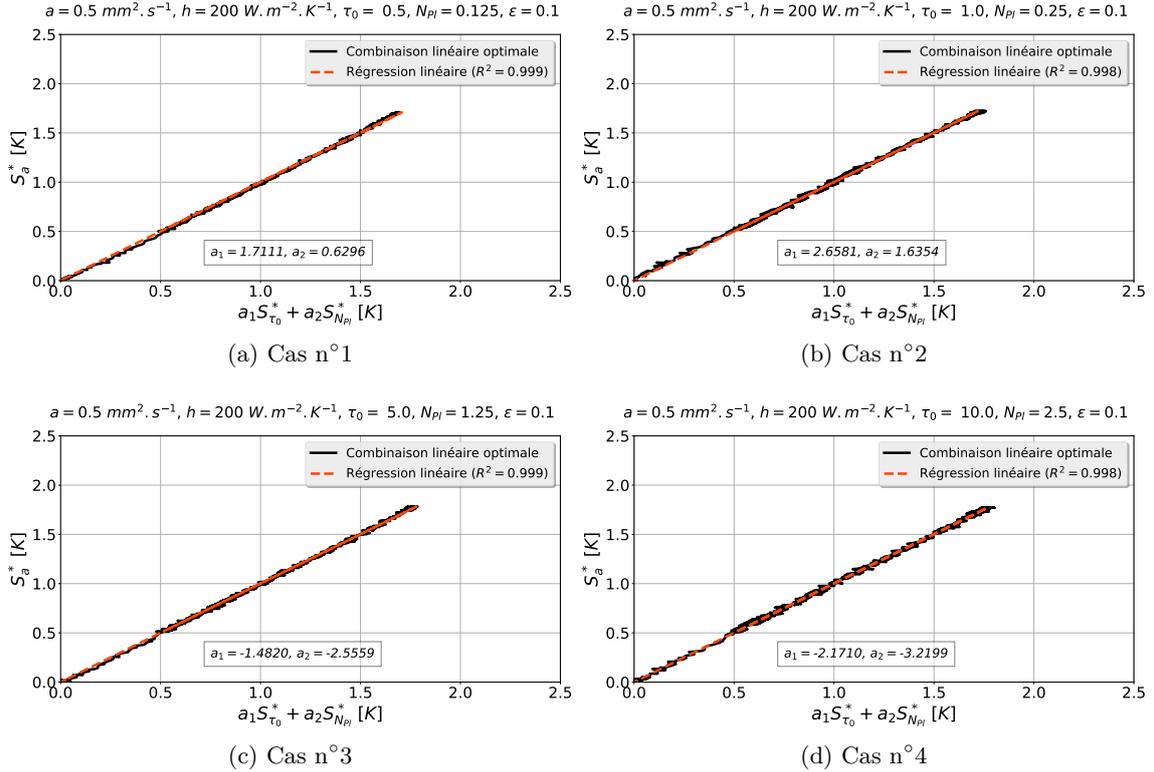


Fig. 6.2 Combinaisons linéaires entre les sensibilités réduites S_a^* , $S_{\tau_0}^*$ et $S_{N_{Pl}}^*$

Il apparaît donc que les sensibilités réduites de la diffusivité thermique, l'épaisseur optique et du nombre de Planck sont corrélées (i.e., information redondante). Ces trois paramètres ne pourront pas, *a priori*, être estimés simultanément.

L'existence d'une combinaison linéaire entre différentes sensibilités réduites démontre que certaines composantes de la matrice de sensibilité réduite ne sont pas linéairement indépendantes.

Les valeurs singulières des matrices de sensibilités réduites donnent également de précieux éléments quantitatifs. Celles-ci sont reportées dans la Table 6.2. Deux (voire trois) valeurs singulières ont des valeurs nettement inférieures aux autres. Cela nous laisse penser que le véritable degré de liberté du problème est proche de 4, et non 6.

6.3 Approche stochastique

L'incertitude relative liée à l'estimation associée à chaque paramètre ainsi que les corrélations entre les paramètres peuvent être visualisées de manière compacte à l'aide de la

Cas	Valeurs singulières					
	w ₁	w ₂	w ₃	w ₄	w ₅	w ₆
1	78,2936	11,1199	1,1912	0,3954	0,1500	0,1437
2	80,7697	10,4129	1,1619	0,2601	0,1456	0,1380
3	76,7071	11,3058	2,2909	0,1757	0,1581	0,1359
4	72,8918	11,8315	2,2282	0,1467	0,1370	0,1260

Tab. 6.2 Valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* avec $\boldsymbol{\beta} = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ \dot{Q}_0]^T$

matrice $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ calculée à partir de la matrice de sensibilité réduite. La diagonale de la matrice $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ correspond aux incertitudes relatives pour chaque paramètre et les termes hors diagonales correspondent aux facteurs de corrélation entre les paramètres (cf. Chapitre 3).

Les matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ sont calculées à partir des matrices de sensibilités réduites \mathbf{S}^* en considérant un écart-type sur le bruit $\sigma = 1$ K. Les incertitudes relatives seront données en pourcentage dans la suite du chapitre afin de faciliter la discussion sans pour autant obérer les conclusions de l'analyse. Les matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ obtenues pour chaque cas sont reportées dans la Table 6.3.

$\begin{bmatrix} 2,9547 & 0,3357 & 0,8891 & 0,1072 & 0,5427 & 0,4189 \\ & 3,2522 & 0,1804 & 0,8189 & 0,5036 & 0,9896 \\ & & 5,2776 & 0,2456 & 0,7399 & 0,2237 \\ & & & 5,522 & 0,0041 & 0,8446 \\ & & & & 3,6137 & 0,5022 \\ & & & & & 3,0421 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 3,2399 & 0,3464 & 0,8570 & 0,1072 & 0,7440 & 0,4144 \\ & 3,2368 & 0,1047 & 0,8109 & 0,0374 & 0,9905 \\ & & 5,4321 & 0,3368 & 0,4979 & 0,1299 \\ & & & 5,7932 & 0,0289 & 0,8421 \\ & & & & 4,7702 & 0,0354 \\ & & & & & 2,8913 \end{bmatrix}$
(a) Cas n°1	(b) Cas n°2
$\begin{bmatrix} 2,0028 & 0,2106 & 0,8705 & 0,7410 & 0,0108 & 0,1827 \\ & 4,2782 & 0,6329 & 0,4988 & 0,0989 & 0,9971 \\ & & 3,5829 & 0,3393 & 0,0103 & 0,6210 \\ & & & 5,8256 & 0,1042 & 0,5221 \\ & & & & 6,5109 & 0,0964 \\ & & & & & 3,9123 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1,9382 & 0,4657 & 0,9656 & 0,6568 & 0,0921 & 0,4650 \\ & 4,4357 & 0,6431 & 0,3602 & 0,0280 & 0,9976 \\ & & 4,9785 & 0,4711 & 0,0626 & 0,6506 \\ & & & 5,9412 & 0,0617 & 0,3598 \\ & & & & 7,8487 & 0,0229 \\ & & & & & 4,2218 \end{bmatrix}$
(c) Cas n°3	(d) Cas n°4

Tab. 6.3 Matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\boldsymbol{\beta}})$ calculées à partir des matrices de sensibilités réduites \mathbf{S}^* avec $\boldsymbol{\beta} = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ \dot{Q}_0]^T$. On représente uniquement les diagonales supérieures pour faciliter la lecture.

L'incertitude relative liée à la diffusivité thermique est comprise entre 1,9% et 3,2%. Les incertitudes liées à l'épaisseur optique et au nombre de Planck sont légèrement plus grandes et se situent entre 3,6% – 5,4% et 5,5% – 5,9%, respectivement. Le facteur de corrélation entre le coefficient de pertes thermiques et la densité de flux en face avant est supérieur à 0,99. Ces deux paramètres sont donc fortement corrélés.

Le processus de régularisation dans l'algorithme de Levenberg-Marquardt permet de diminuer l'incertitude relative pour chaque paramètre inconnu (cf. Chapitre 3). En effet, la matrice de variance-covariance (régularisée), notée $\text{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}_{\text{reg}})$, vaut :

$$\text{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}_{\text{reg}}) = \sigma^2 \left((\mathbf{S}^*)^T \mathbf{S}^* + \mu \mathbf{I} \right)^{-1} \quad (6.5)$$

On utilise ensuite la décomposition en valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite :

$$\mathbf{S}^* = \mathbf{U}\mathbf{W}\mathbf{V}^T \quad (6.6)$$

La matrice $\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}_{\text{reg}})$ s'écrit alors :

$$\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}_{\text{reg}}) = \sigma^2 \mathbf{V} (\mathbf{W}^2 + \mu \mathbf{I})^{-1} \mathbf{V}^T \quad (6.7)$$

On peut montrer que l'incertitude relative est une fonction monotone décroissante du paramètre d'amortissement.

La Figure 6.3 représente les incertitudes relatives des paramètres inconnus en fonction du paramètre d'amortissement. Les incertitudes relatives liées au nombre de Planck, au coefficient de pertes thermiques et à la densité de surface de flux en face avant diminuent d'un facteur 2 à 3 environ lorsque le paramètre d'amortissement augmente. La valeur minimale (seuil) est atteinte pour une valeur comprise entre 0,1 et 1.

La valeur du paramètre d'amortissement pour laquelle on observe une diminution de l'incertitude relative d'un (ou plusieurs) paramètre(s) est liée au rapport entre le carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* et le paramètre d'amortissement μ (cf. Figure 6.4).

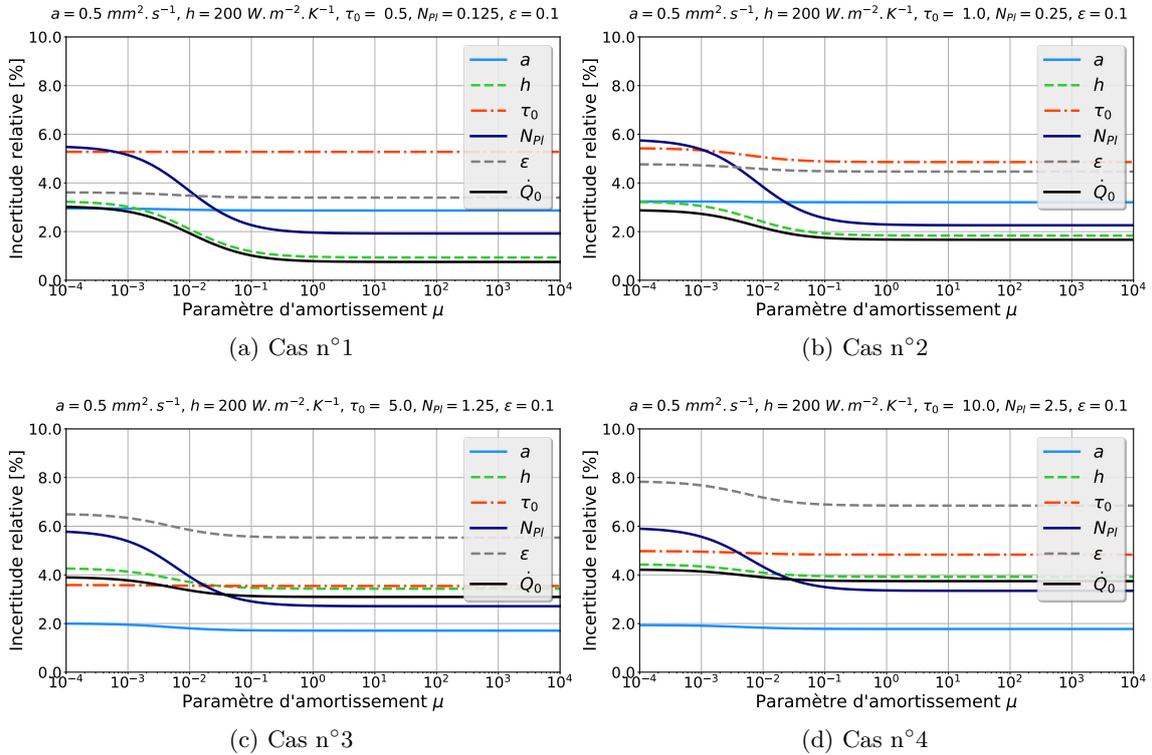


Fig. 6.3 Incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\mathbf{cov}(\hat{\boldsymbol{\beta}}_{\text{reg}})$ en fonction du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-

Marquardt avec $\boldsymbol{\beta} = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \epsilon \ \dot{Q}_0]^T$

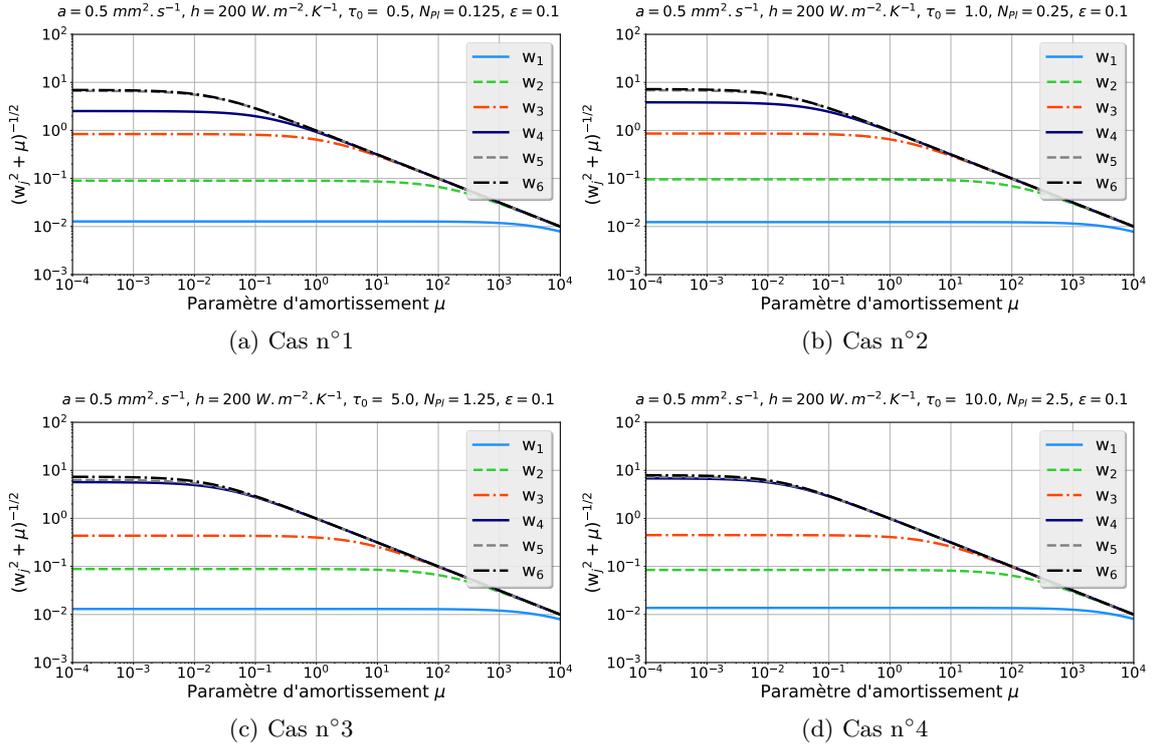


Fig. 6.4 Influence du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ \dot{Q}_0]^T$

6.4 Réduction du nombre de paramètres

Pour tous les cas étudiés ici, deux (voire trois) valeurs singulières sont de faibles valeurs, il faut donc enlever au moins deux paramètres. La sensibilité réduite à l'émissivité interne des parois est quasi nulle (i.e., le paramètre est non pertinent), le paramètre sera donc fixé à la valeur nominale dans la suite de l'étude. La corrélation entre la diffusivité thermique, l'épaisseur optique et le nombre de Planck signifie que la diffusivité thermique et la conductivité thermique ne pourront être estimées simultanément. On choisit donc de fixer la valeur de la capacité thermique à la valeur nominale dans la suite de l'étude (i.e., $\rho c = 4 \text{ MJ m}^{-3} \text{ K}^{-1}$)[†].

On réduit donc le jeu de paramètres à quatre paramètres : la diffusivité thermique (ou la conductivité thermique), le coefficient de pertes thermiques, l'épaisseur optique (ou le coefficient d'absorption) et la densité de flux en face avant. On a donc le vecteur de paramètres suivant : $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$.

Une nouvelle étude de sensibilité est menée en gardant les mêmes valeurs nominales pour les paramètres (cf. Table 6.1). La Figure 6.5 représente les thermogrammes et les sensibilités réduites pour les différentes configurations étudiées. Les sensibilités réduites à la diffusivité thermique et à l'épaisseur optique sont ici plus faibles (i.e., d'un facteur 3 environ sur la maximum) que précédemment. La sensibilité réduite au coefficient de pertes thermiques augmente avec le temps quasi linéairement une fois le maximum du thermogramme atteint. La sensibilité réduite à la densité de flux thermique surfacique \dot{Q}_0 correspond au thermo-

[†]En pratique, la capacité thermique peut être mesurée par calorimétrie [127–134].

gramme. Les sensibilités réduites à la diffusivité thermique et à l'épaisseur optique semblent corrélées.

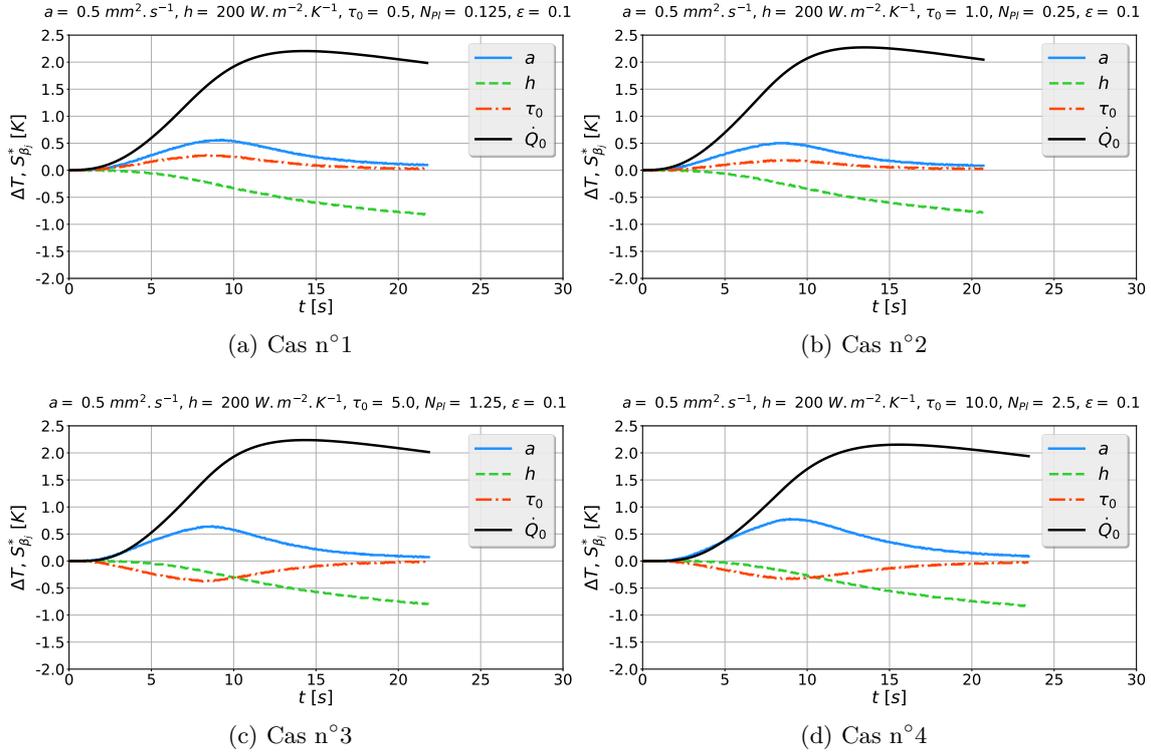


Fig. 6.5 Thermogrammes et sensibilités réduites associées avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$. La sensibilité réduite à la densité de flux thermique surfacique \dot{Q}_0 correspond au thermogramme.

Les valeurs singulières des matrices de sensibilités réduites sont reportées dans la Table 6.4. Il n'y a ici plus qu'une seule valeur singulière nettement inférieure aux autres.

Cas	Valeurs singulières			
	w ₁	w ₂	w ₃	w ₄
1	56,1722	7,6292	1,2714	0,2375
2	57,4624	6,8982	1,2955	0,1854
3	56,5296	9,3481	1,8034	0,2216
4	54,9059	10,2357	1,7758	0,1520

Tab. 6.4 Valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$

Les matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ obtenues pour chaque cas sont reportées dans la Table 6.5. Le facteur de corrélation entre la diffusivité thermique et l'épaisseur optique est supérieur à 0,96 (voire 0,99), confirmant l'impression de forte corrélation entre ces deux paramètres (cf. Figure 6.5). Néanmoins, les incertitudes relatives liées à la diffusivité thermique et à l'épaisseur optique n'ont pas sensiblement varié par rapport à l'étude initiale avec six paramètres (i.e., elles se situent entre 1,8% – 2,7% et 3,5% – 6,0%, respectivement).

La Figure 6.6 représente les incertitudes relatives des paramètres inconnus en fonction du paramètre d'amortissement de l'algorithme de Levenberg-Marquardt. Les incertitudes relatives liées à la diffusivité thermique et à l'épaisseur optique diminuent très nettement

$\begin{bmatrix} 2,3463 & 0,7540 & 0,9745 & 0,8440 \\ & 0,8304 & 0,6005 & 0,9849 \\ & & 3,4703 & 0,7086 \\ & & & 0,3625 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1,8311 & 0,0312 & 0,9641 & 0,1066 \\ & 0,6132 & 0,2152 & 0,9872 \\ & & 5,0932 & 0,1501 \\ & & & 0,2104 \end{bmatrix}$
(a) Cas n°1	(b) Cas n°2
$\begin{bmatrix} 2,5205 & 0,5785 & 0,9930 & 0,7774 \\ & 0,5652 & 0,4909 & 0,9555 \\ & & 3,7362 & 0,7042 \\ & & & 0,2361 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 2,7129 & 0,2989 & 0,9955 & 0,5164 \\ & 0,5032 & 0,2179 & 0,9609 \\ & & 5,9979 & 0,4391 \\ & & & 0,2042 \end{bmatrix}$
(c) Cas n°3	(d) Cas n°4

Tab. 6.5 Matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ calculées à partir des matrices de sensibilités réduites \mathbf{S}^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$. On représente uniquement les diagonales supérieures pour faciliter la lecture.

(i.e., d'un facteur compris entre 5 et 20) lorsque le paramètre d'amortissement augmente. La valeur minimale (seuil) est variable suivant les cas et se situe entre 1 et 10.

La Figure 6.7 représente l'influence du paramètre d'amortissement μ et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$.

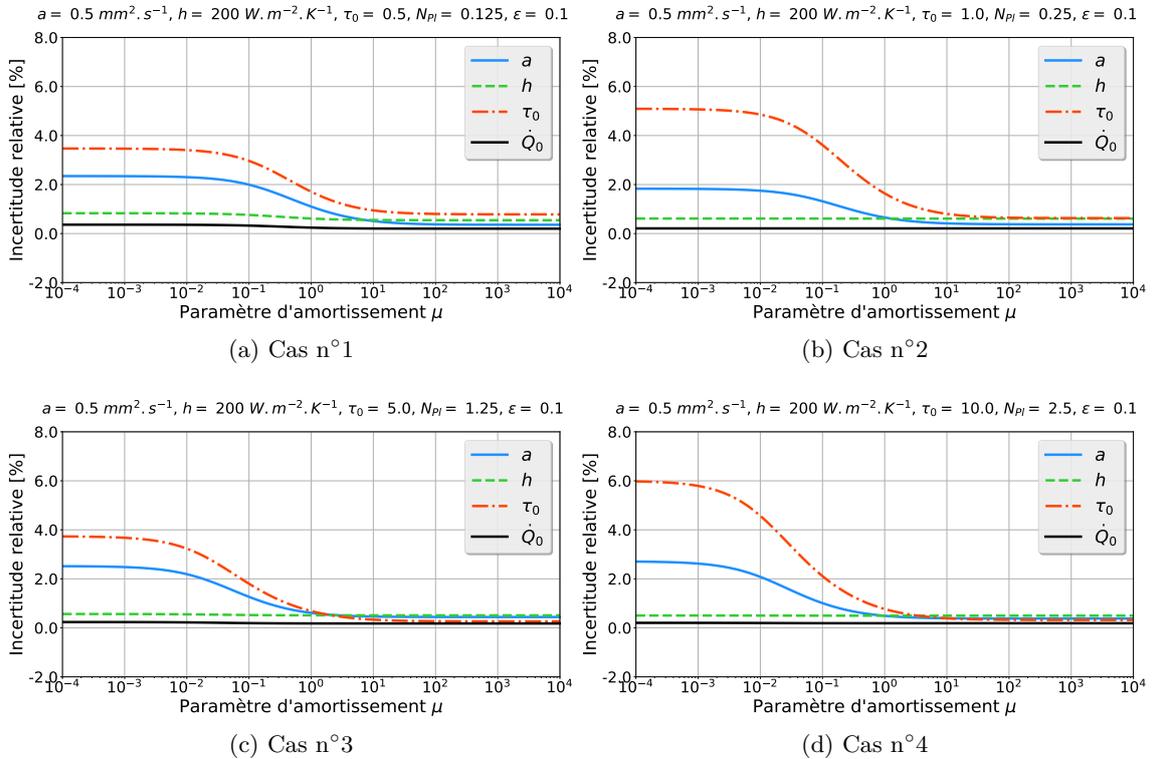


Fig. 6.6 Incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ en fonction du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$

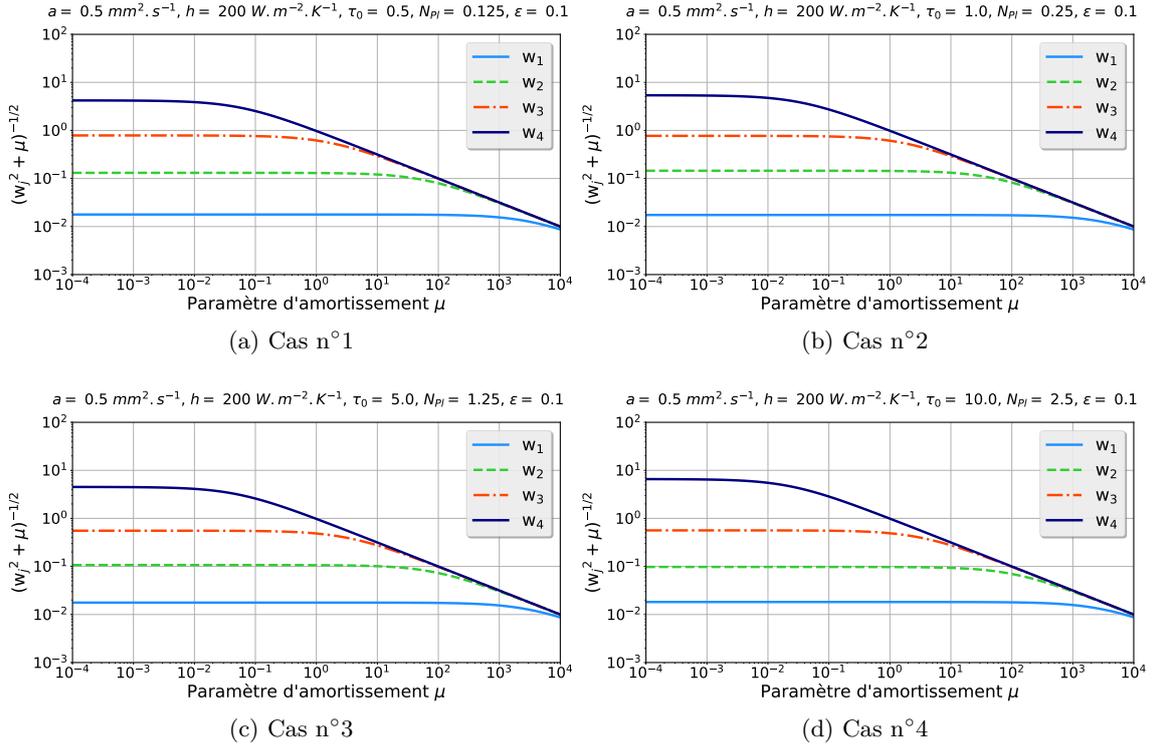


Fig. 6.7 Influence du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite \mathbf{S}^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ \dot{Q}_0]^T$

6.5 Estimations à partir de signaux synthétiques (Monte Carlo)

L'objectif est ici de vérifier la pertinence de notre approche, notamment au niveau du choix de la réduction du nombre de paramètres et de travailler à partir de thermogrammes réduits. On souhaite ainsi vérifier que l'erreur relative prédite par l'étude théorique stochastique est proche de celle obtenue lors d'estimations réalisées à partir de signaux synthétiques bruités (approche statistique de type Monte Carlo).

Les signaux synthétiques utilisés pour l'estimation des paramètres sont obtenus à l'aide du modèle direct conducto-radiatif. Ces signaux synthétiques sont ensuite « bruités » avec un bruit blanc aléatoire ($\sigma_{\text{bruit}} = 1\%$). 100 signaux synthétiques bruités sont ainsi générés pour chaque cas étudié (cf. Table 6.1).

Les valeurs initiales des paramètres sont choisies par un tirage aléatoire à $\pm 10\%$ des valeurs nominales (sauf pour K). L'intervalle de temps choisi pour réaliser l'estimation des paramètres correspond au thermogramme coupé à 90% de son maximum (une fois le maximum du thermogramme atteint). On utilise le même nombre de points (1000) que lors de l'étude de sensibilité menée précédemment. On calcule ensuite les erreurs relatives liées aux valeurs des paramètres estimés pour chaque cas.

Le modèle direct conducto-radiatif est couplé à un algorithme de Levenberg-Marquardt implémenté dans Matlab R2014 [95] (cf. Chapitre 3).

On présente ci-dessous les résultats obtenus à partir de signaux synthétiques non bruités et bruités.

6.5.1 Signaux synthétiques non bruités

La Figure 6.8 représente des exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques non bruités. Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre de 10^{-5}).

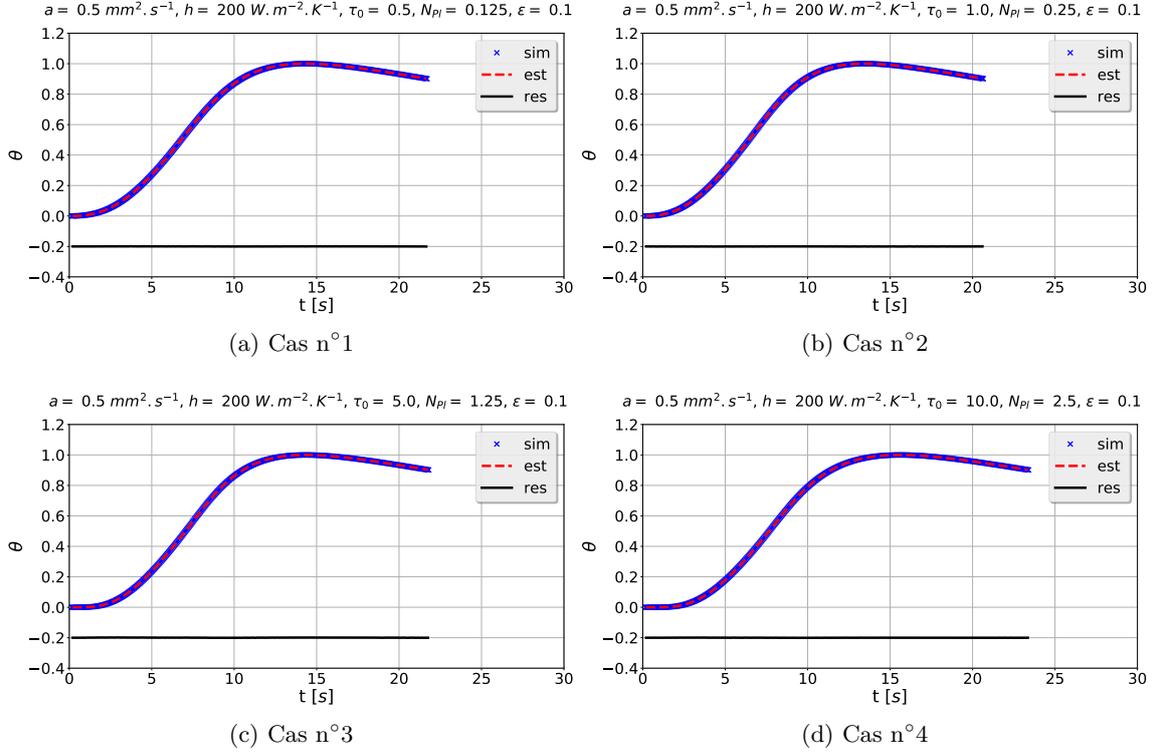


Fig. 6.8 Exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques non bruités. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture.

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table 6.6. Les erreurs relatives entre les estimations et les valeurs nominales (exactes) des paramètres sont indiquées entre parenthèses.

Cas	Paramètres				
		a [$\text{mm}^2 \text{s}^{-1}$]	h [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]	τ_0 [-]	K [-]
1	valeur exacte	0,5000	200,0	0,5000	1,000
	valeur estimée	0,4972 (-0,56%)	200,3 (0,14%)	0,5041 (0,83%)	1,000 (0,00%)
2	valeur exacte	0,5000	200,0	1,000	1,000
	valeur estimée	0,4977 (-0,46%)	200,0 (-0,02%)	1,013 (1,32%)	1,000 (0,00%)
3	valeur exacte	0,5000	200,0	5,000	1,000
	valeur estimée	0,4931 (-1,38%)	200,3 (0,17%)	4,899 (2,01%)	1,000 (0,01%)
4	valeur exacte	0,5000	200,0	10,00	1,000
	valeur estimée	0,4922 (-1,57%)	200,1 (0,06%)	9,664 (-3,36%)	1,000 (0,00%)

Tab. 6.6 Valeurs des paramètres estimés à partir de signaux synthétiques non bruités

Les valeurs de diffusivité thermique estimées sont proches de la valeur exacte (i.e., les erreurs relatives sont inférieures à 1,6%, voire 0,6% pour les épaisseurs optiques inférieures ou égales à 1). L'épaisseur optique est moins bien estimée : les erreurs relatives se situent entre 0,8% – 3,4% et augmentent avec l'épaisseur optique. Le paramètre d'amplitude K est très bien estimé dans tous les cas ici (i.e., erreur relative quasi nulle) indiquant que la normalisation des thermogrammes est bonne.

Les erreurs relatives observées sur les valeurs estimées de la diffusivité thermique et de l'épaisseur optique sont liées, en partie, à la régularisation dans l'algorithme de Levenberg-Marquardt. En effet, le paramètre d'amortissement n'est pas nécessairement de faible valeur (voire nul) à convergence (cf. Figure 6.9) compte tenu du mauvais conditionnement de la matrice d'information.

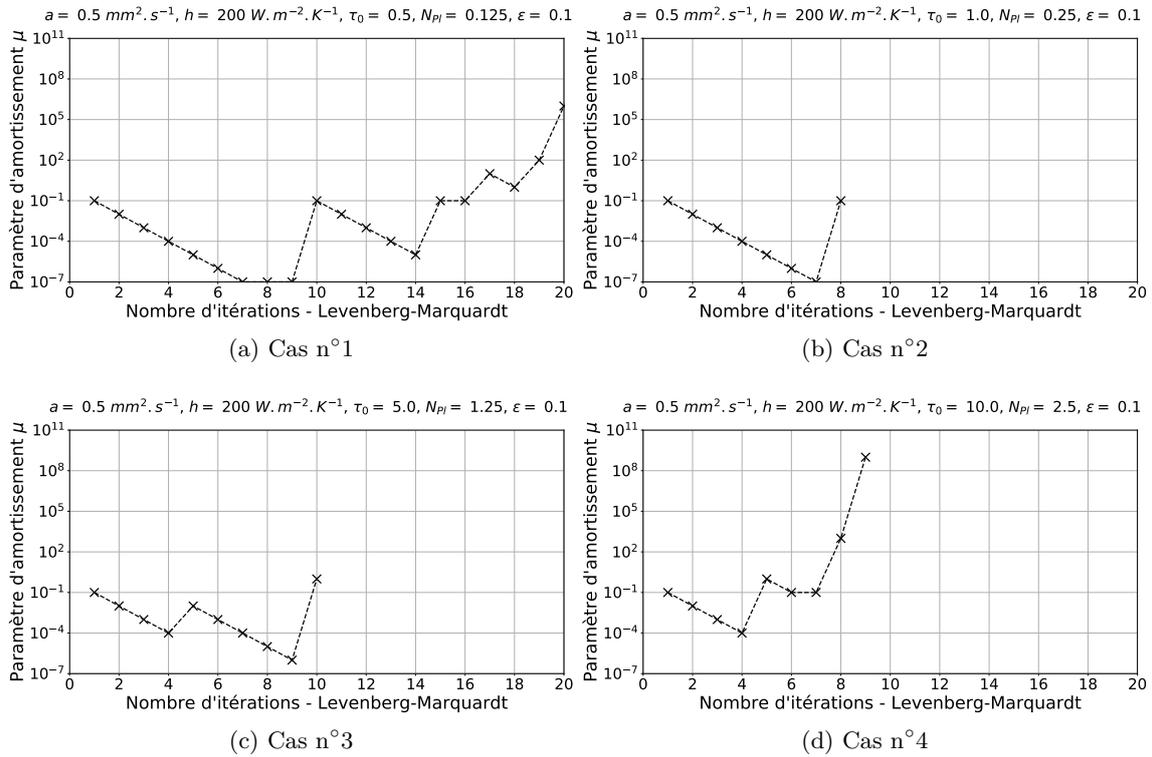


Fig. 6.9 Valeur du paramètre d'amortissement au cours des itérations de l'algorithme de Levenberg-Marquardt – Exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques non bruités.

6.5.2 Signaux synthétiques bruités

La Figure 6.10 représente des exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques bruités. Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de faibles valeurs (i.e., $\sigma_{\text{res}} \approx \sigma_{\text{bruit}}$).

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table 6.7. Les valeurs moyennes et les incertitudes relatives issues des 100 estimations sont reportées pour chaque cas. Par ailleurs, les erreurs relatives entre les moyennes des valeurs estimées et les valeurs nominales (exactes) des paramètres sont indiquées entre parenthèses. La Figure 6.11 représente les diagrammes en boîte des erreurs relatives des paramètres estimés.

Les valeurs de diffusivité thermique estimées sont proches de la valeur exacte (i.e., les erreurs relatives sont inférieures à 1,5%). L'épaisseur optique est moins bien estimée, les erreurs relatives sont de l'ordre de quelques pourcents (i.e., entre 1,1% et 3,3%). Le paramètre

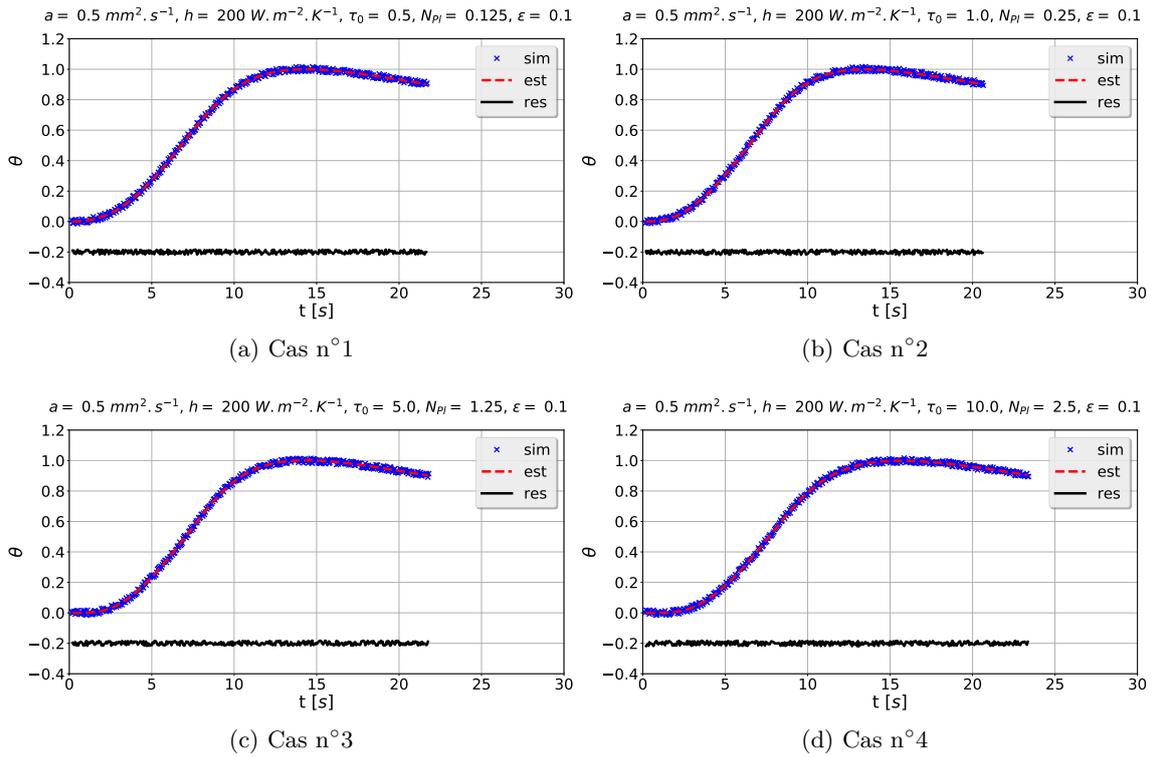


Fig. 6.10 Exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques bruités. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture.

Cas	Paramètres				
		a [$\text{mm}^2 \text{s}^{-1}$]	h [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]	τ_0 [-]	K [-]
1	valeur exacte	0,5000	200,0	0,5000	1,000
	valeur estimée	$0,4939 \pm 2,98\%$ (-1,23%)	$200,8 \pm 2,29\%$ (0,41%)	$0,5085 \pm 3,83\%$ (1,69%)	$1,000 \pm 0,09\%$ (0,01%)
2	valeur exacte	0,5000	200,0	1,000	1,000
	valeur estimée	$0,4988 \pm 2,42\%$ (-0,24%)	$199,8 \pm 2,13\%$ (-0,08%)	$1,010 \pm 5,41\%$ (1,05%)	$1,000 \pm 0,10\%$ (0,00%)
3	valeur exacte	0,5000	200,0	5,000	1,000
	valeur estimée	$0,4918 \pm 3,73\%$ (-1,64%)	$200,8 \pm 1,75\%$ (0,39%)	$4,891 \pm 5,11\%$ (-2,17%)	$1,000 \pm 0,08\%$ (0,01%)
4	valeur exacte	0,5000	200,0	10,00	1,000
	valeur estimée	$0,4926 \pm 2,49\%$ (-1,47%)	$199,6 \pm 1,66\%$ (-0,21%)	$9,673 \pm 4,95\%$ (-3,27%)	$1,000 \pm 0,08\%$ (-0,01%)

Tab. 6.7 Valeurs des paramètres estimés à partir de signaux synthétiques bruités

d'amplitude K est très bien estimé dans tous les cas ici (i.e., l'erreur relative est inférieure à 0,10%) indiquant que la normalisation des thermogrammes est bonne.

Néanmoins, on notera que l'incertitude relative liées aux paramètres estimés est supérieure à l'erreur relative calculée entre la valeur moyenne estimée et la valeur exacte (i.e.,

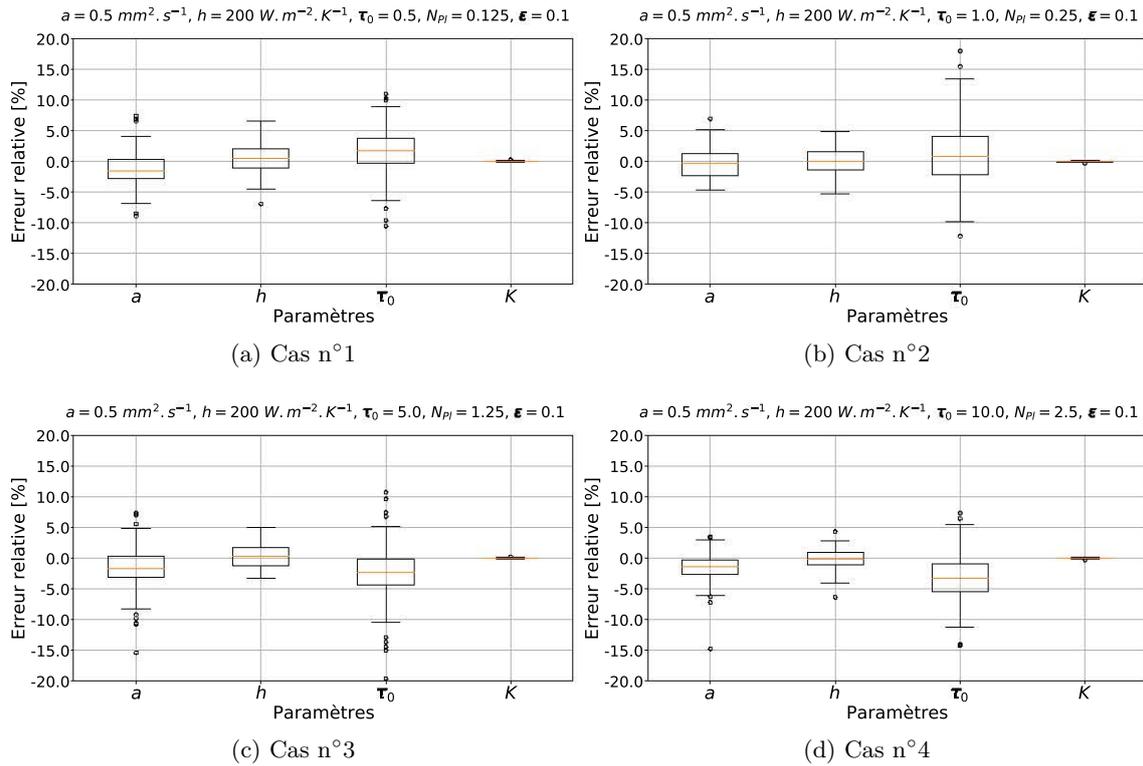


Fig. 6.11 Erreurs relatives des paramètres estimés à partir de signaux synthétiques bruités (diagramme en boîte)

l'incertitude relative se situe entre 2,5% – 3,7% et 3,8% – 5,1% pour la diffusivité thermique et l'épaisseur optique, respectivement).

La qualité des estimations réalisées ici peut sembler surprenante compte tenu des fortes corrélations observées lors de l'étude de sensibilité indiquant que le problème était mal posé. Ces bons résultats peuvent être attribués à la régularisation dans l'algorithme de Levenberg-Marquardt. En effet, le paramètre d'amortissement n'est pas nécessairement de faible valeur (voire nul) à convergence : sa valeur est comprise entre 10^5 et 10^{12} pour les exemples présentés ici (cf. Figure 6.12).

6.6 Conclusion

Le modèle direct conducto-radiatif avec l'approximation P_1 a permis d'étudier l'identifiabilité des paramètres inconnus du problème à l'aide d'une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique. L'estimation des paramètres à partir de signaux synthétiques démontre la possibilité d'estimer simultanément la diffusivité thermique et un coefficient d'absorption moyen (gris) pour ce type de matériaux avec une méthode pulsée de type flash.

On notera que la méthode développée ne requiert aucune information *a priori* sur le coefficient d'absorption du matériau que l'on souhaite caractériser. Il nous faut maintenant valider la pertinence de notre approche sur des estimations réalisées à partir de thermogrammes expérimentaux obtenus pour des liquides silicatés présentant des propriétés radiatives différentes (i.e., pour des milieux d'épaisseurs optiques différentes).

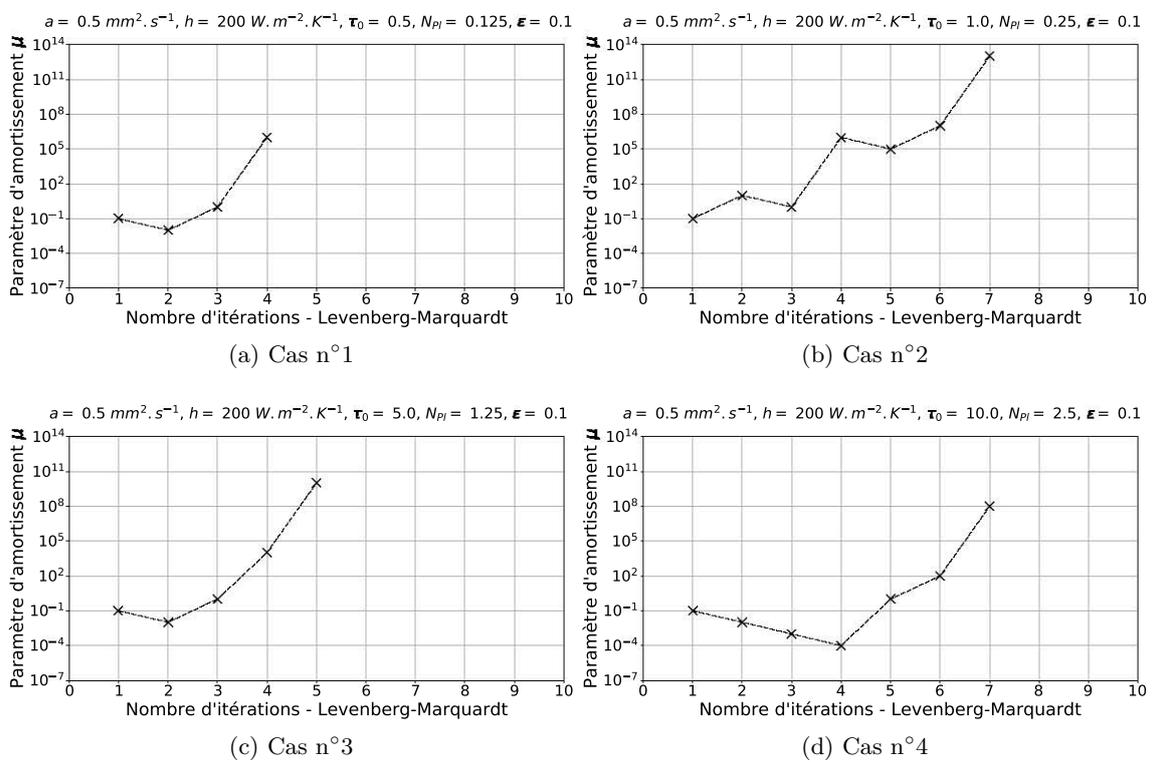


Fig. 6.12 Valeur du paramètre d'amortissement au cours des itérations de l'algorithme de Levenberg-Marquardt – Exemples d'estimations à partir de signaux synthétiques bruités.

Troisième partie

Etude expérimentale

7.1 Introduction

Le dispositif expérimental a été développé au LEMTA dans le cadre de la thèse de Youssef Souhar [135] (cf. Figure 7.1). Il permet d'estimer les diffusivités thermiques de matériaux solides anisotropes [136]. Ces échantillons se présentent sous la forme de plaques parallélépipédiques de 40 mm de longueur et de largeur et de quelques millimètres d'épaisseur. Ils sont placés dans un porte-échantillon cylindrique creux en stumatite (cf. Figure 7.2), lui-même placé au sein d'un four tubulaire à haute température dans lequel on peut contrôler l'atmosphère.

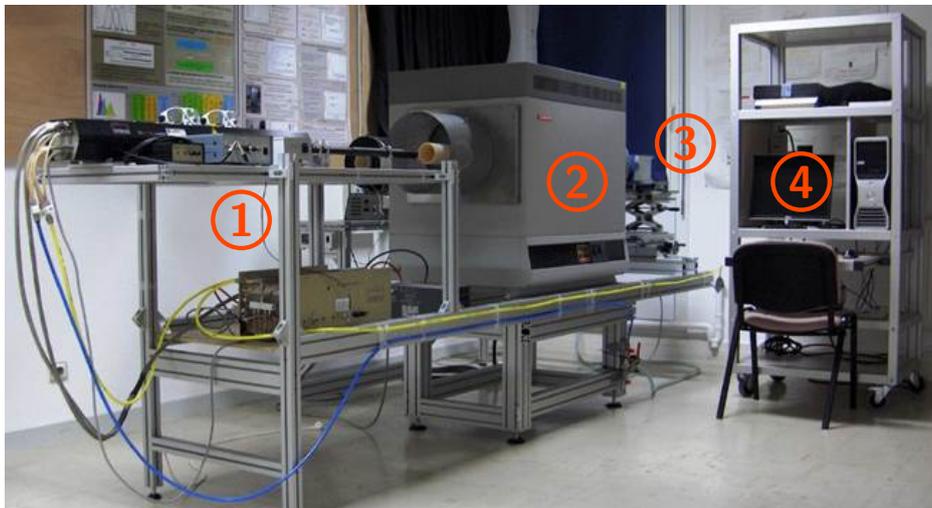


Fig. 7.1 Vue du dispositif expérimental : ① Laser CO₂ continu et instruments de contrôle ; ② Four tubulaire à haute température ; ③ Détecteur infrarouge et ④ Système d'acquisition et de traitement.

La caractérisation thermique des liquides silicatés nécessite un contenant (i.e., une cellule de mesure). La principale difficulté est de concevoir une cellule de mesure stable chimiquement et mécaniquement à haute température sans toutefois obérer l'estimation des propriétés thermiques des liquides silicatés. La cellule de mesure utilisée dans nos travaux a été déve-



Fig. 7.2 Ensemble échantillon et support en stumatite démonté (à gauche) et assemblé (à droite)

loppée pendant le post-doc de Vincent Schick [4, 5].

Dans ce chapitre, nous allons présenter le dispositif de mesure développé en détaillant plus particulièrement le dimensionnement de la cellule de mesure. Le protocole expérimental sera détaillé dans une dernière section.

7.2 Description du banc de mesure

7.2.1 Laser CO₂ continu

La source de chaleur utilisée pour exciter l'échantillon est un laser CO₂ continu de classe IV d'une puissance de 130 W et émettant dans le domaine infrarouge à une longueur d'onde de 10,6 μm (modèle SYNRAD 57-1, cf. Figure 7.3). On utilise le laser en mode créneau unique à sa puissance maximum. On modifie la quantité d'énergie déposée en faisant varier la durée de l'excitation (i.e., de quelques millisecondes à 7 secondes environ). La variation de la durée d'excitation se fait par le biais d'un variateur étalonné. La précision sur la durée d'impulsion est ainsi très bonne.



Fig. 7.3 Laser CO₂ continu de classe IV (130 W)

7.2.2 Four tubulaire

Le four tubulaire à haute température à trois zones (modèle Carbolite TZF 18/600, cf. Figure 7.4) a une longueur chauffée de 600 mm et peut atteindre une température maximale de 1800 °C. Une zone uniforme étendue dans la section médiane (i.e., une zone où la température est uniforme à ± 5 K) est obtenue avec l'utilisation de contrôleurs de zone d'extrémité qui compensent les pertes de chaleur aux extrémités. Par ailleurs, le four tubulaire présente une très bonne stabilité en température compte tenu de sa forte inertie et des régulations utilisées.



Fig. 7.4 Four tubulaire à haute température

Des accès optiques (cf. Figure 7.5) sont placés de part et d'autre du four pour permettre à la source laser d'exciter l'échantillon sur la face avant et mesurer la température sur la face arrière à l'aide d'une caméra infrarouge refroidie. Des hublots/fenêtres en séléniure de zinc (ZnSe) puis en saphir ont été utilisés. Ces matériaux ont une large fenêtre de transparence dans le domaine de l'infrarouge. La principale différence entre ces deux matériaux est d'ordre pratique : les fenêtres en ZnSe présentent des détériorations irréversibles (cristallisation en surface) lors des essais à haute température et doivent donc être changées avant chaque campagne de mesures ; les fenêtres en saphir peuvent se voiler légèrement à haute température mais elles peuvent ensuite être nettoyées facilement.

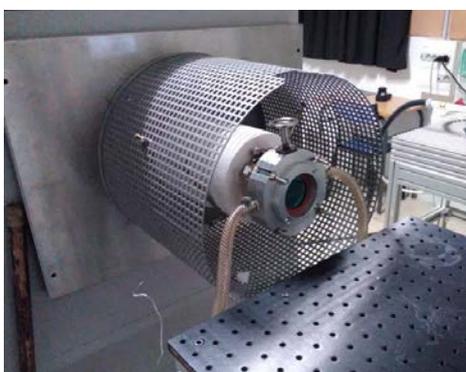


Fig. 7.5 Hublot à l'entrée du four tubulaire à haute température

7.2.3 Caméra infrarouge

La température sur la face arrière de la cellule est mesurée à l'aide d'une caméra infrarouge matricielle (640×512 pixels) refroidie munie d'un détecteur en antimoniure d'indium (InSb) à gamme spectrale élargie sensible pour les longueurs d'ondes comprises entre 1,5 et $5,1 \mu\text{m}$ (modèle Cedip/FLIR Titanium).

La caméra est placée en face du hublot en sortie du four tubulaire afin de viser la face arrière de la cellule de mesure placée au centre du four (cf. Figure 7.6). On utilise un objectif de 100 mm grandes longueurs d'ondes ($1,5 - 5,1 \mu\text{m}$) muni d'une bague-allonge de 5 mm afin d'avoir une bonne résolution compte tenu de la distance entre la caméra et la cellule de mesure (environ 1 m). Cette distance est nécessaire pour ne pas endommager la caméra lors des mesures à haute température.

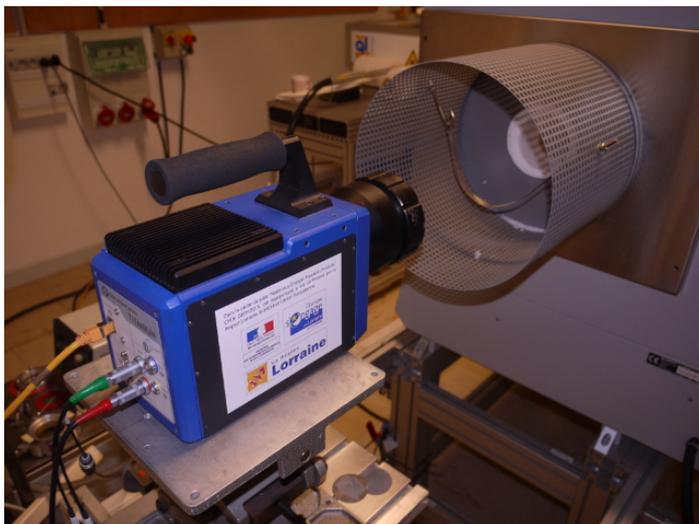


Fig. 7.6 Caméra infrarouge matricielle refroidie placée à la sortie du four tubulaire

Pour les mesures à haute température (i.e., pour les températures supérieures à 1000°C), on utilise un filtre monochromatique à une longueur d'onde de $2,35 \mu\text{m}$ afin de (i) réduire les radiations reçues par le détecteur pour éviter qu'il ne sature et (ii) gagner en sensibilité (i.e., avoir une variation du signal plus forte pour un même écart de température). Le temps d'intégration de la caméra est réglable de $1 \mu\text{s}$ à 20 ms. La température équivalente à un niveau de bruit (ou NETD, de l'anglais : *Noise Equivalent Temperature Difference*) est inférieure à 25 mK à température ambiante.

Le détecteur est refroidi à une température absolue d'environ 77 K par un compresseur à cycle de Stirling. On notera que la boucle de régulation de la température du compresseur à cycle de Stirling génère un bruit parasite [135].

7.3 Cellule de mesure pour les liquides à haute température

7.3.1 Géométrie

La cellule de mesure est de géométrie parallélépipédique ($40 \times 40 \times 6 \text{ mm}^3$) avec une ouverture sur le dessus (cf. Figure 7.7). Les parois sont épaisses de 1 mm, ce qui permet d'avoir un volume utilisable pour le liquide de $38 \times 39 \times 4 \text{ mm}^3$. On notera également la présence sur le pourtour supérieur de la cellule d'un fil de 1,5 mm de diamètre afin d'éviter le débordement du liquide par capillarité à haute température.



Fig. 7.7 Vue de la cellule de mesure

Le choix des dimensions de la cellule repose sur (*i*) des contraintes géométriques liées aux dimensions du tube du four (le diamètre interne est de 75 mm), (*ii*) le choix d'un rapport d'aspect le plus optimal pour négliger la convection naturelle (cf. Chapitre 5) et (*iii*) l'optimisation de l'épaisseur des parois pour minimiser l'incertitude relative liée à l'estimation des propriétés thermiques (i.e., diffusivité thermique et conductivité thermique) des liquides silicatés (cf. Annexe C).

7.3.2 Choix du matériau

Le matériau choisi pour la cellule de mesure est un alliage de platine rhodié à 10% (Pt/Rh 10%) FKS de la société Ögussa. Les alliages de platine sont ceux qui présentent le plus d'intérêt pour réaliser ces mesures. En effet, c'est un alliage opaque, résistant à l'oxydation et inerte vis-à-vis des liquides silicatés à haute température. Cet alliage particulier, à 10% de rhodium, présente l'avantage d'une bonne tenue mécanique jusqu'à 1700 °C. La cellule est constituée de plaques de Pt/Rh 10% assemblées par soudure laser afin d'assurer un bon contact thermique.

Le platine rhodié présente cependant une faible émissivité (i.e., elle est comprise en 0,1 et 0,2 [137]). On a donc recouvert les faces externes d'environ 0,5 μm de titane déposé par pulvérisation cathodique à l'Institut Jean Lamour (IJL). Un traitement thermique (12 h à 1300 °C sous atmosphère ambiante) permet ensuite de passer le titane en oxyde de titane (cf. Figure 7.8). Cette couche d'oxyde de titane permet d'augmenter l'émissivité des faces externes et d'améliorer ainsi le rapport signal sur bruit.

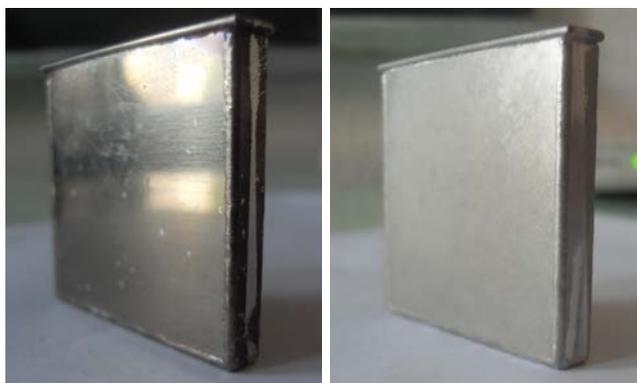


Fig. 7.8 Vue de la cellule de mesure en Pt/Rh 10% avant (à gauche) et après (à droite) le dépôt d'un revêtement en titane

7.3.3 Validation de la cellule de mesure

Afin de valider le modèle direct conductif tridimensionnel et la géométrie de la cellule de mesure, des essais ont été réalisés à température ambiante sur un fluide de référence et sur un banc de mesure simplifié [4, 5]. Le fluide de référence est l'eau gélifiée (ajout de 0,15 %m de Carbopol®) car ce fluide présente une forte viscosité (i.e., la convection naturelle peut être négligée) tout en conservant les propriétés thermiques de l'eau pure. On renvoie le lecteur aux références [4, 5] pour plus de détails sur les mesures.

La valeur estimée moyenne de la conductivité thermique est de $0,615 \pm 0,015 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ à 25 °C, soit un écart de 1,3 % avec les données de la littérature [138]. Ces résultats valident donc la cellule de mesure développée pour les liquides.

7.4 Protocole de mesure

7.4.1 Remplissage de la cellule de mesure

Les échantillons de verre se présentent sous la forme de plaques ou bien de calcin. On remplit la cellule de mesure avec l'échantillon que l'on souhaite caractériser. Puis on place la cellule de mesure dans un four à moufle que l'on porte à une température d'environ 1000 °C pendant quelques heures. On répète l'opération autant de fois que nécessaire pour avoir une cellule remplie entièrement.

7.4.2 Positionnement de la cellule de mesure

La cellule de mesure, une fois qu'elle contient l'échantillon que l'on souhaite caractériser, est insérée dans un support cylindrique creux en stumatite (cf. Figure 7.2) qui est ensuite placé dans la zone centrale du four tubulaire.

On positionne la cellule de mesure de sorte que la tâche du faisceau laser impacte au centre de celle-ci.

7.4.3 Mesures à haute température

On démarre alors le four tubulaire et une première montée en température à 600 °C est réalisée suivie d'une stabilisation pendant 12 h. Une nouvelle montée est ensuite réalisée jusqu'à une température comprise entre 1000 et 1400 °C suivant les échantillons suivie d'une stabilisation de 6 h environ. On enchaîne ensuite les points de mesure tous les 50 K, chaque point étant espacé d'environ 1,5 h.

Pour les échantillons étudiés dans nos travaux, on a couvert une gamme de températures comprises entre 1000 et 1400 °C. Ces températures correspondent à la température de liquidus et à la température de rebullage du verre, respectivement.

Une fois la température de consigne atteinte, on peut démarrer la source laser pour exciter la face avant de la cellule de mesure. L'excitation laser a un profil géométrique gaussien, la tache est au milieu de la face éclairée, son rayon est d'environ 2,3 mm à 13%, pour une puissance de faisceau de 130 W.

La température est mesurée en face arrière à l'aide de la caméra infrarouge refroidie. Elle est moyennée sur toute cette surface. L'acquisition du thermogramme commence lorsque débute l'excitation de la source laser (d'une durée de quelques secondes), puis se termine lorsque la température en face arrière diminue (passage sous les 90% de la température maximale).

Plusieurs acquisitions sont effectuées avec des durées d'excitation comprises entre 3 et 6,8 s (on considère l'excitation ayant la forme d'un créneau). La durée optimale de l'excitation

est 6,8s. En effet, cette durée d'excitation permet d'obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant.

On notera que les essais sont réalisés à haute température sous atmosphère ambiante. Il y a donc possibilité d'oxydation des échantillons au cours des essais.

Chaque campagne d'essai dure environ trois à cinq jours suivant le nombre de points de mesures (i.e., le nombre de thermogrammes) réalisés.

7.4.4 Nettoyage de la cellule de mesure

Une fois la campagne de mesure terminée, les creusets sont nettoyés avec de l'acide fluorhydrique (HF). Les dépôts de titane doivent ensuite être refaits.

Par ailleurs, après plusieurs campagnes de mesures (typiquement deux ou trois), les cellules de mesure peuvent présenter des déformations. Il faut alors renvoyer l'alliage de platine rhodié au fournisseur et refaire des cellules neuves.

Nous disposons de deux cellules de mesure que l'on peut utiliser alternativement.

7.5 Conclusion

Le dispositif expérimental mis en place au laboratoire pour la caractérisation des propriétés thermiques des matériaux solides anisotropes à haute température a été complété afin de caractériser des liquides.

La conception de la cellule de mesure est un point clef. Celle-ci a été validée par des mesures réalisées à température ambiante sur un fluide de référence (eau gélifiée). Le très bon accord obtenu entre les valeurs estimées de la conductivité thermique et des valeurs de la littérature nous permet de valider notre cellule.

Le chapitre suivant sera dédié à l'exploitation de thermogrammes expérimentaux réalisés à haute température sur des échantillons de verres de compositions différentes. On pourra ainsi valider la pertinence de la méthode proposée.

8.1 Introduction

Dans le Chapitre 6, nous avons démontré, théoriquement, la possibilité d'estimer simultanément la diffusivité thermique et un coefficient d'absorption moyen (gris) de matériaux semi-transparents émettant, absorbant et non diffusant à haute température à l'aide d'une méthode flash adaptée. La méthode développée ne requiert aucune information *a priori* sur les propriétés radiatives du matériau que l'on souhaite caractériser.

Dans ce chapitre, nous allons valider la pertinence de notre approche sur des estimations réalisées à partir de thermogrammes expérimentaux obtenus à haute température (i.e., entre 1000 et 1400 °C) pour des liquides silicatés présentant des propriétés radiatives différentes (i.e., pour des milieux d'épaisseurs optiques différentes).

8.2 Présentation des échantillons

On s'intéressera dans un premier temps à un verre alumino-silicaté (AS) à très forte teneur en fer total (environ 5,4 %m). Dans un deuxième temps, on caractérisera un verre silico-sodo-calcique (SC1) à teneur en fer total plus modérée (environ 0,6 %m)*.

La Figure 8.1 présente une vue des échantillons sous forme de pastilles de diamètre 25 mm et d'épaisseurs comprises entre 0,6 et 3 mm utilisées pour mesurer les spectres d'absorption à température ambiante (cf. Figure 8.2).

Les échantillons de verres silico-sodo-calciques SC1 et SC2 présentent des spectres d'absorption qui ne diffèrent que par l'intensité des bandes d'absorption du fer ferreux, entre 1 et 2 μm , liées à leurs teneurs en FeO respectives. Les bandes d'absorption liées aux groupes hydroxyles, à environ 2,8 et 3,5 μm , sont d'intensités identiques car les échantillons ont été élaborés par le même procédé (i.e., ils contiennent une teneur en eau identique).

L'échantillon de verre alumino-silicaté AS absorbe nettement plus dans le proche infrarouge compte tenu de sa très forte teneur en fer total. Les bandes de transfert de charges

*Nous avons également réalisé des caractérisations sur un second verre silico-sodo-calcique (SC2) contenant une faible teneur en fer total (environ 0,07 %m). Les thermogrammes expérimentaux présentaient un rapport signal sur bruit trop important et des biais expérimentaux (légère décroissance du thermogramme aux temps courts et/ou ruptures de pentes lors de la montée par exemple) pour garantir une incertitude relative satisfaisante sur l'estimation des paramètres. Les thermogrammes expérimentaux et les estimations associées sont néanmoins reportés en Annexe E.3.

(BTC) du type ligand-métal ($O \rightarrow Fe^{3+}$) ou métal-métal ($Fe^{2+} \rightarrow Fe^{3+}$) et les bandes de transition $d-d$ du Fe^{2+} sont les bandes d'absorption dominantes pour ce verre[†]. L'échantillon AS a un coefficient d'absorption spectral d'un à deux ordres de grandeur supérieur à celui des échantillons SC1 et SC2, respectivement, dans le très proche infrarouge (i.e., jusqu'à $3 \mu m$ environ).

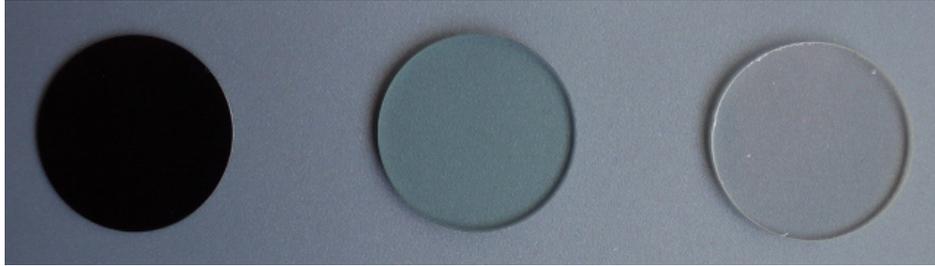


Fig. 8.1 Vue des échantillons AS, SC1 et SC2 (de gauche à droite)

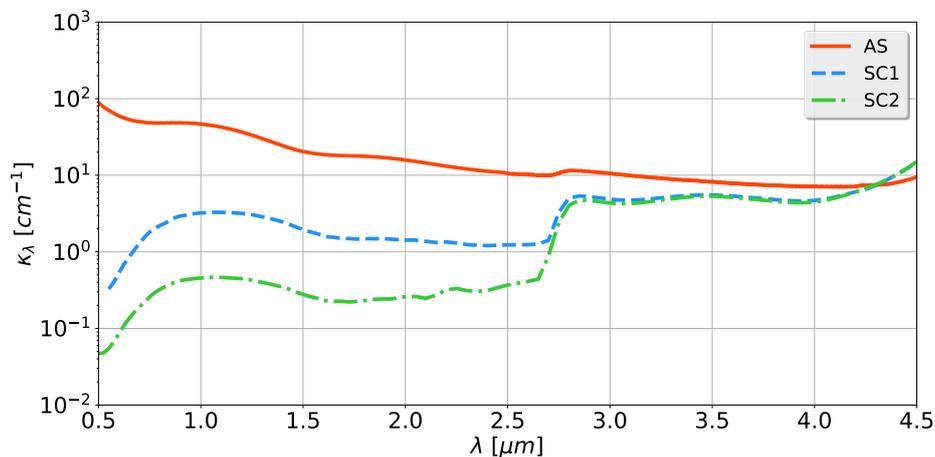


Fig. 8.2 Spectres d'absorption des échantillons AS, SC1 et SC2 à température ambiante

Les analyses chimiques quantitatives des verres étudiés et leurs propriétés thermo-physiques (i.e., masse volumique et chaleur spécifique) sont reportées en Annexe D.

8.3 Méthodologie

L'excitation optimale (i.e., l'excitation générant le rapport signal sur bruit optimal en face arrière) est un créneau de 6,8s pour une durée de mesure d'environ 20s. Les manipulations sont réalisées sous atmosphère ambiante. On précise que la température maximale à laquelle la mesure peut être effectuée avec suffisamment de précision est limitée par le rebullage du verre vers $1400^{\circ}C$. Pour chaque température, la répétabilité des mesures a été quantifiée en réalisant entre trois et cinq thermogrammes.

Les estimations sont réalisées à partir de thermogrammes expérimentaux réduits (i.e., normalisés). L'ordonnée à l'origine est fixée à partir de la régression linéaire à 60% de la ligne de base du thermogramme brut (i.e., pour $t \leq 0$ s). Le maximum est déterminé à partir du maximum d'un polynôme de degré 7 calculé pour le thermogramme brut coupé à 90% de son maximum. Un exemple d'adimensionnement est illustré sur la Figure 8.3.

[†]Pour plus de détails sur les spectres d'absorption des verres et des silicates fondus, le lecteur est invité à se reporter aux textes spécialisés [139–168].

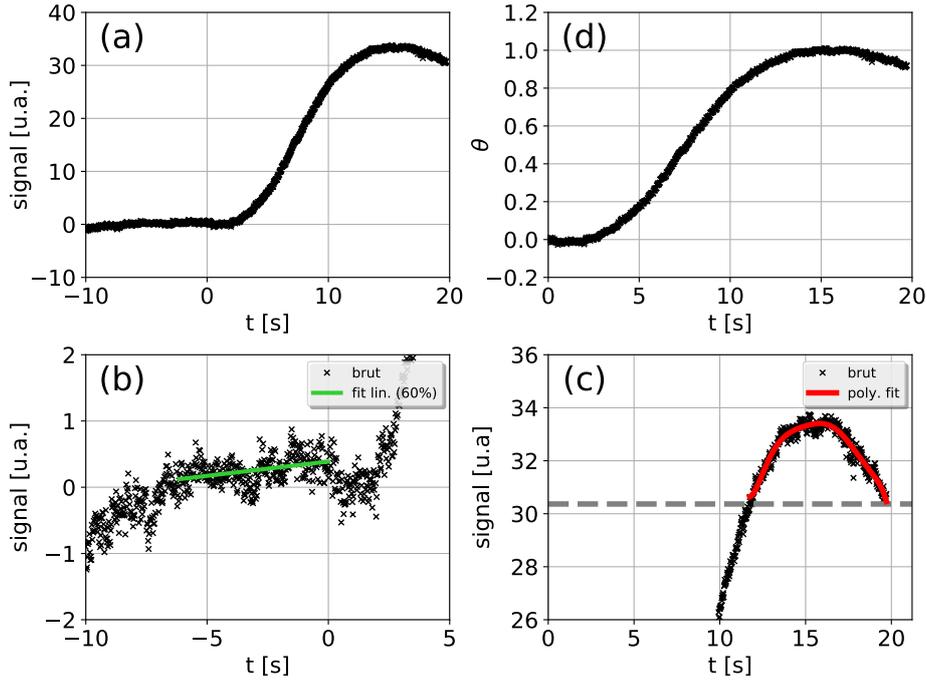


Fig. 8.3 Exemple de normalisation d'un thermogramme expérimental à 1100 °C pour l'échantillon AS (essai n°4) : (a) thermogramme brut ; (b) ligne de base et régression linéaire utilisée pour déterminer l'ordonnée à l'origine ; (c) approximation polynomiale utilisée pour estimer le maximum du thermogramme brut ; (d) thermogramme réduit (i.e., normalisé).

On supposera les grandeurs suivantes connues : les dimensions de la cellule de mesure (volume de $40 \times 40 \times 6 \text{ mm}^3$ et parois d'épaisseur 1 mm), la position et le rayon de la tâche du laser ($r_0 = 2,3 \text{ mm}$), la durée du créneau ($t_d = 6,8 \text{ s}$), l'épaisseur de l'échantillon ($e = 4 \text{ mm}$), l'indice de réfraction de l'échantillon ($n = 1,52$), la conductivité thermique, la capacité thermique et l'émissivité du matériau de la cellule de mesure. On choisit également de fixer la valeur de la capacité thermique de l'échantillon, mesurée par calorimétrie. On renvoie le lecteur à l'Annexe D pour le détail des valeurs des propriétés thermo-physiques et radiatives supposées connues et fixées.

On considère ainsi un modèle avec quatre paramètres méconnus qu'il s'agira d'estimer : la diffusivité thermique (ou la conductivité thermique), le coefficient de pertes thermiques, l'épaisseur optique (ou le coefficient d'absorption) et le paramètre d'amplitude. On a donc le vecteur de paramètres suivant : $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$.

Le modèle direct conducto-radiatif avec l'approximation P_1 (cf. Chapitre 5) est couplé à un algorithme de Levenberg-Marquardt implémenté dans Matlab R2014 [95] (cf. Chapitre 3). L'intervalle de temps choisi pour réaliser l'estimation des paramètres correspond au thermogramme coupé à 90% de son maximum (une fois le maximum du thermogramme atteint). Les valeurs initiales des paramètres sont les suivantes : $a_{init} = 0,5 \text{ mm}^2 \text{ s}^{-1}$, $h_{init} = 200 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ et $\tau_{0,init} = 8$ ou $0,8$ pour les échantillons AS et SC1, respectivement. La valeur initiale du paramètre d'amplitude (K_{init}) est choisie égale à 1.

8.4 Echantillon AS

La Figure 8.4 représente un exemple d'estimation à 1100 °C pour l'échantillon AS (essai n°4). Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre du bruit de mesure). Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de la figure. La valeur estimée du paramètre d'amplitude K est très proche de 1 (i.e., l'écart est inférieur à 1%) indiquant que la normalisation du thermogramme est bonne. L'ensemble des thermogrammes expérimentaux et des estimations est reporté en Annexe E.1.

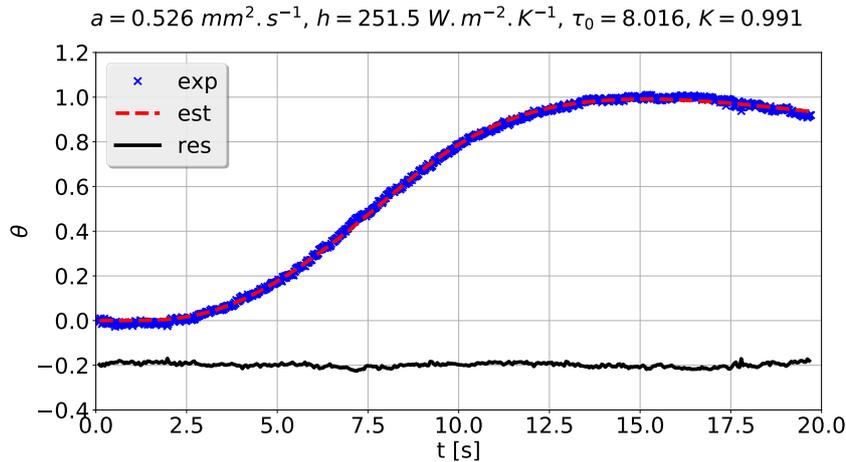


Fig. 8.4 Exemple d'estimation à 1100 °C pour l'échantillon AS (essai n°4). Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de la figure.

Les valeurs estimées de la diffusivité thermique et de l'épaisseur optique en fonction de la température sont illustrées sur la Figure 8.5. Les valeurs reportées correspondent aux valeurs moyennes et écart-types calculés à partir des estimations réalisées sur la gamme de température considérée (i.e., entre 1100 et 1400 °C pour l'échantillon AS). Les incertitudes relatives sont cohérentes avec l'étude théorique menée dans le Chapitre 6.

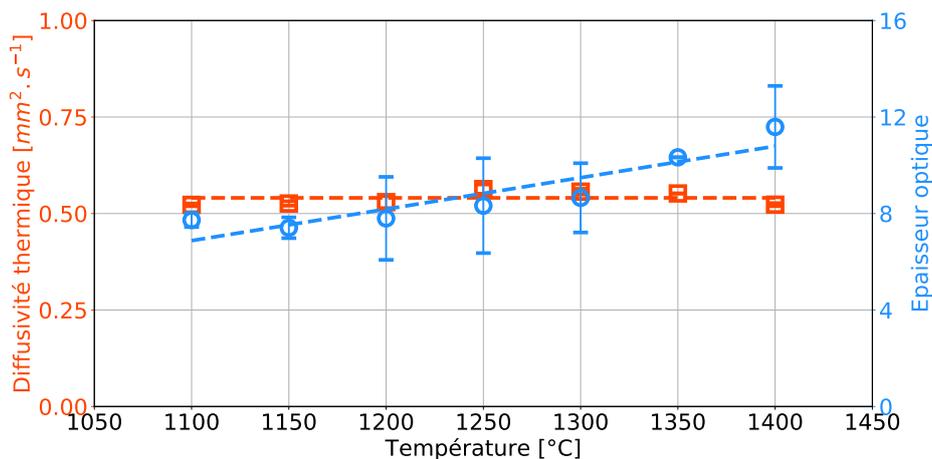


Fig. 8.5 Diffusivité thermique et épaisseur optique estimées en fonction de la température pour l'échantillon AS. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

Les diffusivités thermiques estimées présentent une incertitude relative relativement faible

pour chaque température (i.e., le coefficient de variation est inférieur à 3%). La diffusivité thermique estimée peut être considérée comme quasiment constante sur la gamme de températures investiguée et vaut $0,54 \pm 0,02 \text{ mm}^2 \text{ s}^{-1}$.

Les épaisseurs optiques estimées sont nettement plus dispersées (i.e., le coefficient de variation varie entre 4% et 22%). L'épaisseur optique estimée varie quasi-linéairement entre 7,5 et 11,5 sur la gamme de températures investiguée[‡].

La capacité thermique et l'épaisseur de l'échantillon étant connues, on peut également estimer la conductivité thermique et le coefficient d'absorption de l'échantillon. L'incertitude associée au calcul de la conductivité thermique intègre les incertitudes associées à l'estimation de la diffusivité thermique et à la mesure de la masse volumique et de la capacité thermique massique (cf. Annexe D). Les valeurs estimées de la conductivité thermique et du coefficient d'absorption en fonction de la température sont illustrées sur la Figure 8.6.

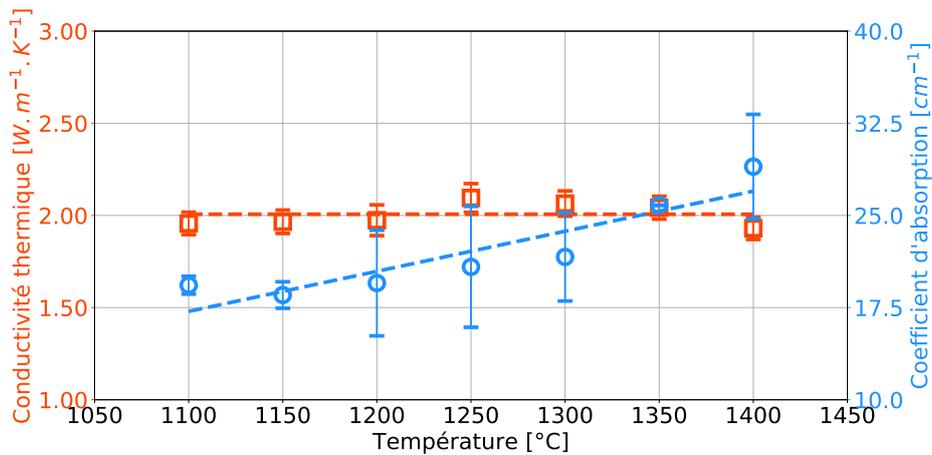


Fig. 8.6 Conductivité thermique et coefficient d'absorption estimés en fonction de la température pour l'échantillon AS. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

La conductivité thermique estimée peut être considérée comme quasiment constante sur la gamme de température investiguée et vaut $2,01 \pm 0,06 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$.

Le coefficient d'absorption estimé varie quasi linéairement entre 19 et 29 cm^{-1} sur la gamme de température investiguée. On peut ainsi considérer que le coefficient d'absorption estimé est une fonction affine de la température absolue (en K).

$$\kappa(T) = -27,6 + 32,6 \times 10^{-3} T \quad (8.1)$$

8.5 Echantillon SC1

La Figure 8.7 représente un exemple d'estimation à 1100 °C pour l'échantillon SC1 (essai n°1). Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre du bruit de mesure). Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de la figure. La valeur estimée du paramètre d'amplitude K est très proche de 1 (i.e., l'écart est inférieur à 1%) indiquant que la normalisation du thermogramme est bonne. L'ensemble des thermogrammes expérimentaux et des estimations est reporté en Annexe E.2.

[‡]Le milieu peut ainsi être considéré comme optiquement épais (i.e., l'épaisseur optique est supérieure à 5) et un modèle conductif pur utilisé pour estimer la diffusivité thermique *apparente* de l'échantillon. Les estimations réalisées à partir d'un modèle conductif pur sont reportées en Annexe F.

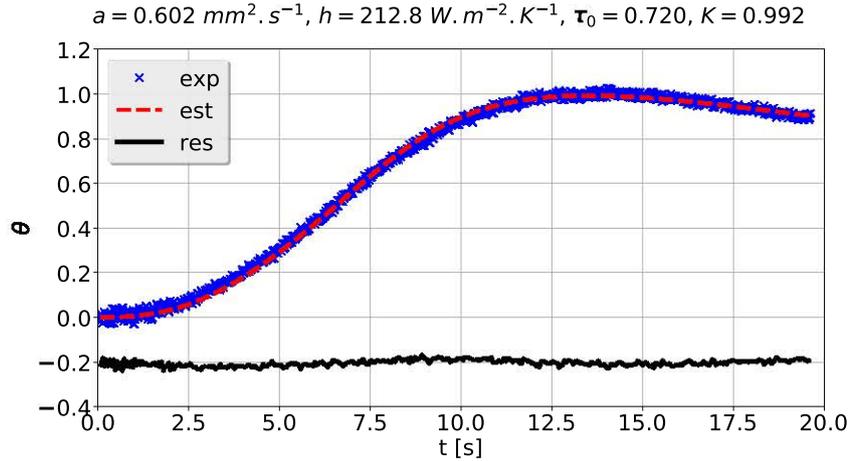


Fig. 8.7 Exemple d'estimation à 1100 °C pour l'échantillon SC1 (essai n°1). Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de la figure.

Les valeurs estimées de la diffusivité thermique et de l'épaisseur optique en fonction de la température sont illustrées sur la Figure 8.8. Les valeurs reportées correspondent aux valeurs moyennes et écart-types calculés à partir des estimations réalisées sur la gamme de température considérée (i.e., entre 1000 et 1200 °C pour l'échantillon SC1). Les incertitudes relatives sont cohérentes avec l'étude théorique menée dans le Chapitre 6.

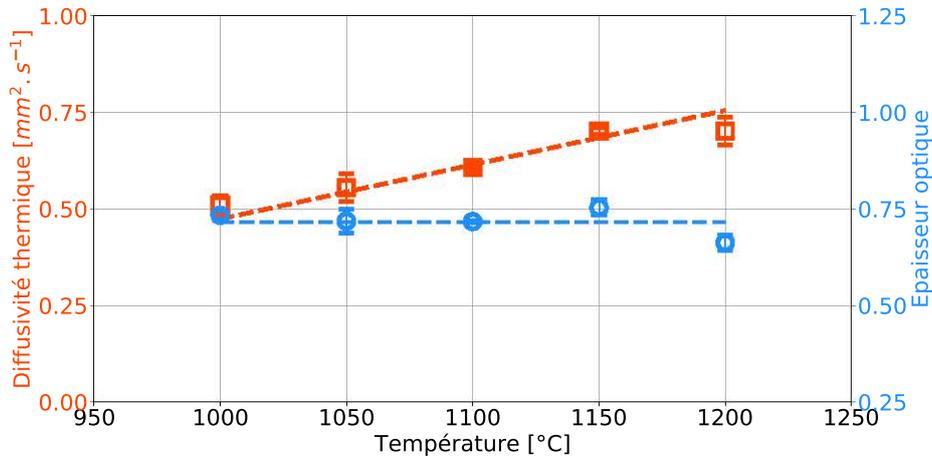


Fig. 8.8 Diffusivité thermique et épaisseur optique estimées en fonction de la température pour l'échantillon SC1. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

Les diffusivités thermiques estimées présentent une incertitude relative correcte pour chaque température (i.e., le coefficient de variation est inférieur à 5%). La diffusivité thermique estimée varie quasi linéairement entre 0,51 et 0,70 $\text{mm}^2 \text{s}^{-1}$ sur la gamme de températures investiguée. On peut ainsi considérer que la diffusivité thermique estimée est une fonction affine de la température absolue (en K).

$$a(T) = -1,31 + 1,40 \times 10^{-3} T \quad (8.2)$$

Les épaisseurs optiques estimées présentent une incertitude relative acceptable pour chaque température (i.e., le coefficient de variation est inférieur à 7%). L'épaisseur optique

estimée peut être considérée comme quasiment constante sur la gamme de températures investiguée et vaut $0,72 \pm 0,03$.

La capacité thermique et l'épaisseur de l'échantillon étant connues, on peut également estimer la conductivité thermique et le coefficient d'absorption de l'échantillon. L'incertitude associée au calcul de la conductivité thermique intègre les incertitudes associées à l'estimation de la diffusivité thermique et à la mesure de la masse volumique et de la capacité thermique massique (cf. Annexe D). Les valeurs estimées de la conductivité thermique et du coefficient d'absorption en fonction de la température sont illustrées sur la Figure 8.9.

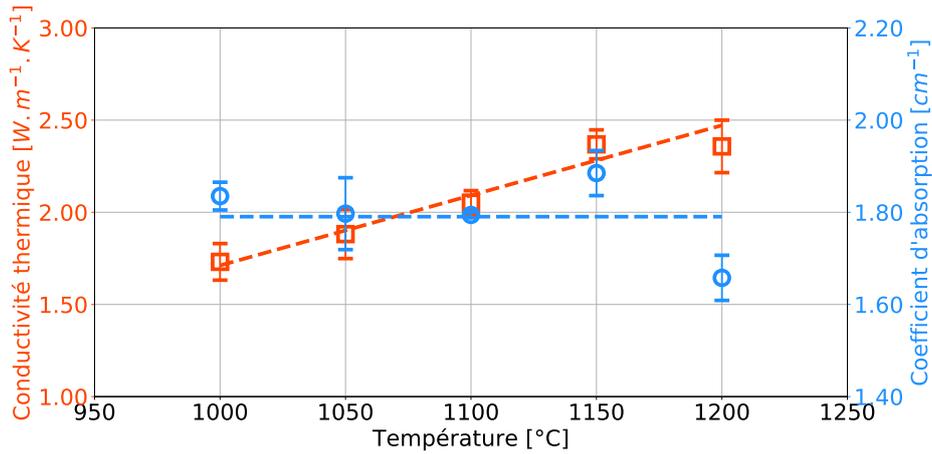


Fig. 8.9 Conductivité thermique et coefficient d'absorption estimés en fonction de la température pour l'échantillon SC1. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

La conductivité thermique estimée peut être considérée comme une loi affine de la température absolue (en K).

$$k(T) = -3,13 + 3,80 \times 10^{-3} T \quad (8.3)$$

Le coefficient d'absorption estimé peut être considéré comme quasiment constant sur la gamme de températures investiguée et vaut $1,79 \pm 0,80 \text{ cm}^{-1}$.

8.6 Discussion

8.6.1 Thermogrammes expérimentaux et qualité des estimations

La qualité des estimations est intimement liée à la qualité des thermogrammes acquis avec le dispositif expérimental. On rappelle que l'incertitude relative liée à l'estimation de chaque paramètre méconnu est, en l'absence de biais, proportionnelle à la variance du bruit de mesure (cf. Chapitre 3).

Le rapport signal sur bruit est fonction de la qualité de la chaîne de mesure, de l'optique (hublots à la sortie du four notamment), de l'état de surface des parois externes de la cellule de mesure, de la durée de l'excitation fournie par le laser et de la résolution de la caméra infrarouge (i.e., du nombre de pixels utilisés pour moyenner la température sur la face arrière de la cellule).

Le refroidissement du détecteur InSb de la caméra infrarouge utilisée dans nos travaux induisait des perturbations, plus ou moins aléatoires, lors de l'acquisition des thermogrammes (ruptures de pentes lors de la montée ou bien bruit sur une plage temporelle limitée). Le bruit supplémentaire, induit par le compresseur à cycle de Stirling, n'est pas nécessairement très

pénalisant (cf. thermogrammes sur l'échantillon SC1 à 1200 °C en Annexe E.2 par exemple). En revanche, les ruptures de pentes, associées à un bruit de mesure trop important (i.e., de l'ordre de 3%), ne permettent pas d'obtenir des estimations satisfaisantes (cf. thermogrammes et estimations de l'échantillon SC2 en Annexe E.3).

L'amélioration et l'optimisation de l'ensemble de ces paramètres expérimentaux a fait l'objet d'un soin tout particulier pendant nos travaux. La configuration optimale, à ce jour, a pu être réalisée lors de la dernière campagne de mesure sur l'échantillon de verre silico-sodo-calcique SC1 (sablage de la cellule de mesure avant dépôt du revêtement de titane et utilisation de hublots/fenêtres en saphir par exemple). La quasi-totalité des thermogrammes expérimentaux acquis ont pu être exploités pour aboutir à des estimations robustes des paramètres.

D'éventuelles améliorations pourraient encore être apportées en utilisant une caméra infrarouge avec une plus grande résolution et/ou une source laser plus puissante[§] (cela permettrait notamment de réduire la durée de l'excitation et de diminuer, *a priori*, l'incertitude relative associée aux valeurs estimées des paramètres). On pourrait également envisager de réaliser des essais sous atmosphère contrôlée (i.e., sous atmosphère neutre par exemple) afin d'éviter/limiter les changements d'état d'oxydo-réduction des silicates fondus au cours de l'expérience.

8.6.2 Influence de la composition sur la conductivité thermique estimée

Les valeurs estimées de la conductivité thermique en fonction de la température pour les échantillons AS et SC1 sont comparées sur la Figure 8.10. La conductivité thermique de l'échantillon AS est constante sur la gamme de températures investiguée alors que celle de l'échantillon SC1 croît avec la température. A 1100 °C, les valeurs des conductivités thermiques estimées pour ces deux échantillons sont très proches et valent environ $2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$.

Ces évolutions différentes sont attribuées aux compositions très différentes de ces deux échantillons : AS est un verre alumino-silicaté à très forte teneur en fer (environ 5,4 %m) alors que SC1 est un verre silico-sodo-calcique à teneur modérée en fer (environ 0,6 %m). Le transport des phonons est lié à la structure du verre fondu, notamment au rapport entre les oxydes formateurs et modificateurs de réseau qu'on peut exprimer quantitativement avec la proportion d'oxygènes non-pontants dans le réseau (ou NBO/T, de l'anglais : *Non-Bridging Oxygens per Tetrahedron*)[¶]. Une étude approfondie du lien entre la composition du verre fondu et ses propriétés thermiques ne faisait pas l'objet de nos travaux mais pourrait tout à fait être menée par la suite.

8.6.3 Influence de la composition sur le coefficient d'absorption estimé

Les valeurs estimées du coefficient d'absorption en fonction de la température pour les échantillons AS et SC1 sont comparées sur la Figure 8.11. L'échantillon AS a un coefficient d'absorption estimé d'un ordre de grandeur supérieur à celui de l'échantillon SC1. Par ailleurs, le coefficient d'absorption de l'échantillon AS est une fonction affine de la température alors que celui de l'échantillon SC1 est constant.

Ces résultats sont cohérents avec les spectres d'absorption de ces deux verres (cf. Figure 8.2). En effet, dans le cas de l'échantillon AS, l'absorption est dominée par l'absorption

[§]Il faudra néanmoins vérifier que l'élévation de température reste modérée (i.e., de l'ordre de quelques degrés).

[¶]Des travaux récents de Hasegawa *et al.* [169] sur des liquides silicatés issus de l'industrie métallurgique (scories fondues) ont montré que la conductivité thermique semblait décroître lorsque que le degré de polymérisation diminuait, i.e. le rapport NBO/T augmentait, pour ensuite atteindre une valeur constante (i.e., un palier).

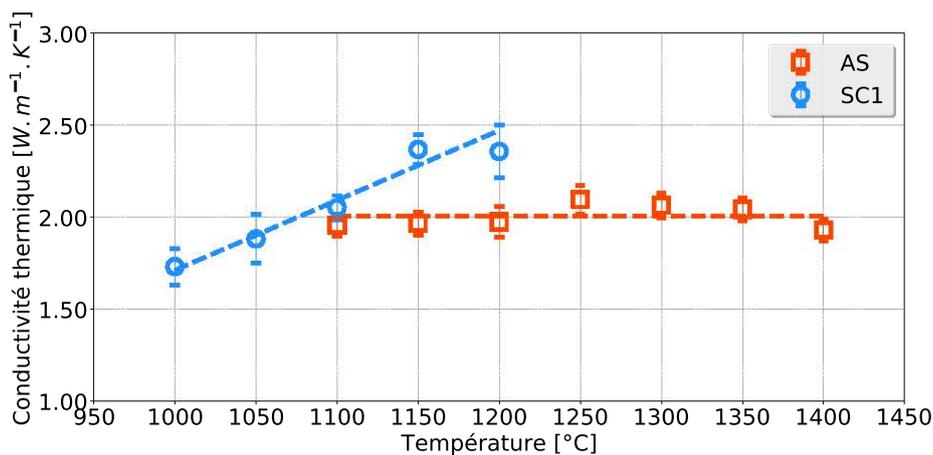


Fig. 8.10 Conductivité thermique estimée en fonction de la température pour les échantillons AS et SC1. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

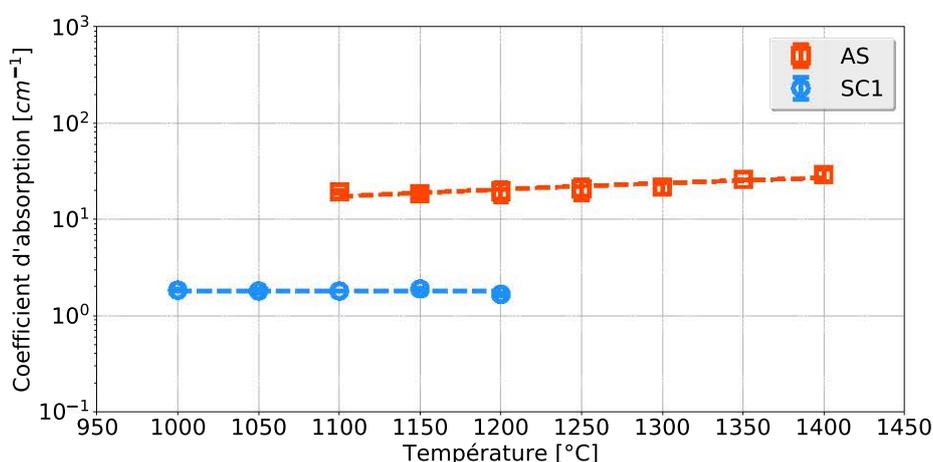


Fig. 8.11 Coefficient d'absorption estimé en fonction de la température pour les échantillons AS et SC1. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

du fer dans le très proche infrarouge. Lorsque la température augmente, l'importance relative de ces bandes d'absorption sur le coefficient d'absorption augmente. Dans le cas de l'échantillon SC1, l'absorption est dominée par les groupes hydroxyles. Lorsque la température augmente, l'importance relative de ces bandes d'absorption diminue et est compensée par l'augmentation d'intensité de la fonction de Planck.

La Figure 8.12 représente les coefficients d'absorptions estimés et les coefficients d'absorption moyens (moyenne de Rosseland, moyenne de Planck et moyenne effective) calculés à partir des spectres d'absorption mesurés par spectrophotométrie IR pour les échantillons AS et SC1. Nous avons utilisé les spectres d'absorption mesurés à température ambiante car ceux à haute température sont confidentiels. Les valeurs des coefficients moyens sont donc extrapolés à haute température à partir de mesure à température ambiante.

Le coefficient d'absorption (gris) estimé avec la méthode transitoire pulsée proposée semble donc refléter le comportement d'absorption moyen des échantillons caractérisés ici : l'ordre de grandeur relatif des niveaux d'absorption est bien retrouvé et l'évolution avec la température est capturée.

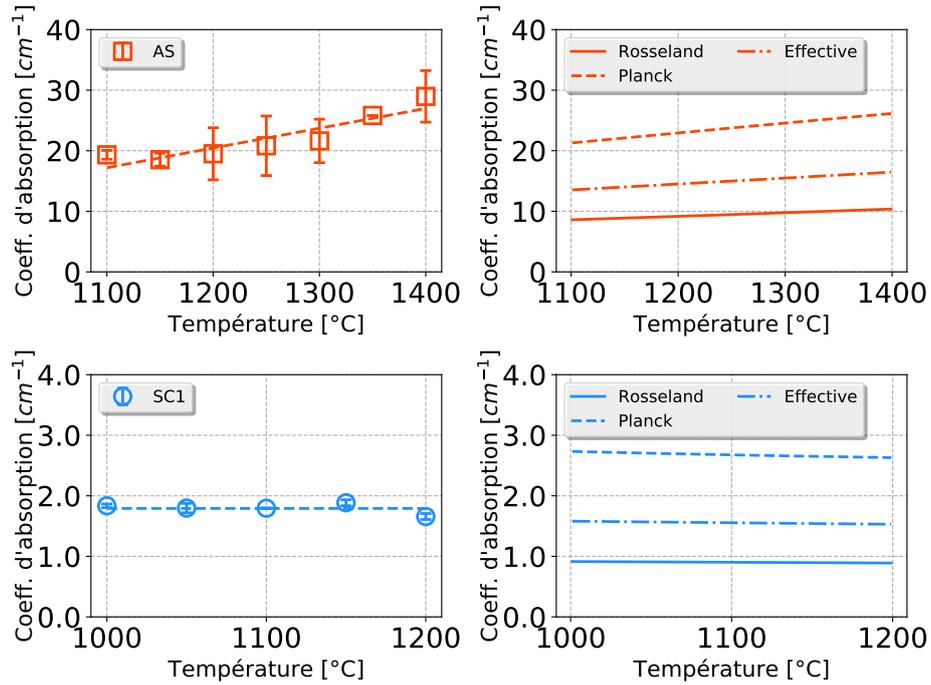


Fig. 8.12 Coefficient d'absorption en fonction de la température pour les échantillons AS (en haut) et SC1 (en bas). Comparaison des coefficients d'absorption estimés (à gauche) et des coefficients d'absorption moyens (moyenne de Rosseland, moyenne de Planck et moyenne effective) calculés/extrapolés à haute température à partir des spectres d'absorption mesurés à température ambiante (à droite).

8.7 Conclusion

Les résultats expérimentaux obtenus à haute température (i.e., entre 1000 et 1400 °C) sur des liquides silicatés présentant des propriétés radiatives différentes (i.e., des coefficients d'absorption différents) valident la méthode pulsée développée dans nos travaux.

L'estimation simultanée de la diffusivité thermique et d'un coefficient d'absorption moyen (gris) est ainsi possible pour des liquides (visqueux) semi-transparents à haute température avec une méthode pulsée adaptée.

La méthode développée ne requiert aucune information *a priori* sur le coefficient d'absorption du matériau que l'on souhaite caractériser.

La méthode pulsée développée dans nos travaux permet également d'améliorer la fiabilité des résultats obtenus sur les propriétés thermiques (i.e., diffusivité thermique et conductivité thermique) des liquides silicatés à haute température par comparaison avec les données publiées dans la littérature jusqu'à présent.

Quatrième partie

Conclusions et perspectives

Conclusion générale

Les travaux présentés dans ce mémoire ont porté sur la caractérisation des propriétés thermiques (i.e., diffusivité thermique et conductivité thermique) des liquides silicatés (ou silicates fondus) à haute température (i.e., pour des températures supérieures à 1000 °C) avec une méthode pulsée de type flash.

La caractérisation de ces liquides semi-transparents est particulièrement délicate car il faut séparer les contributions des différents modes de transfert thermique (conduction, convection et rayonnement) afin de mesurer des propriétés *intrinsèques*.

Le dispositif expérimental mis en place au laboratoire pour la caractérisation des propriétés thermiques des matériaux solides anisotropes à haute température a été complété afin de caractériser des liquides. La principale difficulté est de concevoir une cellule de mesure stable chimiquement et mécaniquement à haute température sans toutefois obérer l'estimation des propriétés thermiques des liquides.

La conception de la cellule de mesure a été validée par des mesures réalisées à température ambiante sur un fluide de référence (eau gélifiée). Le très bon accord obtenu entre les valeurs estimées de la conductivité thermique et des valeurs de la littérature nous a permis de valider notre cellule.

La modélisation du problème direct prend en compte le couplage conducto-radiatif en résolvant l'équation de la chaleur en régime transitoire et l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu gris émettant, absorbant et non diffusant à l'aide de la méthode des harmoniques sphériques (approximation P_1). Les transferts thermiques convectifs dans le liquide peuvent être négligés car les nombres de Rayleigh associés à la configuration expérimentale sont suffisamment faibles.

L'identifiabilité des paramètres inconnus du problème a été investiguée à l'aide d'une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique. L'estimation des paramètres à partir de signaux synthétiques (approche statistique de type Monte Carlo) démontre la possibilité d'estimer simultanément la diffusivité thermique et un coefficient d'absorption moyen (gris) pour des liquides silicatés (ou silicates fondus) à haute température.

Les résultats expérimentaux obtenus à haute température (i.e., entre 1000 et 1400 °C) sur des liquides silicatés présentant des propriétés radiatives différentes (i.e., des coefficients d'absorption différents) valident la méthode de caractérisation développée et mise en œuvre dans nos travaux. On notera que la méthode développée permet de s'affranchir de la connaissance des propriétés radiatives des matériaux que l'on souhaite caractériser.

Plusieurs perspectives sont envisagées à l'issue de l'étude.

La méthode développée pourrait être exploitée afin d'étudier le lien entre la structure des silicates fondus et leurs propriétés thermiques. Les mesures pourraient être utilisées pour valider/calibrer des modèles de dynamique moléculaire (voir par exemple [170–173]) afin qu'ils deviennent prédictifs.

D'un point de vue métrologique, une évaluation précise et méthodique des différents types d'erreurs/incertitudes de mesure pourrait être menée [174]. En effet, les incertitudes associées à la diffusivité thermique sont *a priori* sous-estimées car elles n'intègrent que les sources d'incertitudes relatives aux bruits et ne prennent pas en compte les sources d'incertitudes intrinsèques au dispositif de mesure (i.e., étalonnage, résolution, dérive, etc.).

Le temps nécessaire à la réalisation d'une estimation à partir d'un thermogramme est relativement long, de l'ordre de quelques heures. Cette durée est en partie imputable au grand nombre d'appels au modèle direct requis par l'algorithme de Levenberg-Marquardt pour converger. On pourrait envisager d'utiliser d'autres types d'algorithmes déterministes s'appuyant sur une décomposition en valeurs singulières des matrices de sensibilités réduites et dans lesquels le nombre de degrés de liberté est ajusté en remplaçant une (ou plusieurs) valeur(s) singulière(s) par une valeur infinie (algorithme PETIR-ILSVD [175]). Ce type d'algorithme peut alors être plus performant (i.e., converger plus rapidement) qu'un algorithme de type Levenberg-Marquardt.

On pourrait également envisager de mettre en œuvre une approche bayésienne [176, 177] pour intégrer les incertitudes sur les paramètres fixés aux valeurs nominales (propriétés thermiques de l'alliage de platine rhodié par exemple) et obtenir une incertitude totale élargie sur les paramètres estimés. Il faudra néanmoins veiller au biais induit par l'étape de réduction de modèle (pour pouvoir s'appuyer sur une approche de type Monte Carlo) et par les connaissances *a priori* introduites dans le modèle.

- [1] B. Mysen and P. Richet. *Silicate Glasses and Melts – Properties and Structure*. Elsevier Science, 1st edition, 2005.
- [2] H. Scholze. *Le verre : nature, structure et propriétés*. Institut du verre, Paris, France, 2^{ème} edition, 1980.
- [3] J. Barton and C. Guillemet. *Le verre – Science et technologie*. EDP Sciences, 2005.
- [4] V. Schick, B. Rémy, A. Degiovanni, F. Demeurie, J. Meulemans, and P. Lombard. Measurement of thermal conductivity of liquids at high temperature. *Journal of Physics : Conference Series*, 395(1) :012078, 2012.
- [5] V. Schick, B. Rémy, A. Degiovanni, J. Meulemans, and P. Lombard. Mesure de la conductivité thermique de verre de silice liquide. In *Actes du Congrès Français de Thermique*, Gérardmer, 28 mai – 31 mai 2013.
- [6] Y. Jannot and A. Degiovanni. *Mesure des propriétés thermiques des matériaux*. ISTE Editions, 1st edition, April 2018.
- [7] ISO 8302 :1991. Isolation thermique – Détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire – Méthode de la plaque chaude gardée, 1991.
- [8] ISO 8301 :1991. Isolation thermique – Détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire – Méthode fluxmétrique, 1991.
- [9] J. J. Healy, J. J. de Groot, and J. Kestin. The theory of the transient hot-wire method for measuring thermal conductivity. *Physica B+C*, 82(2) :392–408, April 1976.
- [10] X. Zhang, A. Degiovanni, and D. Maillat. Hot-wire measurement of thermal conductivity of solids : a new approach. *High Temperatures – High Pressures*, 25 :577–584, 1993.
- [11] ISO 8894-1 :2010. Matériaux réfractaires – Détermination de la conductivité thermique – Partie 1 : Méthodes du fil chaud ("croisillon" et "thermomètre à résistance"), 2010.
- [12] ISO 8894-2 :2007. Matériaux réfractaires – Détermination de la conductivité thermique – Partie 2 : Méthodes du fil chaud (parallèle), 2007.
- [13] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott. Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity. *Journal of Applied Physics*, 32(9) :1679–84, 1961.

- [14] L. Vozár and W. Hohenauer. Flash method of measuring the thermal diffusivity a review. *High Temperatures – High Pressures*, 35-36(3) :253–264, 2004.
- [15] B. Hay, J.-R. Filtz, and J.-C. Batsale. Mesure de la diffusivité thermique par la méthode flash. *Techniques de l'Ingénieur*, (R 2 955), 2004.
- [16] A. Degiovanni. Conductivité et diffusivité thermique des solides. *Techniques de l'Ingénieur*, (R 2 850), 1994.
- [17] G. V. McCauley. Fundamentals of heat flow in molten glass and in walls for use against glass. *Journal of the American Ceramic Society*, 8(8) :493–504, 1925.
- [18] S. Kruszewski. Total Heat-Transmission Coefficients of Amber and Green Glasses in Temperatures of Melting Range. *Journal of the American Ceramic Society*, 44(7) :333–339, 1961.
- [19] J. Endrýs, A. Blažek, and J. Ederova. Experimental determination of the effective thermal conductivity of glass by steady-state method. *Glastechnische Berichte*, 66(6-7) :151–157, 1993.
- [20] J. Gille and R. Goody. Convection in a radiating gas. *Journal of Fluid Mechanics*, 20(1) :47–79, 1964.
- [21] M. N. Özisik. *Radiative Transfer and Interactions with Conduction and Convection*. John Wiley & Sons, 1973.
- [22] S. Rosseland. *Astrophysik auf Atom-Theoretische Grundlage*. Springer-Verlag, Berlin and New York, 1931.
- [23] S. Rosseland. *Theoretical Astrophysics; Atomic Theory and the Analysis of Stellar Atmospheres and Envelopes*. Clarendon Press, Oxford, 1936.
- [24] L. Pilon, F. Janos, and R. Kitamura. Effective thermal conductivity of soda-lime silicate glassmelts with different iron contents between 1100 °C and 1500 °C. *Journal of the American Ceramic Society*, 97(2) :442–450, 2014.
- [25] H. Liu, R. Kitamura, X. Xia, and L. Pilon. Conductive and Radiative Properties of Soda-Lime Silicate Glassmelts with Different Iron Contents from 1100 °C to 1500 °C. *Journal of the American Ceramic Society*, 99(4) :1271–1279, 2016.
- [26] J. R. Howell. The Monte Carlo Method in Radiative Heat Transfer. *Journal of Heat Transfer*, 120(3) :547–560, August 1998.
- [27] A. Blažek and J. Endrýs. Review of thermal conductivity data - Part II : Thermal conductivity at high temperatures. In *Review of thermal conductivity data*. Institut National du Verre, Charleroi, Belgique, 1983.
- [28] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger. *Conduction of Heat in Solids*. Oxford Science Publications, 2nd edition, April 1986.
- [29] V. G. Gutop. Heat Conductivity of Molten Glass. *Stekol'naya Prom.*, (11–12) :24–27, 1940.
- [30] G. Eckhardt. Wärmeleitung und Wärmestrahlung in Gläsern zwischen 100 und 1200 °C (Conduction and Radiation of Heat in Glasses Between 100 and 1200 °C). *Glastechnische Berichte*, 32(9) :373–380, 1959.

- [31] A. F. Van Zee and C. I. Babcock. A Method for the Measurement of Thermal Diffusivity of Molten Glass. *Journal of the American Ceramic Society*, 34(8) :244–250, 1951.
- [32] F. J. Grove and H. Charnock. Thermal Conductivity of Molten Glass : Comparison of Theory and Experimental. *Glastechnische Berichte*, 32K :24–28, 1959.
- [33] H. Charnock. Experimental and Theoretical Comparison of Radiation Conductivity Predicted by Steady-State Theory With That Effective Under Periodic Temperature Conditions. *Journal of the American Ceramic Society*, 44(7) :313–317, 1961.
- [34] F. Champonier. Mesures de la conductivité et de la diffusivité thermique d'un verre float entre 0 et 550 °C environ. Rapport technique n° 4253/76, Saint-Gobain Recherche, 1976.
- [35] R. Gardon. Review of thermal conductivity data - Part I : Thermal conductivity at low and moderate temperatures. In *Review of thermal conductivity data*. Institut National du Verre, Charleroi, Belgique, 1983.
- [36] S. André and Degiovanni. Mesure de la diffusivité thermique par méthode flash dans un solide semi-transparent : Application au verre. Technical Report n° 4484/91 - SGR - PR - SK/AC, Saint-Gobain Recherche, 1991.
- [37] S. André. *Identification de la diffusivité phonique du verre par méthode flash de 20 °C à 500 °C*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), 1992.
- [38] S. André and A. Degiovanni. Experimental measurements of the phonic diffusivity of semitransparent materials up to 800K. *Glastechnische Berichte*, 66(11) :291–298, 1993.
- [39] S. André and A. Degiovanni. A theoretical study of the transient coupled conduction and radiation heat transfer in glass : phonic diffusivity measurements by the flash technique. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 38(18) :3401–12, 1995.
- [40] M. Lazard. *Modélisation macroscopique du transfert de chaleur transitoire couplé conduction rayonnement dans un milieu semi-transparent. Estimation de paramètres*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), 2000.
- [41] M. Lazard, S. André, and D. Maillet. Diffusivity measurement of semi-transparent media : Model of the coupled transient heat transfer and experiments on glass, silica glass and zinc selenide. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(3) :477–87, 2004.
- [42] J.-C. Henriques. Etude de la méthode du fil chaud – Modélisation des transferts de chaleur à l'aide du quadripôle thermique et application de la méthode d'identification des paramètres. Rapport technique n° 4265/89 - SGR/PR - JCH/SL, Saint-Gobain Recherche, 1989.
- [43] J.-R. Colas. Etude et mise en oeuvre de la méthode de la variation de la résistance électrique du fil chaud pour des verres solides et en état de fusion - Modélisation des transferts thermiques par analogie quadripolaire et identification des paramètres. Rapport technique n° 4273/91 - SGR/PR - JRC/AC, Saint-Gobain Recherche, 1991.
- [44] D. Snyder, E. Gier, and I. Carmichael. Experimental determination of the thermal conductivity of molten CaMgSiO and the transport of heat through magmas. *Journal of Geophysical Research*, 99(B8) :15503–15516, 1994.

- [45] M. Shore. Comment on "Experimental determination of the thermal conductivity of molten CaMgSiO and the transport of heat through magmas" by Don Snyder, Elizabeth Gier, and Ian Carmichael. *Journal of Geophysical Research*, 100(B11) :22401–22402, 1995.
- [46] C. Carrigan and A. McBirney. Comment on "Experimental determination of the thermal conductivity of molten CaMgSiO and the transport of heat through magmas" by Don Snyder, Elizabeth Gier, and Ian Carmichael. *Journal of Geophysical Research*, 102(B7) :15073–15076, 1997.
- [47] D. Snyder, E. Gier, and I. Carmichael. Reply. *Journal of Geophysical Research*, 102(B7) :15077–15080, 1997.
- [48] Y. Kang and K. Morita. Thermal Conductivity of the CaO – Al₂O₃ – SiO₂ System. *ISIJ International*, 46(3) :420–426, 2006.
- [49] Y. Kang, J. Lee, and K. Morita. Thermal Conductivity of Molten Slags : A Review of Measurement Techniques and Discussion Based on Microstructural Analysis. *ISIJ International*, 54(9) :2008–2016, 2014.
- [50] J. P. van den Brink and M. H. M. Rongen. Thermal conductivity of glasses at high temperatures. *Thermal Conductivity*, 22 :70–79, 1994.
- [51] H. Kiyohashi, N. Hayakawa, S. Aratani, and H. Masuda. Thermal Conductivity Measurements of Float Glass at High Temperatures by Needle Probe Method. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 108(1256) :381–386, 2000.
- [52] H. Kiyohashi, N. Hayakawa, S. Aratani, and H. Masuda. Thermal conductivity of heat-absorbed soda-lime-silicate glasses at high temperatures. *High Temperatures – High Pressures*, 34 :167–176, 2002.
- [53] H. Ohta, G. Ogura, Y. Waseda, and M. Suzuki. Thermal diffusivity measurements of molten salts using a three-layered cell by the laser flash method. *Review of Scientific Instruments*, 61(10) :2645–2649, 1990.
- [54] Y. Maeda, H. Sagara, R. P. Tye, M. Masuda, H. Ohta, and Y. Waseda. A high-temperature system based on the laser flash method to measure the thermal diffusivity of melts. *International Journal of Thermophysics*, 17(1) :253–261, 1996.
- [55] Y. Tada, M. Harada, M. Tanigaki, and W. Eguchi. Laser flash method for measuring thermal conductivity of liquids – application to low thermal conductivity liquids. *Review of Scientific Instruments*, 49(9) :1305–1314, September 1978.
- [56] Y. Tada, M. Harada, M. Tanigaki, and W. Eguchi. Laser flash method for measuring thermal conductivity of liquids. application to molten salts. *Ind. Eng. Chem. Fund.*, 20(4) :333–336, November 1981.
- [57] H. Ohta, H. Shibata, A. Suzuki, and Y. Waseda. Novel laser flash technique to measure thermal effusivity of highly viscous liquids at high temperature. *Review of Scientific Instruments*, 72(3) :1899, 2001.
- [58] H. Shibata, A. Suzuki, and H. Ohta. Measurement of Thermal Transport Properties for Molten Silicate Glasses at High Temperatures by Means of a Novel Laser Flash Technique. *Materials Transactions*, 46(8) :1877–1881, 2005.

- [59] H. Ohta, H. Shibata, and T. Kasamoto. Estimation of Heat Transfer of a Front-heating Front-detection Laser Flash Method Measuring Thermal Conductivity for Silicate Melts at High Temperatures. *ISIJ International*, 46(3) :434–440, 2006.
- [60] R. Büttner, B. Zimanowski, J. Blumm, and L. Hagemann. Thermal conductivity of a volcanic rock material (olivine-melilitite) in the temperature range between 288 and 1470 K. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 80(3–4) :293–302, February 1998.
- [61] R. Büttner, B. Zimanowski, C. Lenk, A. Koopmann, and V. Lorenz. Determination of thermal conductivity of natural silicate melts. *Applied Physics Letters*, 77(12) :1810, 2000.
- [62] A. M. Hofmeister. Dependence of diffusive radiative transfer on grain-size, temperature, and Fe-content : Implications for mantle processes. *Journal of Geodynamics*, 40(1) :51–72, 2005.
- [63] A. G. Whittington, A. M. Hofmeister, and P. I. Nabelek. Temperature-dependent thermal diffusivity of the Earth’s crust and implications for magmatism. *Nature*, 458(7236) :319–321, 2009.
- [64] A. M. Hofmeister. Thermal diffusivity of oxide perovskite compounds at elevated temperature. *Journal of Applied Physics*, 107(10), 2010.
- [65] A. M. Hofmeister and A. G. Whittington. Effects of hydration, annealing, and melting on heat transport properties of fused quartz and fused silica from laser-flash analysis. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 358(8) :1072–1082, 2012.
- [66] A. M. Hofmeister, A. G. Whittington, J. Goldsand, and R. G. Criss. Effects of chemical composition and temperature on transport properties of silica-rich glasses and melts. *American Mineralogist*, 99(4) :564–577, 2014.
- [67] A. M. Hofmeister, J. Dong, and J. M. Branlund. Thermal diffusivity of electrical insulators at high temperatures : Evidence for diffusion of bulk phonon-polaritons at infrared frequencies augmenting phonon heat conduction. *Journal of Applied Physics*, 115(16), 2014.
- [68] R. G. Deissler. Diffusion approximation for thermal radiation in gases with jump boundary condition. *Journal of Heat Transfer*, 86(2) :240–246, 1964.
- [69] H. Poltz and R. Jugel. The thermal conductivity of liquids IV : Temperature dependence of thermal conductivity. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 10(8) :1075 – 1088, 1967.
- [70] R. A. Perkins, M. L. V. Ramires, and C. A. Nieto de Castro. Thermal Conductivity of Saturated Liquid Toluene by Use of Anodized Tantalum Hot Wires at High Temperatures. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 105(2) :255–265, 2000.
- [71] J. Menashe and W. A. Wakeham. Effect of absorption of radiation on thermal conductivity measurements by the transient hot-wire technique. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 25(5) :661–673, 1982.
- [72] C. A. Nieto de Castro, R. A. Perkins, and H. M. Roder. Radiative Heat Transfer in Transient Hot-Wire Measurements of Thermal Conductivity. *International Journal of Thermophysics*, 12(6) :985–997, 1991.

- [73] D. Maillet, Y. Jarny, and D. Petit. Problèmes inverses en diffusion thermique – Modèles diffusifs, mesures, sensibilités. *Techniques de l'ingénieur*, (BE 8 265), 2011.
- [74] D. Maillet, Y. Jarny, and D. Petit. Problèmes inverses en diffusion thermique – Outils spécifiques de conduction inverse et de régularisation. *Techniques de l'ingénieur*, (BE 8 267), 2011.
- [75] J. V. Beck and K. J. Arnold. *Parameter Estimation in Engineering and Science*. John Wiley & Sons, 1977.
- [76] J. V. Beck, B. Blackwell, and C. R. St. Clair. *Inverse heat conduction : Ill-posed problems*. John Wiley & Sons, 1985.
- [77] Y. Bard. *Nonlinear Parameter Estimation*. Academic Press, Inc., New York, 1974.
- [78] M. N. Özisik and H. R. B. Orlande. *Inverse Heat Transfer : Fundamentals and Applications*. Taylor & Francis, 2000.
- [79] H. R. B. Orlande, O. Fudym, D. Maillet, and R. M. Cotta. *Thermal Measurements and Inverse Techniques*. CRC Press, 2011.
- [80] D. Petit and D. Maillet. Techniques inverses et estimation de paramètres. Partie 1. *Techniques de l'ingénieur*, (AF 4 515), 2008.
- [81] D. Petit and D. Maillet. Techniques inverses et estimation de paramètres. Partie 2. *Techniques de l'ingénieur*, (AF 4 516), 2008.
- [82] D. Maillet, Y. Jarny, and D. Petit. Problèmes inverses en diffusion thermique – Formulation et résolution du problème des moindres carrés. *Techniques de l'ingénieur*, (BE 8 266), 2011.
- [83] D. L. B. Jupp and K. Vozoff. Stable Iterative Methods for the Inversion of Geophysical Data. *Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society*, 42(3) :957–976, 1975.
- [84] B. Rémy and A. Degiovanni. Parameters estimation and measurement of thermophysical properties of liquids. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48(19-20) :4103–4120, 2005.
- [85] B. Rémy and S. André. *Thermal Measurements and Inverse Techniques*, chapter Non-linear Estimation Problems, pages 315 – 354. CRC Press, 2011.
- [86] B. Rémy, S. André, and D. Maillet. Non linear parameter estimation problems : tools for enhancing metrological objectives. In *Proceedings of Eurotherm Seminar 104 : Metti 6 Advanced Spring School "Thermal Measurements and Inverse Techniques"*, Biarritz (France), March 1–6 2015.
- [87] C. Lanczos. Linear Systems in Self-Adjoint Form. *The American Mathematical Monthly*, 65(9) :665–679, 1958.
- [88] J. Hadamard. Sur les problèmes aux dérivées partielles et leur signification physique. *Princeton University Bulletin*, 13 :49–52, 1902.
- [89] K. Levenberg. A method for the solution of certain non-linear problems in least squares. *Quarterly of Applied Mathematics*, 2(2) :164–168, 1944.
- [90] A. N. Tikhonov and V. Y. Arsenin. *Solution of Ill-posed Problems*. Winston & Sons, 1977.

- [91] D. W. Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the Society for Industrial & Applied Mathematics*, 11(2) :431–441, 1963.
- [92] N. Draper and H. Smith. *Applied regression analysis*. John Wiley & Sons, 1981.
- [93] P. Gill, W. Murray, and M. Wright. *Practical optimization*. Academic Press, Inc., 1981.
- [94] J. Pujol. The solution of nonlinear inverse problems and the Levenberg-Marquardt method. *Geophysics*, 72(4) :W1 – W16, July 2007.
- [95] R. I. Shrager, R. Muzic, and A. Jutan. leasqr.m, 1994. version 3.beta.
- [96] D. Maillet, S. André, and A. Degiovanni. Les erreurs sur la diffusivité thermique mesurée par méthode flash : confrontation théorie-expérience. *Journal de Physique III*, 3(4) :883–909, 1993.
- [97] E. Sober. *Reconstructing the Past – Parsimony, Evolution, and Inference*. MIT Press, 1989.
- [98] M. Huetz-Aubert, S. Klarsfeld, and Ph. De Dianous. Rayonnement thermique des matériaux semi-transparents. *Techniques de l'ingénieur*, (B 8 215), 1995.
- [99] J. H. Jeans. The Equations of Radiative Transfer of Energy. *Monthly Notices Roy. Astron. Soc.*, 78 :28–36, 1917.
- [100] M. F. Modest. *Radiative Heat Transfer*. Academic Press, New York, 2nd edition, 2003.
- [101] J. R. Howell, R. Siegel, and M. P. Mengüç. *Thermal Radiation Heat Transfer*. CRC Press, Inc., Boca Raton, FL, 5th edition, 2011.
- [102] R. Viskanta. Review of three-dimensional mathematical modeling of glass melting. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 177 :347–362, 1994.
- [103] D. Krause and H. Loch, editors. *Mathematical Simulation in Glass Technology (Schott Series on Glass and Glass Ceramics)*. Springer, 1st edition, 2002.
- [104] R. Viskanta and E. E. Anderson. Heat Transfer in Semitransparent Solids. *Advances in Heat Transfer*, 11(C) :317–441, 1975.
- [105] M. E. Goldstein and J. R. Howell. Boundary conditions for the diffusion solution of coupled conduction-radiation problems. Technical Report TN D-4618, NASA, 1968.
- [106] J. R. Howell and M. E. Goldstein. Effective slip coefficients for coupled conduction-radiation problems. *Journal of Heat Transfer*, 91(1) :165–166, 1969.
- [107] L. Pierrot and J. Meulemans. On temperature-slip boundary conditions to Rosseland's approximation with arbitrary wall emissivity. Rapport technique SGR/EV - LP/JM/FC n°3540/08, Saint-Gobain Recherche, 2008.
- [108] H. C. Hottel and E. S. Cohen. Radiant heat exchange in a gas-filled enclosure : Allowance for nonuniformity of gas temperature. *AIChE Journal*, 4(1) :3–14, 1958.
- [109] S. Chandrasekhar. *Radiative Transfer*. Dover Publications, New York, 1960.
- [110] G. D. Raithby and E. H. Chui. Finite-volume method for predicting a radiant heat transfer in enclosures with participating media. *Journal of Heat Transfer*, 112(2) :415–23, 1990.

- [111] W. Lick. Transient energy transfer by radiation and conduction. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 9 :119–127, 1965.
- [112] R. E. Marshak. Note on the Spherical Harmonics Method as Applied to the Milne Problem for a Sphere. *Phys. Rev.*, 71 :443–446, 1947.
- [113] S. V. Patankar. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Taylor & Francis, 1980.
- [114] P. J. Roache. *Fundamentals of Computational Fluid Dynamics*. Hermosa Publishers, 1998.
- [115] A. C. Ratzel and J. R. Howell. Two-Dimensional Radiation in Absorbing-Emitting Media Using the P-N Approximation. *Journal of Heat Transfer*, 105 :333–340, 1983.
- [116] J. J. Derby, S. Brandon, and A. G. Salinger. The diffusion and P1 approximations for modeling buoyant flow of an optically thick fluid. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 41(11) :1405–1415, 1998.
- [117] K.-B. Cheong, K.-M. Moon, and T.-H. Song. Treatment of radiative transfer in glass melts : validity of Rosseland and P-1 approximations. *Physics and Chemistry of Glasses*, 40(1) :26–33, 1999.
- [118] H. Q. Nguyen, B. Rémy, and A. Degiovanni. Fast radiative model for modeling coupled heat transfers in solid and liquid semi-transparent materials. In *Proceedings of the 4th International Symposium on Advances in Computational Heat Transfer*, 2008.
- [119] H. Q. Nguyen, B. Rémy, and A. Degiovanni. Fast and Accurate Simplified Radiative Model for Modeling Coupled Heat Transfers in Glass Forming Process. *Advanced Materials Research*, 39–40 :575–578, 2008.
- [120] H. Q. Nguyen. *Modélisation et simulation du remplissage de moules verriers : Prise en compte du transfert radiatif*. Thèse de doctorat, Université de Nancy, 2009.
- [121] J. Meulemans. Towards accurate numerical modeling of radiative heat transfer for (extra-)clear glasses - A critical comparison of the Discrete Ordinates method, the P1 and the Rosseland approximations. Rapport technique SGR/EV - JM/FC n°3528/09, Saint-Gobain Recherche, 2009.
- [122] B. Rémy and A. Degiovanni. Measurements of the thermal conductivity and thermal diffusivity of liquids. Part II : "Convective and radiative effects". *International Journal of Thermophysics*, 27(3) :949–969, 2006.
- [123] Ansys, Inc. *ANSYS FLUENT Theory Guide – Release 14.5*, October 2012.
- [124] Ansys, Inc. *ANSYS FLUENT UDF Manual – Release 14.5*, October 2012.
- [125] P. J. Roache. *Fundamentals of Verification and Validation*. Hermosa Publishers, Socorro, NM, 2009.
- [126] W. Oberkampf and C. Roy. *Verification and Validation in Scientific Computing*. Cambridge University Press, 2010.
- [127] B. Legendre. Détermination des capacités thermiques spécifiques en fonction de la température. *Techniques de l'Ingénieur*, (R 2 970), 2011.
- [128] J. Grenet and B. Legendre. Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC). *Techniques de l'Ingénieur*, (P 1 205), 2010.

- [129] B. Legendre, D. de Girolamo, P. Le Parlouër, and B. Hay. Détermination des capacités thermiques en fonction de la température par calorimétrie de chute. *Revue française de métrologie*, 5 :23–30, 2006.
- [130] P. Richet and Y. Bottinga. Heat capacity of aluminum-free liquid silicates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49(2) :471–486, 1985.
- [131] P. Richet and Y. Bottinga. Thermochemical properties of silicate glasses and liquids : A review. *Reviews of Geophysics*, 24(1) :1–25, 1986.
- [132] P. Richet. Heat capacity of silicate glasses. *Chemical Geology*, 62(1-2) :111–124, April 1987.
- [133] P. Richet. Chaleur massique des verres de silicate. Rapport technique n° 4015/91, Saint-Gobain Recherche, 1991.
- [134] P. Richet. Mesures de la viscosité d'équilibre et de la capacité calorifique de différents verres de silicate industriels. Rapport technique n° 4212/92, Saint-Gobain Recherche, 1992.
- [135] Y. Souhar. *Caractérisation thermique de matériaux anisotropes à hautes températures*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2011.
- [136] Y. Souhar, B. Rémy, and A. Degiovanni. Thermal Characterization of Anisotropic Materials at High Temperature Through Integral Methods and Localized Pulsed Technique. *International Journal of Thermophysics*, 34 :322–40, 2013.
- [137] G. Neuer and G. Jaroma-Weiland. Spectral and Total Emissivity of High-Temperature Materials. *International Journal of Thermophysics*, 19(3) :917–929, 1998.
- [138] P. E. Liley. Thermophysical properties of ice/water/steam from -20°C to 50°C . *International Journal of Mechanical Engineering Education*, 32(4) :45–50, 2005.
- [139] Y. Lefrère. *Propriétés d'absorption optique du Fe^{2+} et du Fe^{3+} dans des verres d'intérêt industriel (mesure, modélisation et implications structurales)*. Thèse de doctorat, Université Paris Diderot (Paris VII), 2002.
- [140] F. Michel. *Relations entre structure et propriétés radiatives de verres et de liquide d'oxydes en conditions in-situ*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), 2013.
- [141] N. Neuroth. Der Einfluß der Temperatur auf die spektrale Absorption von Gläsern im Ultraroten. *Glastechnische Berichte*, 25(8) :242–249, August 1952.
- [142] W. J. R. Merren. The Use of Electronic Devices in the Glass Industry. *Journal of the Society of Glass Technology*, pages 230–240, 1951.
- [143] F. J. Grove and P. E. Jellyman. The Infra-red Transmission of Glass in the Range Room Temperature to 1400°C . *Journal of the Society of Glass Technology*, 1955.
- [144] F. J. Grove. Spectral transmission of glass at high temperatures and its application to heat-transfer problems. *Journal of the American Ceramic Society*, 44(7) :317–320, 1961.
- [145] M. Coenen. Durchstrahlung des Glasbades bei Farbgläsern. *Glastechnische Berichte*, 41(1) :1–10, January 1968.

- [146] H. Franz. Infrared absorption of molten soda-lime-silica glasses containing transition metal oxides. In *IX International Congress on Glass (ICG)*, pages 243–260, Versailles (France), 1971.
- [147] B. Wedding. Measurements of High-Temperature Absorption Coefficients of Glasses. *Journal of the American Ceramic Society*, pages 102–105, 1975.
- [148] C. Ades, J.-P. Traverse, and F. Naudin. Influence de la température sur les propriétés optiques du verre fondu contenant des oxydes de métaux de transition. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 38-39 :257–262, 1980.
- [149] C. Ades, J.-P. Traverse, and F. Naudin. Spectres d’absorption des oxydes de fer, de chrome et de manganèse dans des verres silico-sodocalciques à température élevée jusqu’à 1450 °C. In *XIII International Congress on Glass (ICG)*, Hamburg (Germany), 1983.
- [150] C. Ades, T. Toganidis, and J.-P. Traverse. High temperature optical spectra of soda-lime-silica glasses and modelization in view of energetic applications. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 125(3) :272–279, 1990.
- [151] C. Ades. *Propriétés optiques des verres silicatés à haute température*. Thèse de doctorat d’état, Université Paul Sabatier de Toulouse, 1989.
- [152] A. Blažek, J. Endrýs, J. Kada, and J. Staněk. Strahlungswärmeleitfähigkeit von Glas – Einfluß der Glaszusammensetzung auf seine Wärmedurchlässigkeit. *Glastechnische Berichte*, 49(4) :75–81, 1976.
- [153] J. Endrýs, F. Geotti-Bianchini, and L. De Riu. Study of the high-temperature spectral behavior of container glass. *Glastech. Ber. Glass Sci. Technol.*, 70(5), 1997.
- [154] J. Endrýs. Measurement of radiative and effective thermal conductivity of glass. In *5th ESG Conference, European Society of Glass Science and Technology*, Prague (Czech Republic), June 1999.
- [155] O. A. Prokhorenko and O. V. Mazurin. Problems of spectrophotometry of glass-forming melts : I. The current state of the problem of reliable experimental data acquisition. *Glass Physics and Chemistry*, 25(2) :159–162, 1999.
- [156] O. A. Prokhorenko, O. V. Mazurin, M. V. Chistokolova, S. V. Tarakanov, Yu. E. Reznik, and I. N. Anfimova. Problems of spectrophotometry of glass-forming melts : II. A technique for measuring the absorption spectra of glasses and melts in the red and near-infrared ranges at temperatures from 20 to 1500 °C. *Glass Physics and Chemistry*, 26(2) :187–198, 2000.
- [157] O. A. Prokhorenko. *High Temperature Glass Melt Property Database for Process Modeling*, chapter Radiative Thermal Conductivity of Melts, pages 95 – 117. Wiley, 2005.
- [158] P. A. van Nijnatten. Evaluation of methods for the determination of thermal radiation properties of molten glass. In *International Conference on Glass Problems*, Istanbul (Turkey), 1996.
- [159] P. A. van Nijnatten and J. T. Broekhuijse. A high temperature optical test facility for determining the absorption of glass at melting temperatures. In *5th ESG Conference, European Society of Glass Science and Technology*, Prague (Czech Republic), June 1999.

- [160] P. A. van Nijnatten, J. T. Broekhuijse, and A. J. Faber. Spectral Photon Conductivity of Glass at Forming and Melting Temperatures. In *5th ESG Conference, European Society of Glass Science and Technology*, Prague (Czech Republic), June 1999.
- [161] P. A. van Nijnatten. Accurate determination of spectral absorption of highly transparent optical glass. In *5th ESG Conference, European Society of Glass Science and Technology*, Prague (Czech Republic), June 1999.
- [162] A. M. Efimov and P. A. van Nijnatten. High temperature optical properties of glass melts in the 0.95-4.5 μm range : an example of television glass melt. In *XIX International Congress on Glass (ICG)*, Edinburgh (UK), 2001.
- [163] D. S. Goldman and J. I. Berg. Spectral study of ferrous iron in Ca-Al-borosilicate glass at room and melt temperatures. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 38-39 :183-188, 1980.
- [164] J. I. Berg. Near infrared absorption coefficient of molten glass by emission spectroscopy. *International Journal of Thermophysics*, 2(4) :381-394, 1981.
- [165] D. Banner. *Propriétés radiatives des verres et des fontes de silicates en fonction de la température. Modélisation des transferts thermiques*. Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Paris, 1990.
- [166] D. Banner and S. Klarsfeld. High temperature infrared spectra of silicate melts. *Physics of Non-Crystalline Solids*, pages 371-375, 1992.
- [167] R. Fabris, J.-C. Huclin, M. Sakami, and M. Lallemand. Identification method for infrared absorption spectra of semitransparent media by their emission data. Application to lime-aluminosilicate glasses at high temperatures. *Glastechnische Berichte*, 67(4) :81-86, 1994.
- [168] M. Sakami and M. Lallemand. Spectres infrarouges de verres à haute température par inversion de l'émission thermique de couches anisothermes. *Journal de Physique III, EDP Sciences*, 4(5) :953-965, 1994.
- [169] H. Hasegawa, H. Ohta, H. Shibata, and Y. Waseda. Recent Development in the Investigation on Thermal Conductivity of Silicate Melts. *High Temperature Materials and Processes*, 31(4-5) :491-499, 2012.
- [170] P. Jund and R. Jullien. Molecular-dynamics calculation of the thermal conductivity of vitreous silica. *Physical Review B*, 59(21) :13707-13711, 1999.
- [171] B. Guillot and N. Sator. A computer simulation study of natural silicate melts. Part I : Low pressure properties. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(5) :1249-1265, 2007.
- [172] B. Guillot and N. Sator. A computer simulation study of natural silicate melts. Part II : High pressure properties. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(18) :4538-4556, 2007.
- [173] A. Pedone. Properties Calculations of Silica-Based Glasses by Atomistic Simulations Techniques : A Review. *The Journal of Physical Chemistry C*, 113(49) :20773-20784, 2009.
- [174] Joint Committee for Guides in Metrology (JCGM). Evaluation des données de mesure – Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure. Guide JCGM 100 :2008, JCGM, 2008.

- [175] D. Maillet, S. André, B. Rémy, and A. Degiovanni. Regularized parameter estimation through iterative rescaling (PETIR) : an alternative to Levenberg-Marquardt's algorithm. 28 pages, 13 figures, 2 test cases, April 2013.
- [176] G. E. P. Box and G. C. Tiao. *Bayesian Inference in Statistical Analysis*. John Wiley & Sons, 1st edition, 1973.
- [177] J. Kaipio and E. Somersalo. *Statistical and Computational Inverse Problems*. Springer-Verlag, 2005.
- [178] D. Maillet, S. André, J.-C. Batsale, A. Degiovanni, and C. Moyne. *Thermal Quadrupoles : Solving the Heat Equation through Integral Transforms*. John Wiley & Sons, 2000.
- [179] H. Stehfest. Algorithm 368 : Numerical Inversion of Laplace Transforms [D5]. *Communications of the ACM*, 13(1) :47–49, January 1970.
- [180] F. de Hoog, J. Knight, and A. Stokes. An Improved Method for Numerical Inversion of Laplace Transforms. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing*, 3(3) :357–366, September 1982.
- [181] D. Maillet, C. Moyne, and B. Rémy. Effect of a thin layer on the measurement of the thermal diffusivity of a material by a flash method. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 43(21) :4057–4060, 2000.
- [182] L. Shartsis and S. Spinner. Viscosity and density of molten optical glasses. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 46(3) :176, 1951.
- [183] L. Shartsis, S. Spinner, and W. Capps. Density, expansivity, and viscosity of molten alkali silicates. *Journal of the American Ceramic Society*, 35(6) :155–160, 1952.
- [184] L. Shartsis, W. Capps, and S. Spinner. Density and expansivity of alkali borates and density characteristics of some other binary glasses. *Journal of the American Ceramic Society*, 36(2) :35–43, 1953.

Annexes

Modélisation d'un système tricouche

Dans cette annexe, on s'intéresse à un système tricouche dans lequel les propriétés thermo-physiques de la couche intermédiaire (par exemple un liquide) sont inconnues [84]. La Figure A.1 représente une vue schématique du problème considéré. Celui-ci peut-être résolu semi-analytiquement à l'aide de la méthode des quadripôles thermiques [178]. La représentation quadripolaire du problème, supposé conducteur pur dans les matériaux, est illustrée sur la Figure A.2 avec $1/hS$ la résistance thermique de surface (i.e., les pertes thermiques avec l'environnement extérieur au système), A_i , B_i , C_i et D_i les coefficients des matrices de transferts pour les parois et le liquide. L'indice i renvoie au liquide (l) ou bien aux parois (w).

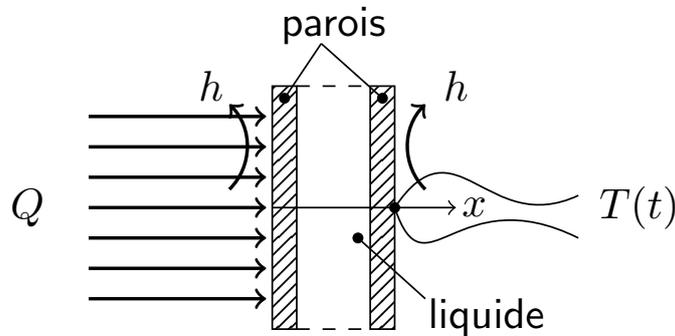


Fig. A.1 Vue schématique du système tricouche considéré

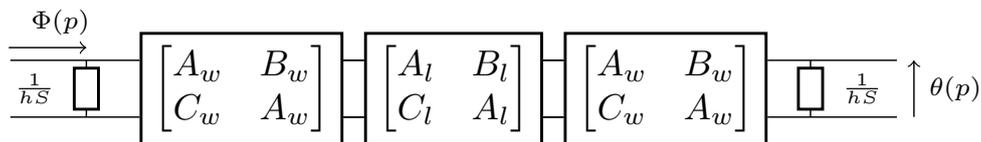


Fig. A.2 Représentation quadripolaire

Leur expression est donnée par :

$$A_i = D_i = \cosh \left(\sqrt{\frac{pe_i^2}{a_i}} \right) \quad (\text{A.1})$$

$$B_i = \frac{1}{k_i S \sqrt{\frac{p}{a_i}}} \sinh \left(\sqrt{\frac{pe_i^2}{a_i}} \right) \quad (\text{A.2})$$

$$C_i = k_i S \sqrt{\frac{p}{a_i}} \sinh \left(\sqrt{\frac{pe_i^2}{a_i}} \right) \quad (\text{A.3})$$

avec p la variable de Laplace (en s^{-1}), a_i la diffusivité thermique (en $m^2 s^{-1}$), k_i la conductivité thermique (en $W m^{-1} K^{-1}$), e_i l'épaisseur (en m) et S l'aire unitaire (en m^2).

La température en face arrière $\theta(p)$ vaut alors :

$$\theta(p) = \frac{\Phi(p)}{C + 2AhS + B(hS)^2} \quad (\text{A.4})$$

A , B et C représentent les coefficients de la matrice de transfert obtenue en faisant le produit des matrices de transfert des trois matériaux :

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & A \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_w & B_w \\ C_w & A_w \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_l & B_l \\ C_l & A_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_w & B_w \\ C_w & A_w \end{bmatrix} \quad (\text{A.5})$$

avec

$$A = (A_w A_l + B_w C_l) A_w + (A_w B_l + B_w A_l) C_w \quad (\text{A.6})$$

$$B = (A_w A_l + B_w C_l) B_w + (A_w B_l + B_w A_l) A_w \quad (\text{A.7})$$

$$C = (C_w A_l + A_w C_l) A_w + (C_w B_l + A_w A_l) C_w \quad (\text{A.8})$$

En considérant que le pulse de chaleur $\varphi(t)$ reçu par le système est d'une durée très courte (i.e., le Dirac d'un flux), alors $\Phi(p)$ est constant et est égale à l'énergie du pulse Q .

On utilise ensuite un algorithme numérique (Stehfest [179] ou de Hoog [180] par exemple) pour réaliser l'inversion de la transformée de Laplace et revenir dans l'espace temporel réel.

La Figure A.3 illustre des exemples de thermogrammes pour deux liquides différents (eau et huile) et pour deux épaisseurs différentes des parois en cuivre (i.e., 0,5 et 2 mm). Les valeurs des paramètres utilisées pour les simulations sont reportées dans la Table A.1.

Grandeur	Symbole	Unité	Parois	Liquide	
				eau	huile
Epaisseur	e_i	mm	0,5 ou 2		4,5
Conductivité thermique	k_i	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	395	0,597	0,132
Diffusivité thermique	a_i	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	$1,15 \times 10^{-4}$	$1,43 \times 10^{-7}$	$7,33 \times 10^{-8}$
Densité d'énergie	Q/S	J m^{-2}		4×10^4	
Coeff. de pertes	h	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$		5	

Tab. A.1 Valeurs des paramètres pour les systèmes tricouches cuivre/eau/cuivre et cuivre/huile/cuivre

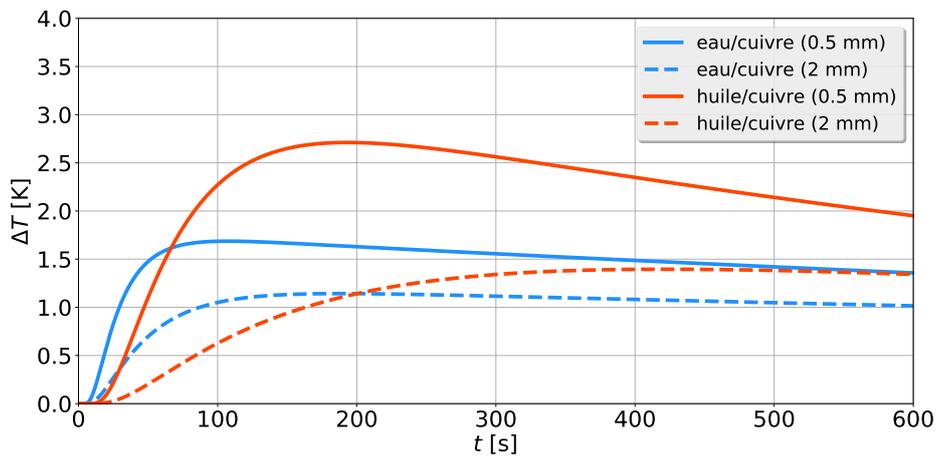


Fig. A.3 Exemples de thermogrammes en face arrière pour des systèmes tricouches cuivre/eau/cuivre et cuivre/huile/cuivre

Identifiabilité des paramètres – Compléments

B.1 Etude de sensibilité et approche stochastique

La Figure B.1 représente les thermogrammes réduits et les sensibilités réduites adimensionnées pour les différentes configurations étudiées.

La Figure B.2 illustre la mise en évidence d'une combinaison linéaire des sensibilités réduites adimensionnées de la diffusivité thermique, de l'épaisseur optique et du nombre de Planck (cf. Equation 6.4).

$$\exists(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) \in \mathbb{R}^3 : \Sigma_a^* + \alpha_1 \Sigma_{\tau_0}^* + \alpha_2 \Sigma_{N_{Pl}}^* = 0 \quad (\text{B.1})$$

Les valeurs singulières des matrices de sensibilités réduites adimensionnées Σ^* sont reportées dans la Table B.1.

Cas	Valeurs singulières					
	w ₁	w ₂	w ₃	w ₄	w ₅	w ₆
1	24,3156	6,3277	0,5668	0,1801	0,0680	0,0652
2	24,3500	5,7664	0,5305	0,1179	0,0648	0,0597
3	24,1881	5,8496	1,0277	0,0827	0,0702	0,0611
4	24,1208	6,2892	1,0353	0,0703	0,0627	0,0582

Tab. B.1 Valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{Pl} \ \varepsilon \ K]^t$

Les matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ obtenues pour chaque cas sont reportées dans la Table B.2.

La Figure B.3 représente les incertitudes relatives des paramètres inconnus en fonction du paramètre d'amortissement de l'algorithme de Levenberg-Marquardt.

La Figure B.4 représente l'influence du paramètre d'amortissement μ et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$.

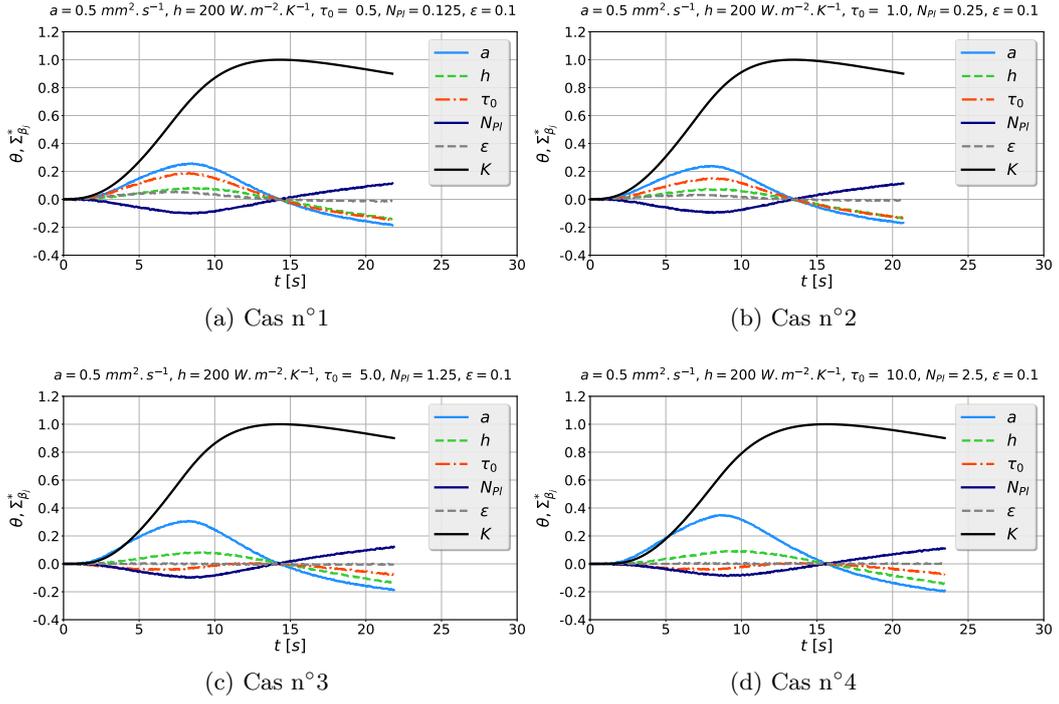


Fig. B.1 Thermogrammes réduits et sensibilités réduites adimensionnées associées avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{pl} \ \epsilon \ K]^T$

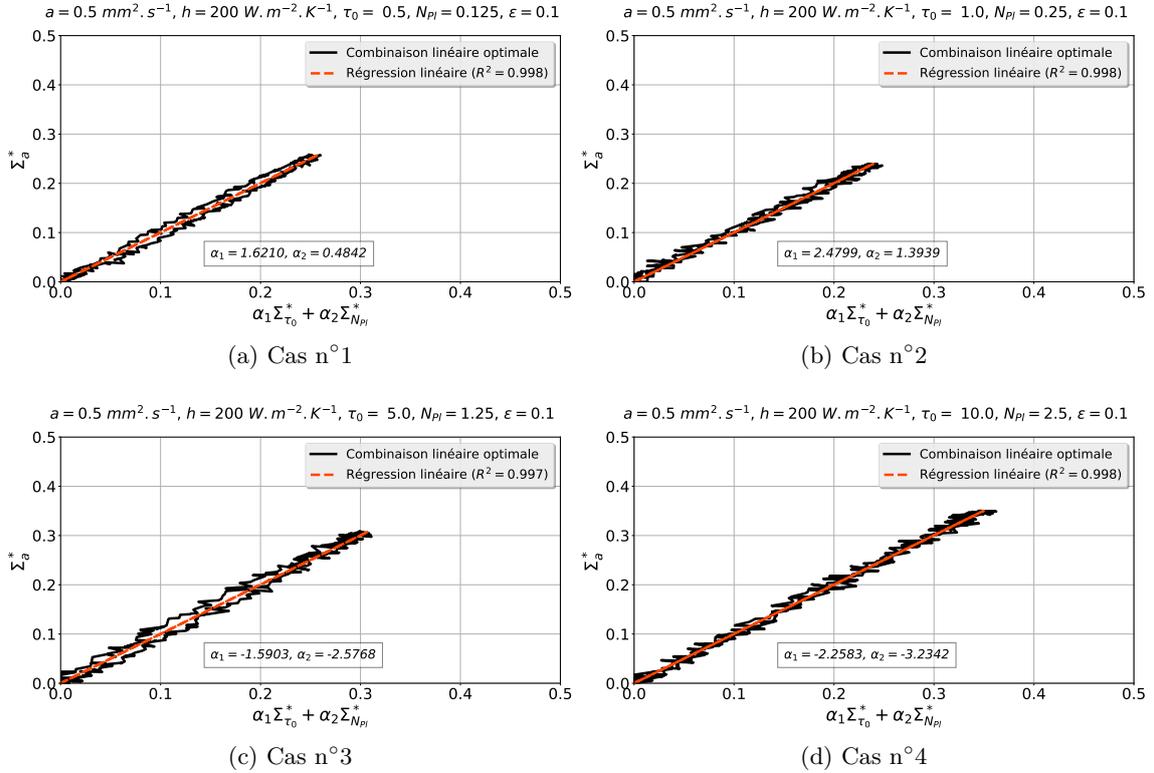


Fig. B.2 Combinaisons linéaires entre les sensibilités réduites adimensionnées Σ_a^* , $\Sigma_{\tau_0}^*$ et $\Sigma_{N_{pl}}^*$

$$\begin{bmatrix} 6,6249 & 0,3765 & 0,8856 & 0,1681 & 0,5646 & 0,4055 \\ & 7,9209 & 0,1952 & 0,8481 & 0,5573 & 0,3401 \\ & & 11,6651 & 0,1960 & 0,7319 & 0,3406 \\ & & & 13,2034 & 0,1114 & 0,2396 \\ & & & & 8,2912 & 0,0320 \\ & & & & & 0,0729 \end{bmatrix}$$

(a) Cas n°1

$$\begin{bmatrix} 7,4552 & 0,3771 & 0,8431 & 0,1620 & 0,7299 & 0,0147 \\ & 8,0182 & 0,0866 & 0,8424 & 0,0452 & 0,4293 \\ & & 12,3124 & 0,3154 & 0,4970 & 0,1709 \\ & & & 14,3405 & 0,0179 & 0,0715 \\ & & & & 10,8349 & 0,2304 \\ & & & & & 0,0752 \end{bmatrix}$$

(b) Cas n°2

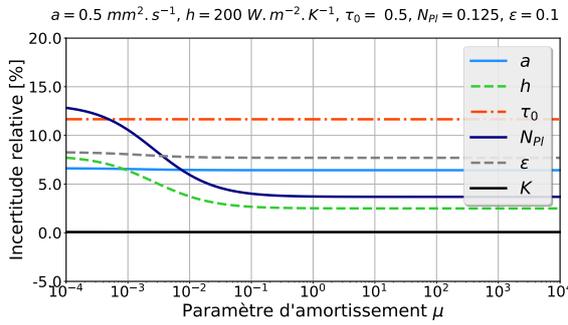
$$\begin{bmatrix} 4,4588 & 0,1796 & 0,8297 & 0,6939 & 0,0176 & 0,3685 \\ & 11,095 & 0,6726 & 0,5824 & 0,0722 & 0,6019 \\ & & 8,3882 & 0,1954 & 0,0208 & 0,1265 \\ & & & 13,9104 & 0,0926 & 0,7318 \\ & & & & 14,5348 & 0,3672 \\ & & & & & 0,1186 \end{bmatrix}$$

(c) Cas n°3

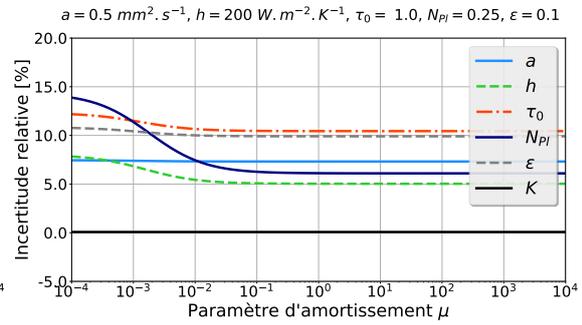
$$\begin{bmatrix} 4,5014 & 0,5720 & 0,9651 & 0,5503 & 0,0908 & 0,2040 \\ & 11,5372 & 0,7410 & 0,3690 & 0,0315 & 0,6316 \\ & & 12,2308 & 0,3404 & 0,0619 & 0,3987 \\ & & & 12,8364 & 0,0594 & 0,4096 \\ & & & & 16,8976 & 0,1661 \\ & & & & & 0,0767 \end{bmatrix}$$

(d) Cas n°4

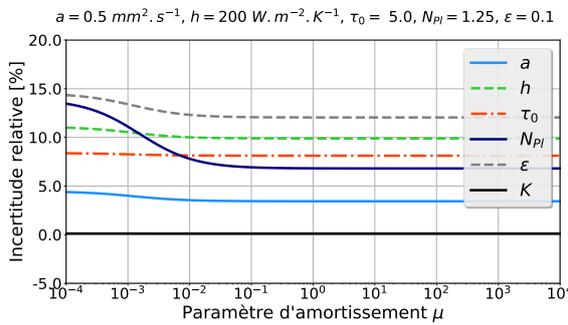
Tab. B.2 Matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ calculées à partir des matrices de sensibilités réduites adimensionnées Σ^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{PI} \ \varepsilon \ K]^T$. On représente uniquement les diagonales supérieures pour faciliter la lecture.



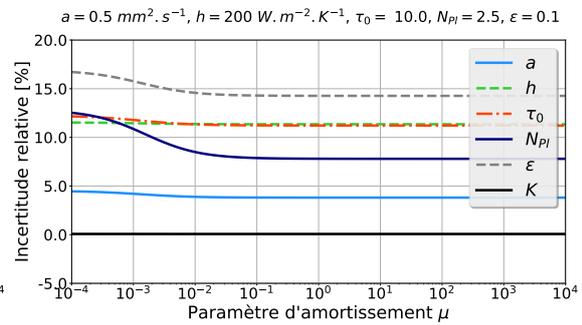
(a) Cas n°1



(b) Cas n°2



(c) Cas n°3



(d) Cas n°4

Fig. B.3 Incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ en fonction du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{PI} \ \varepsilon \ K]^T$

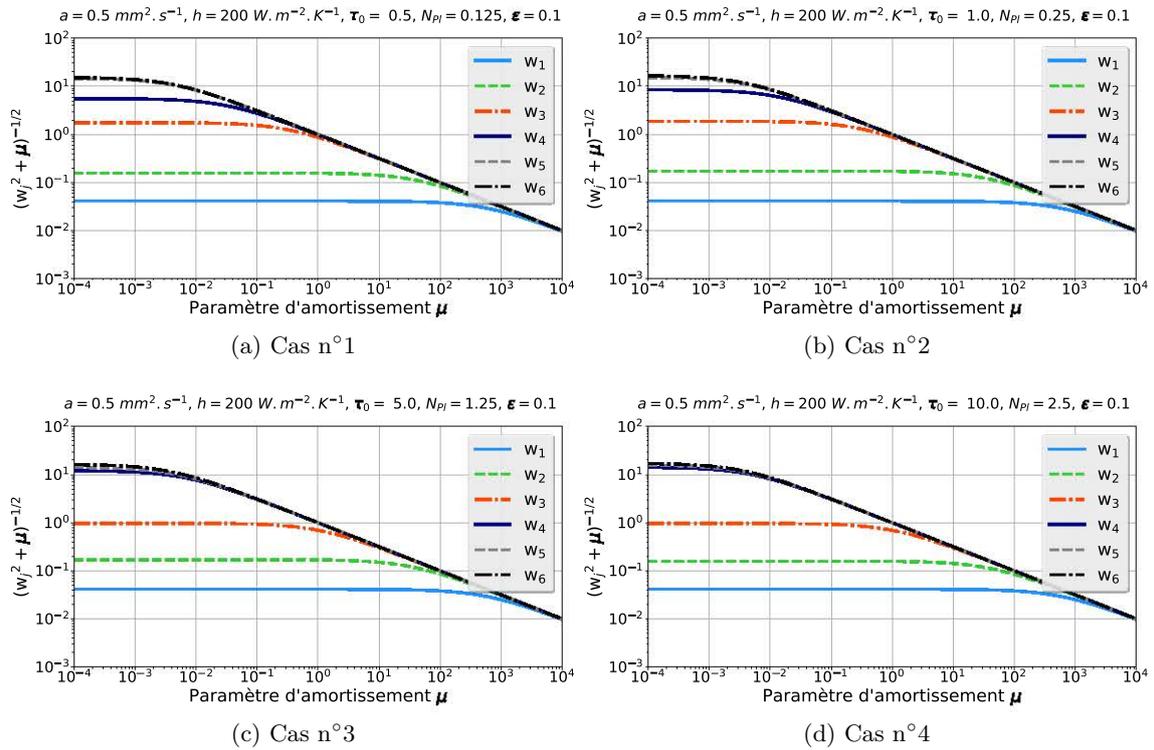


Fig. B.4 Influence du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ N_{PI} \ \varepsilon \ K]^T$

B.2 Réduction du nombre de paramètres

La Figure B.5 représente les thermogrammes réduits et les sensibilités réduites adimensionnées pour les différentes configurations étudiées.

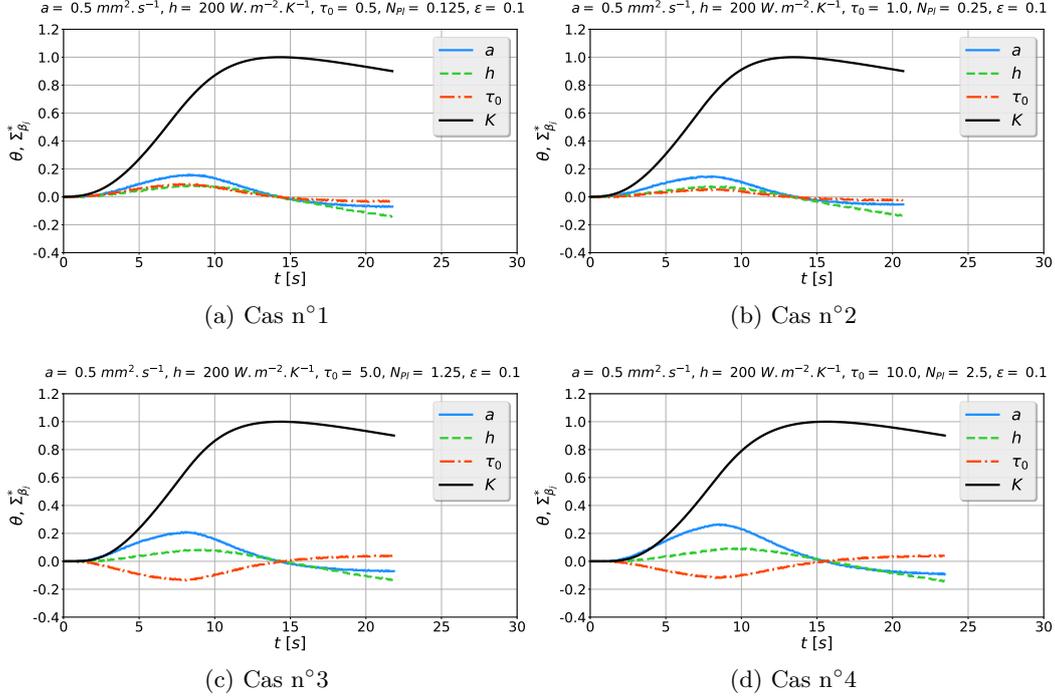


Fig. B.5 Thermogrammes réduits et sensibilités réduites adimensionnées associées avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$

Les valeurs singulières des matrices de sensibilités réduites adimensionnées Σ^* sont reportées dans la Table B.3.

Cas	Valeurs singulières			
	w ₁	w ₂	w ₃	w ₄
1	24,3117	3,4598	0,6031	0,1079
2	24,3494	3,0370	0,5917	0,0816
3	24,1872	4,1789	0,8413	0,0991
4	24,1142	4,7639	0,8707	0,0706

Tab. B.3 Valeurs singulières de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$

Les matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ obtenues pour chaque cas sont reportées dans la Table B.4.

La Figure B.6 représente les incertitudes relatives des paramètres inconnus en fonction du paramètre d'amortissement de l'algorithme de Levenberg-Marquardt.

La Figure B.7 représente l'influence du paramètre d'amortissement μ et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$.

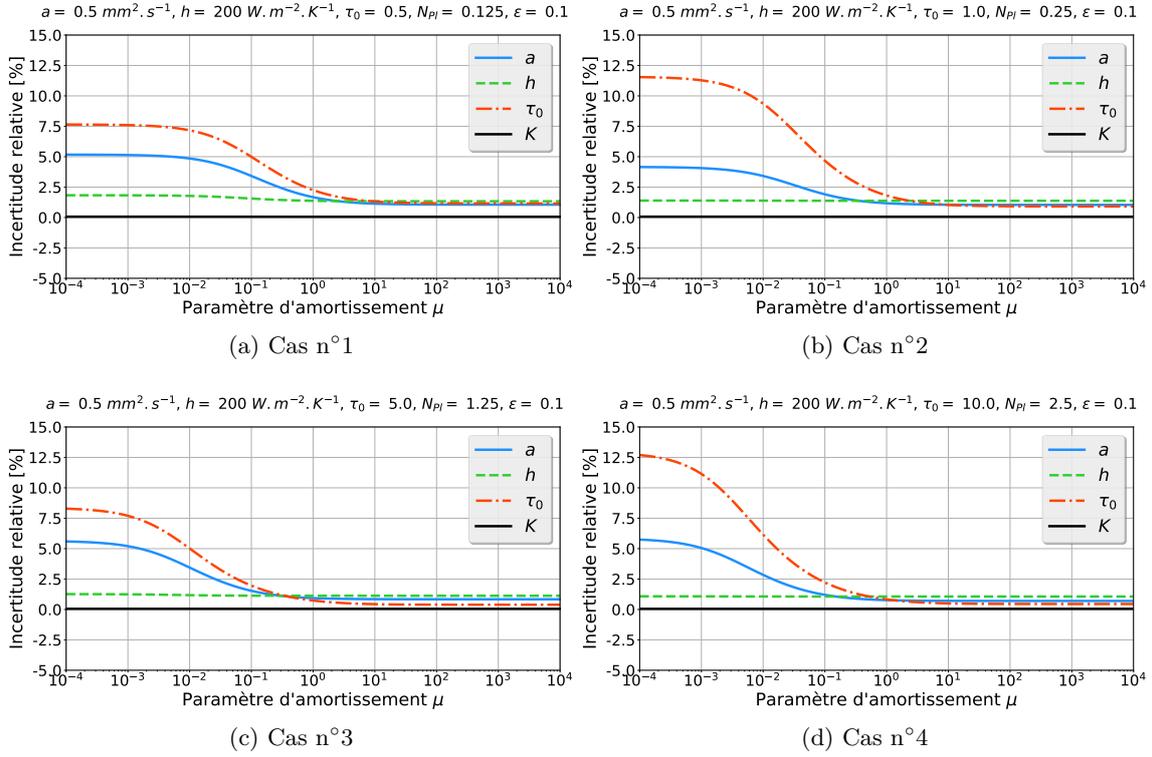


Fig. B.6 Incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\mathbf{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ en fonction du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$

$$\begin{bmatrix} 5,1731 & 0,7540 & 0,9745 & 0,5221 \\ & 1,8310 & 0,6006 & 0,7757 \\ & & 7,6514 & 0,3741 \\ & & & 0,0686 \end{bmatrix}$$

(a) Cas n°1

$$\begin{bmatrix} 4,1612 & 0,0312 & 0,9641 & 0,5157 \\ & 1,3935 & 0,2152 & 0,6224 \\ & & 11,5744 & 0,3353 \\ & & & 0,0695 \end{bmatrix}$$

(b) Cas n°2

$$\begin{bmatrix} 5,6393 & 0,5785 & 0,9930 & 0,1383 \\ & 1,2645 & 0,4910 & 0,4006 \\ & & 8,3592 & 0,2122 \\ & & & 0,0547 \end{bmatrix}$$

(c) Cas n°3

$$\begin{bmatrix} 5,8401 & 0,2989 & 0,9955 & 0,1279 \\ & 1,0833 & 0,2179 & 0,5649 \\ & & 12,9115 & 0,0711 \\ & & & 0,0525 \end{bmatrix}$$

(d) Cas n°4

Tab. B.4 Matrices $\mathbf{V}_{\text{cor}}(\hat{\beta})$ calculées à partir des matrices de sensibilités réduites adimensionnées Σ^* avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$. On représente uniquement les diagonales supérieures pour faciliter la lecture.

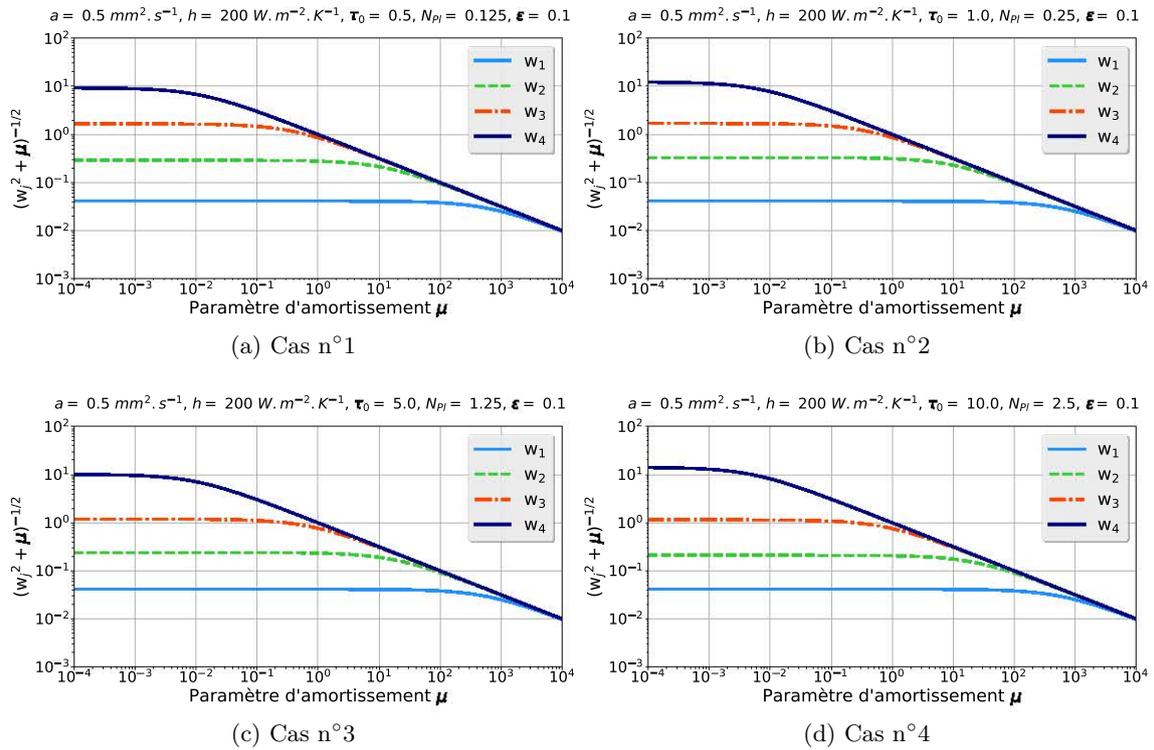


Fig. B.7 Influence du paramètre d'amortissement μ de l'algorithme de Levenberg-Marquardt et du carré des valeurs singulières (w_j^2) de la matrice de sensibilité réduite adimensionnée Σ^* sur les incertitudes relatives calculées à partir de la matrice de variance-covariance régularisée $\text{cov}(\hat{\beta}_{\text{reg}})$ avec $\beta = [a \ h \ \tau_0 \ K]^T$

B.3 Estimations à partir de signaux synthétiques bruités (Monte Carlo)

La Figure B.8 représente l'évolution de l'erreur relative moyenne (glissante) associée à chaque paramètre au cours de l'étude statistique (Monte Carlo) réalisée à partir de signaux synthétiques bruités. L'erreur relative moyenne converge bien vers une valeur constante pour chaque cas.

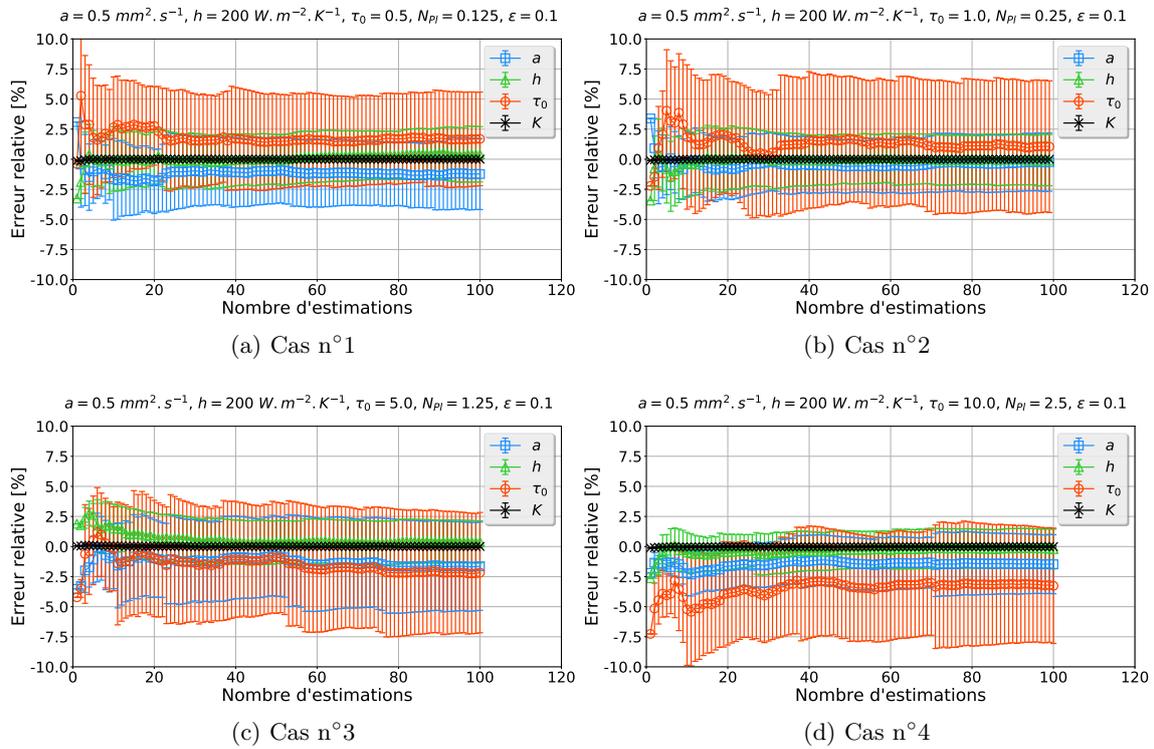


Fig. B.8 Erreur relative moyenne des valeurs estimées des paramètres en fonction du nombre d'estimations réalisées à partir de signaux synthétiques bruités.

Dispositif expérimental – Optimisation de l'épaisseur de la cellule de mesure

Dans cette annexe, nous allons nous intéresser à l'optimisation de l'épaisseur des parois de la cellule de mesure en nous ramenant à un système tricouche constitué d'un liquide et de parois métalliques. Ce problème, supposé conducteur pur dans les matériaux, peut être résolu semi-analytiquement à l'aide de la méthode des quadripôles thermiques (cf. Annexe A).

Le problème d'estimation de paramètres étant non-linéaire, l'incertitude relative (i.e., la variance) liée à l'estimation des quatre paramètres β_j inconnus du problème (i.e., $\beta_1 = e_l/\sqrt{a_l}$, $\beta_2 = e_l/k_l$, $\beta_3 = Q/S$ et $\beta_4 = h$) peut être minimisée par un choix optimal de l'épaisseur des parois métalliques.

La Figure C.1 représente la variance des paramètres inconnus β_1 et β_2 en fonction de l'épaisseur des parois pour plusieurs combinaisons de liquides/matériaux (i.e., cuivre/eau/cuivre, cuivre/huile/cuivre et PtRh/verre fondu/PtRh). Les valeurs des paramètres utilisés pour les simulations sont reportées dans la Table C.1 pour le verre fondu et les parois en platine rhodié. Les valeurs des paramètres pour les autres liquides (eau et huile) avec les parois en cuivre se trouvent en Annexe A.

Grandeur	Symbole	Unité	Parois	Liquide
			Pt/Rh 10%	verre fondu
Epaisseur	e_i	m	$10^{-5} - 10^{-2}$	4
Conductivité thermique	k_i	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	72	1
Diffusivité thermique	a_i	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	2×10^{-5}	5×10^{-7}
Densité d'énergie	Q/S	J m^{-2}		4×10^4
Coeff. de pertes	h	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$		200

Tab. C.1 Valeurs des paramètres pour le système tricouche PtRh/verre fondu/PtRh

Au premier abord, les résultats peuvent paraître surprenant : les variances sont plus grandes pour les faibles épaisseurs. L'utilisation de parois de faible épaisseur n'améliore pas l'estimation des paramètres, sauf si celles-ci sont tellement faibles qu'elles peuvent être négligées.

On est en présence de deux comportements différents suivant l'épaisseur des parois :

1. Pour des épaisseurs inférieures à quelques centaines de microns, on a un système ho-

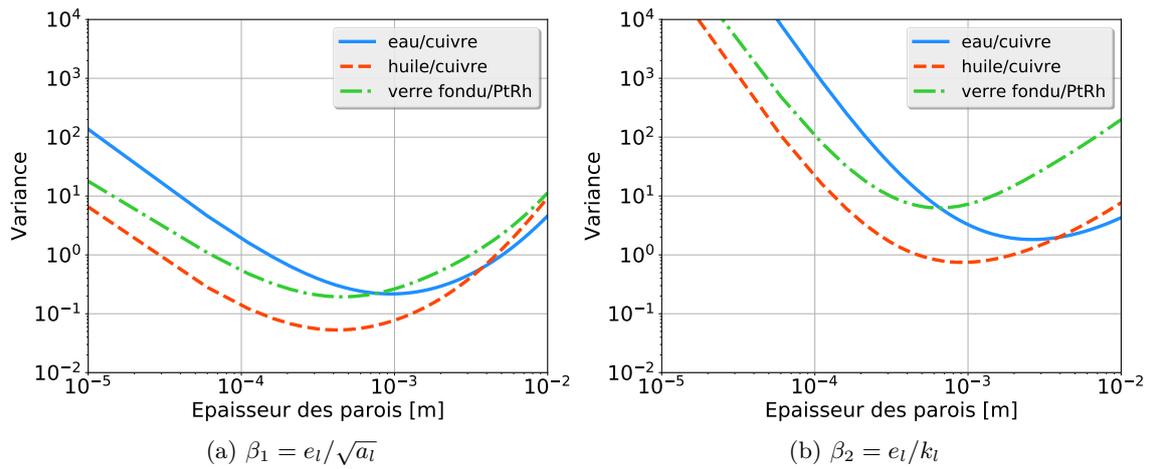


Fig. C.1 Variance des paramètres inconnus β_1 et β_2 en fonction de l'épaisseur des parois

mogène : la réponse du système est celle d'un milieu homogène de diffusivité *apparente* différente de celle du liquide.

2. Pour des épaisseurs supérieures à quelques centaines de microns, nous avons un système tricouche non-homogène.

On peut alors mettre en place deux stratégies distinctes :

1. Dans le premier cas, on peut estimer une diffusivité *apparente* à partir d'une méthode classique avec trois paramètres inconnus (la diffusivité thermique a , le coefficient de pertes thermiques h et l'énergie du pulse Q). On peut ensuite corriger la diffusivité *apparente* estimée connaissant les propriétés des parois et la chaleur spécifique du fluide [181].
2. Dans le deuxième cas, l'épaisseur optimale est comprise entre 0,5 et 2 mm. On utilise alors un modèle à quatre paramètres inconnus afin d'estimer les propriétés thermiques du liquide.

Pour des raisons pratiques (tenue mécanique de la cellule de mesure notamment), nous avons choisi la deuxième approche. Nous avons fixé l'épaisseur des parois de la cellule de mesure en Pt/Rh 10 % à 1 mm.

D.1 Chimie des échantillons

Les analyses chimiques quantitatives des échantillons étudiés ici sont reportées dans les Tables D.1 (résultats exprimés en % massique) et D.2 (résultats exprimés en % molaire). Ces analyses ont été réalisées par les laboratoires des usines ou bien par le groupe « Chimie Analytique » du département EMC² de SGR.

D.2 Propriétés des échantillons

La chaleur spécifique des échantillons a été mesurée par calorimétrie différentielle à balayage (ou DSC, de l'anglais : *Differential Scanning Calorimetry*) par le groupe « Minéralogie Appliquée » du département EMC² de SGR.

Les chaleurs spécifiques des verres fondus (i.e., pour des températures supérieures à 1000 °C) sont constantes et valent :

- 1,51 J kg⁻¹ K⁻¹ pour l'échantillon AS, et
- 1,43 J kg⁻¹ K⁻¹ pour les échantillons SC1 et SC2.

L'incertitude associée à la mesure de la chaleur spécifique est de l'ordre de 3%*.

La masse volumique a été mesurée par la méthode (directe) du principe d'Archimède [182–184] par le *Laboratory of Glass Properties* (LGP) à Saint-Petersbourg (Russie) pour l'échantillon AS et par la *Stazione Sperimentale del Vetro* (SSV) à Murano (Italie) pour les échantillons SC1 et SC2. Les valeurs mesurées de la masse volumique en fonction de la température sont illustrées sur la Figure D.1. Les valeurs issues des régressions linéaires sont reportées dans la Table D.3. L'incertitude associée à la mesure de la masse volumique est inférieure à 0,5%.

L'indice de réfraction des échantillons a été considéré comme constant et vaut 1,52 pour tous les échantillons. Cette valeur repose sur des mesures de spectrophotométrie infrarouge réalisées à température ambiante dans le département TMM de SGR.

*Le protocole de mesure a été validé à l'aide d'une inter-comparaison avec des mesures de calorimétrie par chute réalisées par Pascal Richet et ses collaborateurs à l'Institut de Physique du Globe de Paris (IPGP) [133, 134].

Tab. D.1 Analyses chimiques quantitatives complètes (résultats exprimés en % massique)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	MgO	Fe ₂ O ₃	P ₂ O ₅	TiO ₂	BaO	MnO	ZrO ₂	SO ₃	Total
AS	43,7	20,5	7,4	3,78	15,1	2,5	5,41	0,09	0,59	0,6	0,19	0,37	0,06	100,0
SC1	72,2	0,7	13,6	0,24	8,6	3,8	0,60	-	-	-	-	-	0,21	100,0
SC2	72,1	0,6	13,5	0,06	9,4	4,0	0,07	-	-	-	-	-	0,28	100,0

Tab. D.2 Analyses chimiques quantitatives complètes (résultats exprimés en % molaire)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	MgO	Fe ₂ O ₃	P ₂ O ₅	TiO ₂	BaO	MnO	ZrO ₂	SO ₃	Total
AS	49,5	13,7	8,1	2,73	18,3	4,3	2,30	0,04	0,50	0,07	0,15	0,20	0,05	100,0
SC1	71,3	0,4	13,0	0,15	9,1	5,6	0,22	-	-	-	-	-	0,16	100,0
SC2	70,1	0,4	12,9	0,04	9,9	5,9	0,03	-	-	-	-	-	0,21	100,0

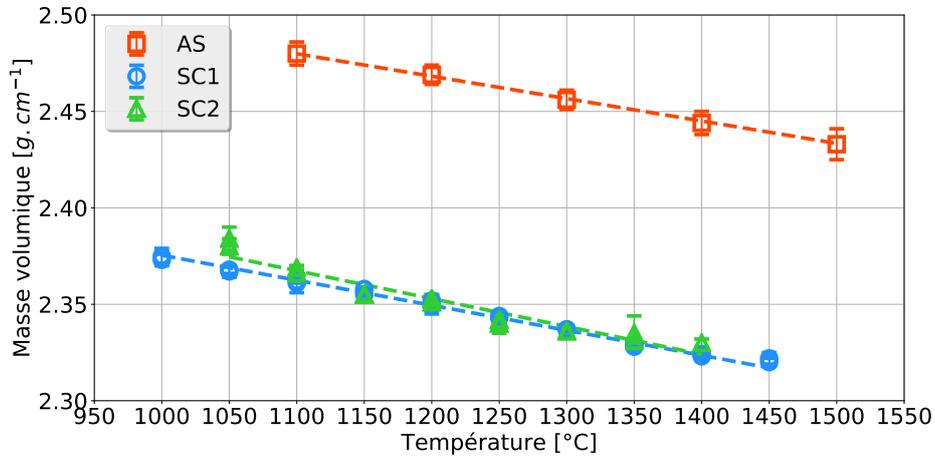


Fig. D.1 Masse volumique mesurée en fonction de la température pour les échantillons AS, SC1 et SC2. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

T [°C]	ρ [g cm ⁻³]		
	AS	SC1	SC2
1000	n.d.	2,375	2,381
1050	n.d.	2,368	2,373
1100	2,480	2,362	2,365
1150	2,475	2,355	2,358
1200	2,469	2,349	2,350
1250	2,463	2,343	2,342
1300	2,456	2,336	2,335
1350	2,450	2,330	2,327
1400	2,444	2,323	2,319

Tab. D.3 Masse volumique en fonction de la température pour les échantillons AS, SC1 et SC2

D.3 Propriétés de l’alliage de platine rhodié

La conductivité thermique de l’alliage de Pt/Rh 10% a été déterminée à l’aide de la loi de Wiedemann-Franz qui relie la conductivité électrique et la conductivité thermique d’un métal :

$$\frac{k}{\gamma} = LT \quad (\text{D.1})$$

où k , γ , L et T sont la conductivité thermique (en $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$), la conductivité électrique (en S m^{-1}), la constante de Lorenz ($2,44 \times 10^{-8} \text{ W } \Omega \text{ K}^{-2}$) et la température absolue (en K), respectivement.

On a utilisé les valeurs de résistivité électrique disponibles dans la base de données PGM[†]. Les valeurs ainsi calculées de la conductivité thermique en fonction de la température sont reportées dans la Table D.4.

La capacité thermique a été considérée comme constante et vaut $3,61 \text{ MJ m}^{-3}$ (base de données PGM).

L’émissivité a été considérée comme constante et vaut 0,165 [137].

T [°C]	k [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$]
1000	66,7
1050	67,5
1100	68,2
1150	69,0
1200	69,8
1250	70,5
1300	71,3
1350	72,1
1400	72,8
1450	73,6

Tab. D.4 Conductivité thermique en fonction de la température pour l’alliage Pt/Rh 10%

[†]<http://www.pgmdatabase.com/jmpgm/index.jsp>

Résultats expérimentaux – Compléments

E.1 Echantillon AS**E.1.1 Thermogrammes expérimentaux**

Les thermogrammes réduits expérimentaux obtenus pour l'échantillon AS entre 1100 et 1400 °C sont représentés sur les Figures E.1 à E.7. Pour chaque température, entre deux et quatre thermogrammes expérimentaux ont été exploités. On observe une relative bonne répétabilité des thermogrammes sur la gamme de température investiguée sauf à 1200 °C (température de liquidus de l'échantillon AS). Le rapport signal sur bruit est relativement bon pour l'ensemble des thermogrammes. Le bruit de mesure croît légèrement lorsque la température augmente.

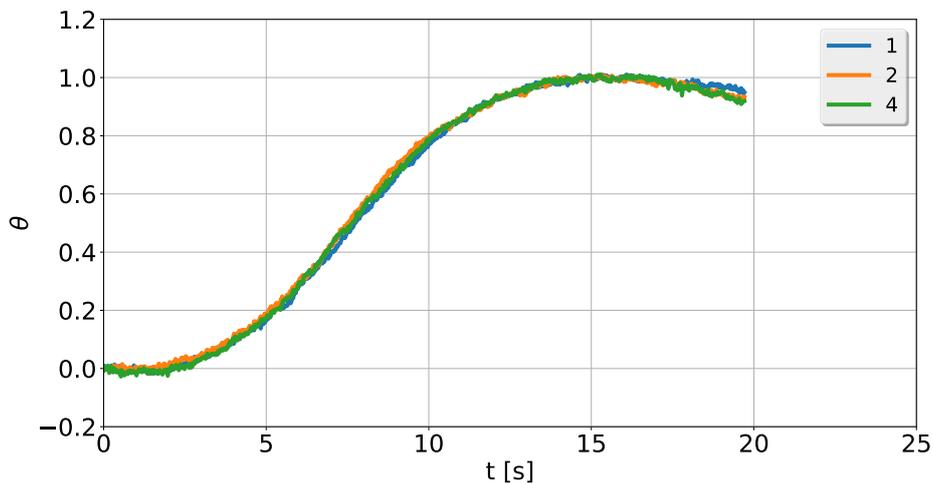


Fig. E.1 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1100 °C pour l'échantillon AS

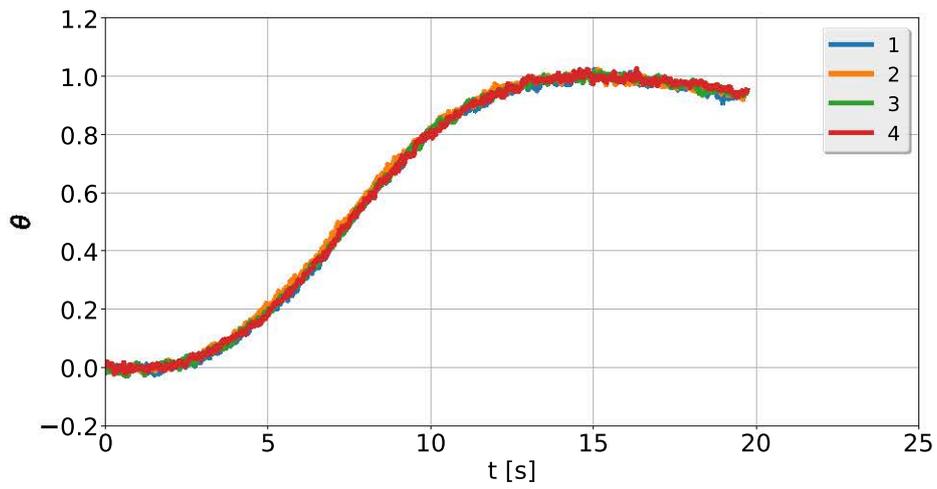


Fig. E.2 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1150 °C pour l'échantillon AS

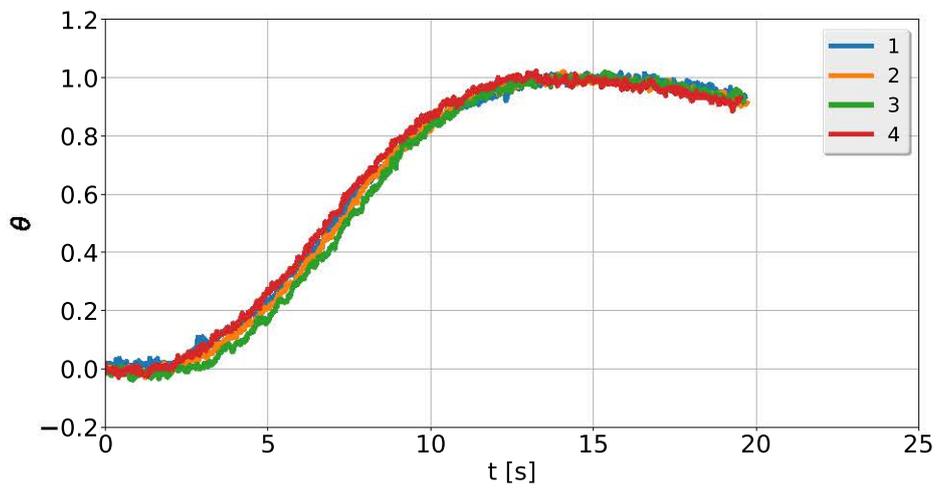


Fig. E.3 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1200 °C pour l'échantillon AS

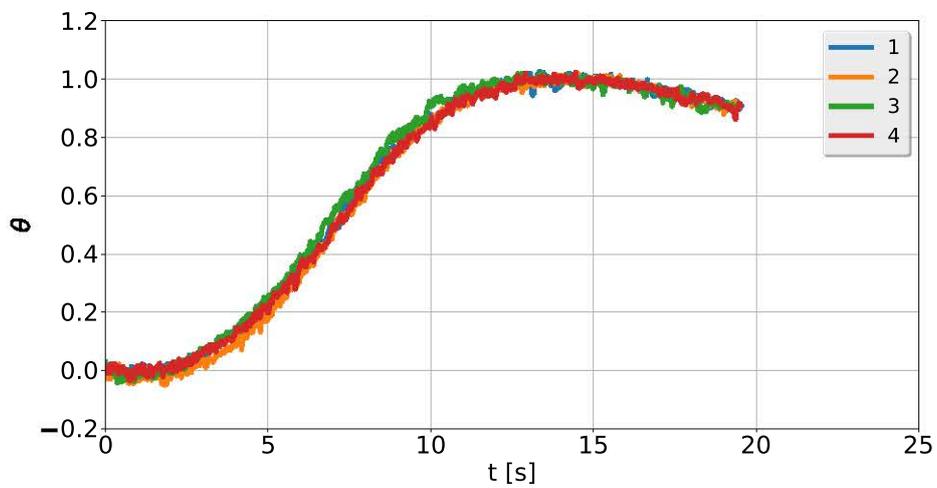


Fig. E.4 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1250 °C pour l'échantillon AS

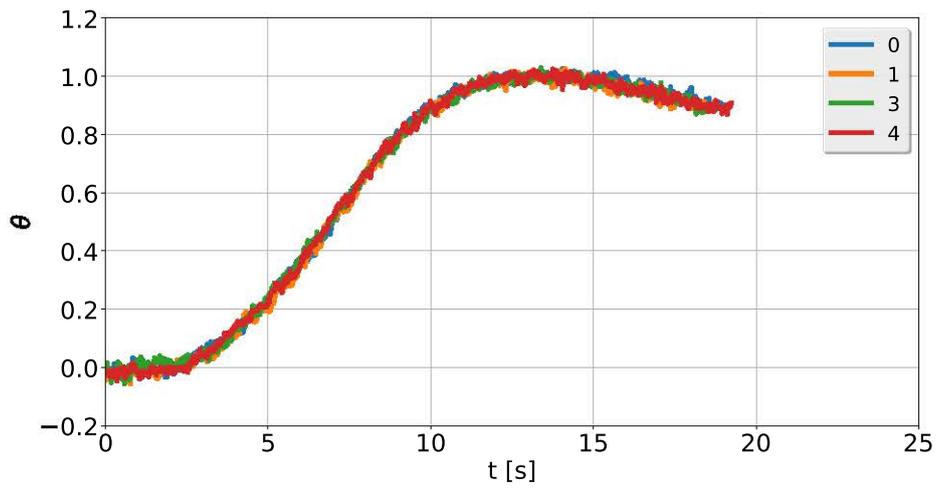


Fig. E.5 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1300 °C pour l'échantillon AS

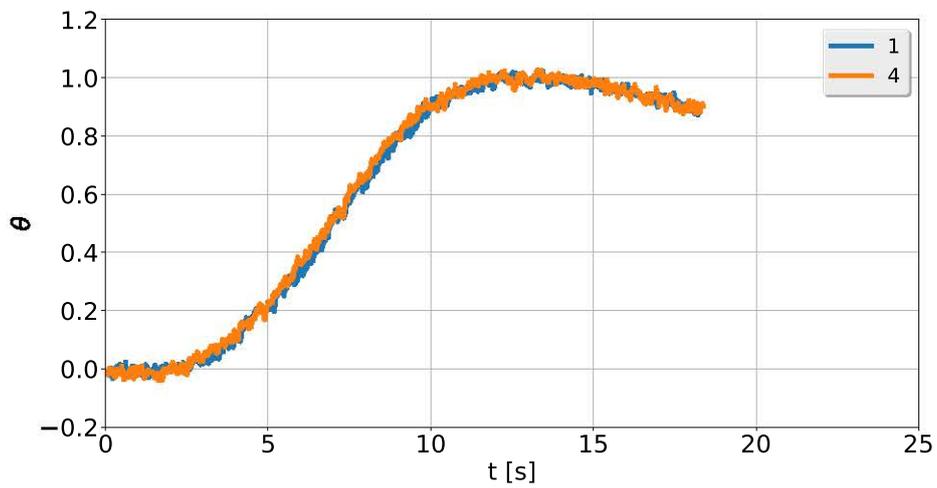


Fig. E.6 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1350 °C pour l'échantillon AS

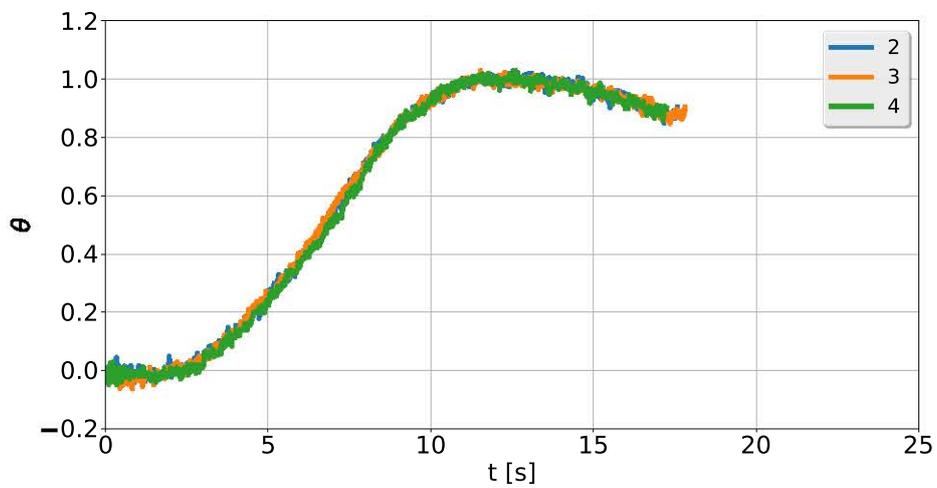
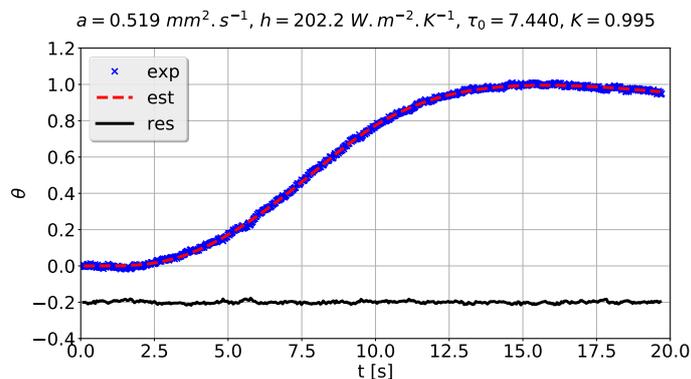


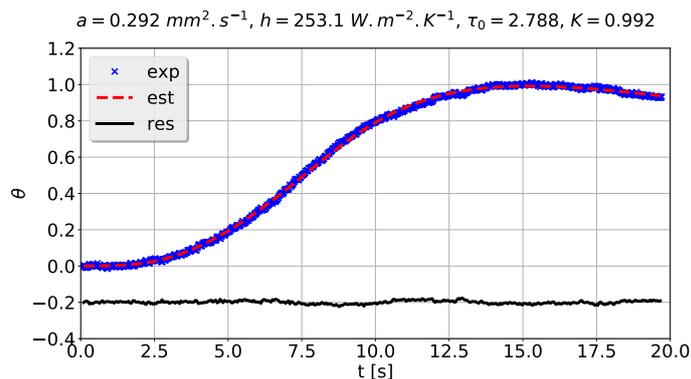
Fig. E.7 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1400 °C pour l'échantillon AS

E.1.2 Estimations

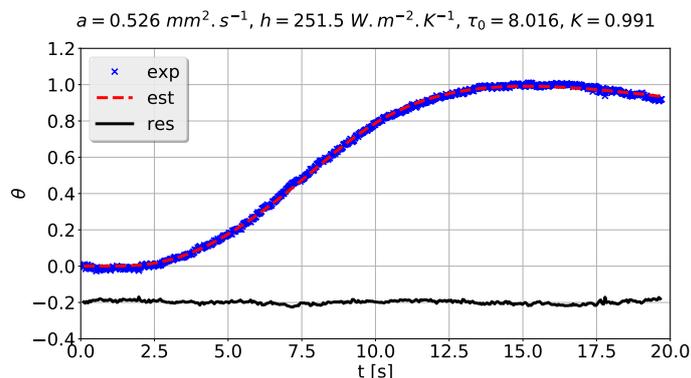
Les estimations réalisées entre 1100 et 1400 °C pour l'échantillon AS sont représentées sur les Figures E.8 à E.14. Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi-nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre du bruit de mesure). Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure. Les valeurs estimées du paramètre d'amplitude K sont très proches de 1 (i.e., l'écart est inférieur à 1%) indiquant que les normalisations des thermogrammes sont bonnes.



(a) Essai n°1



(b) Essai n°2



(c) Essai n°4

Fig. E.8 Estimations à 1100 °C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

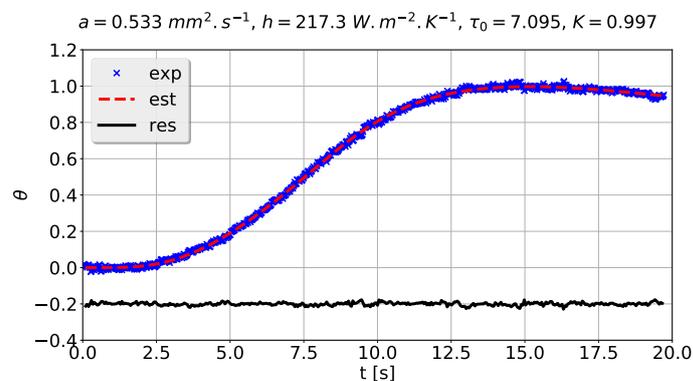
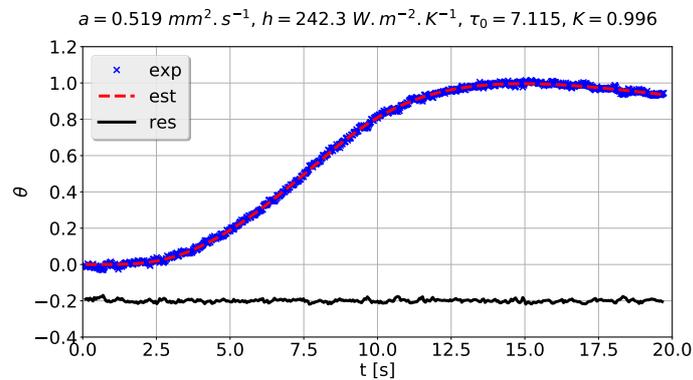
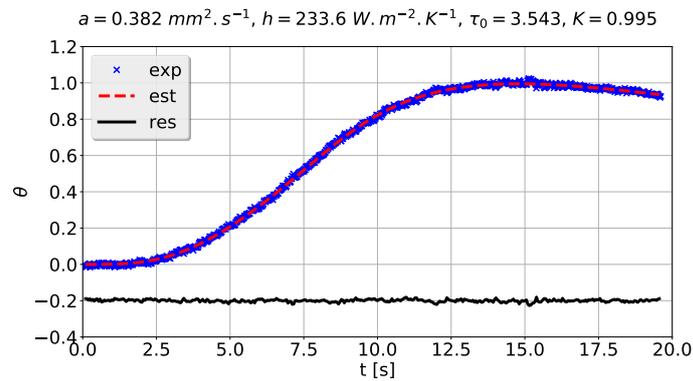
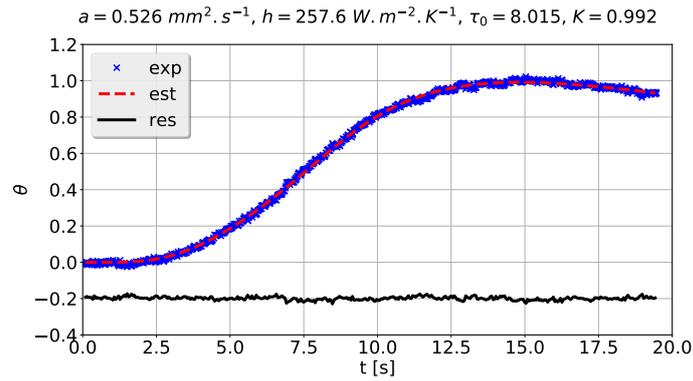


Fig. E.9 Estimations à 1150°C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

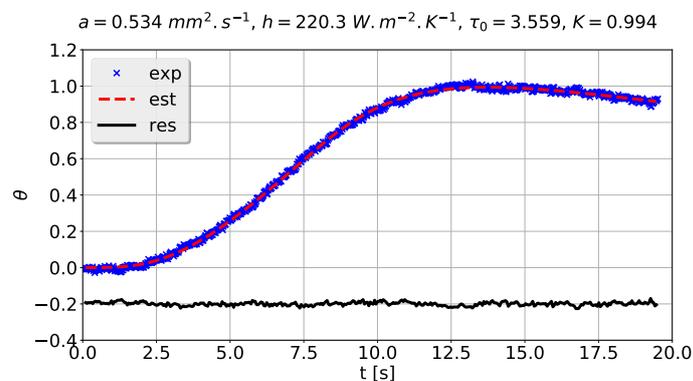
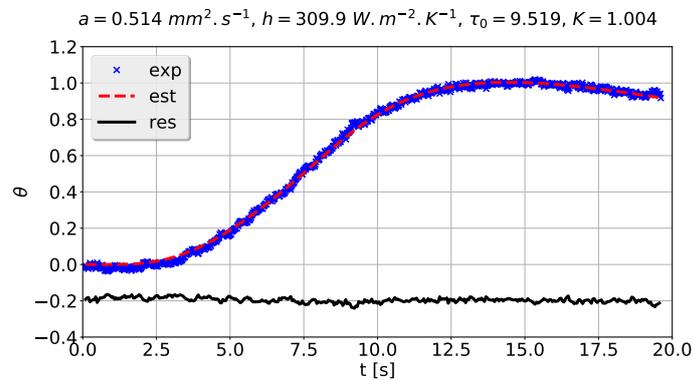
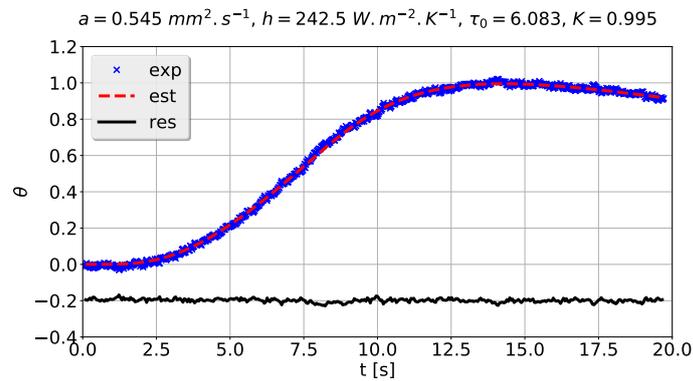
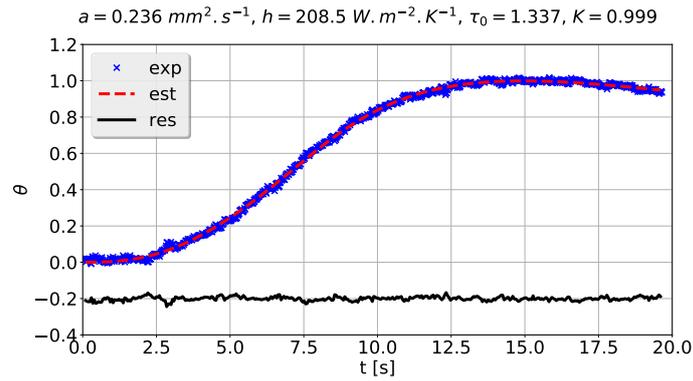


Fig. E.10 Estimations à 1200°C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

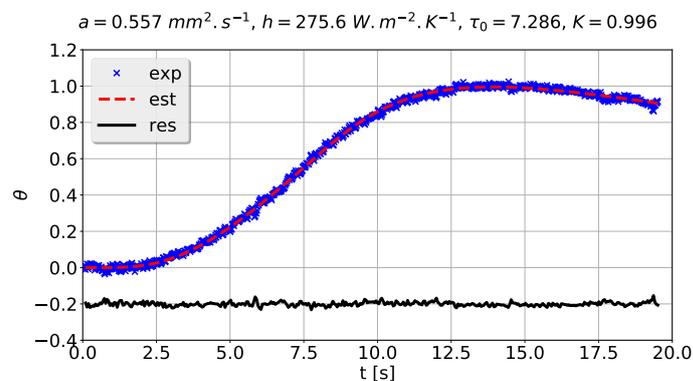
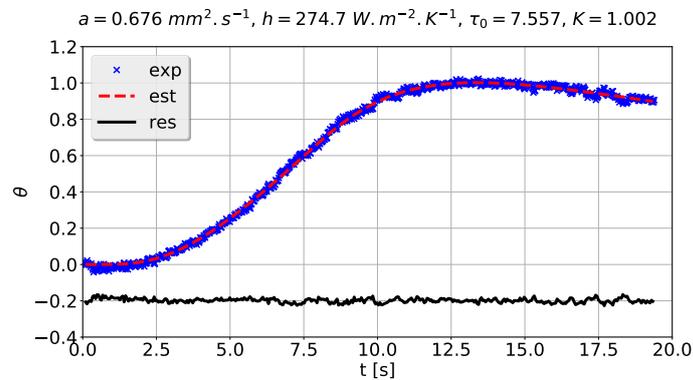
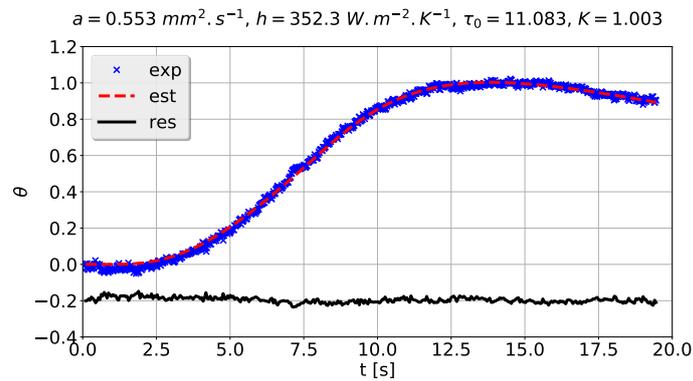
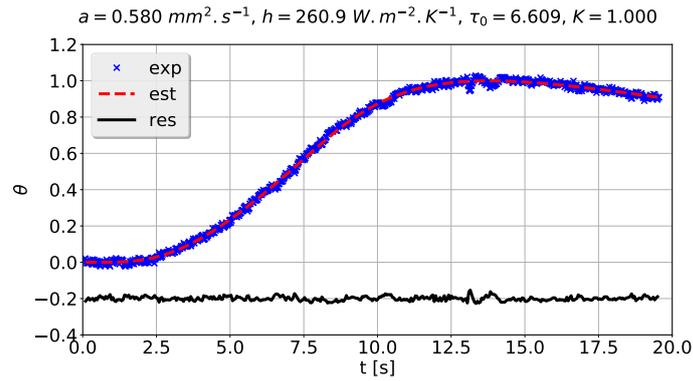


Fig. E.11 Estimations à 1250°C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

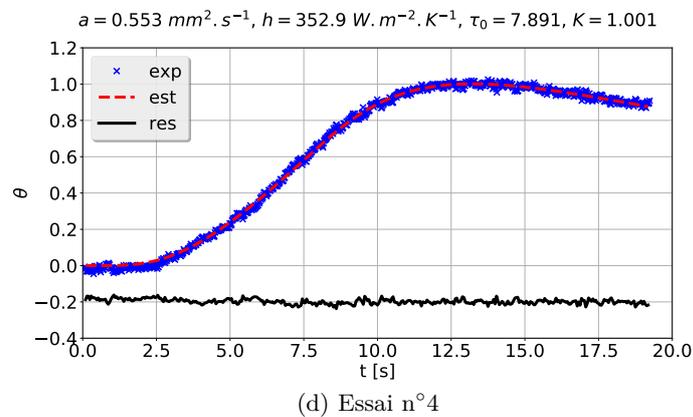
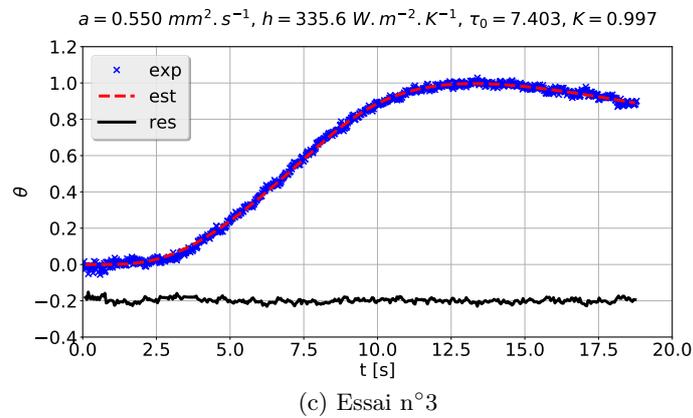
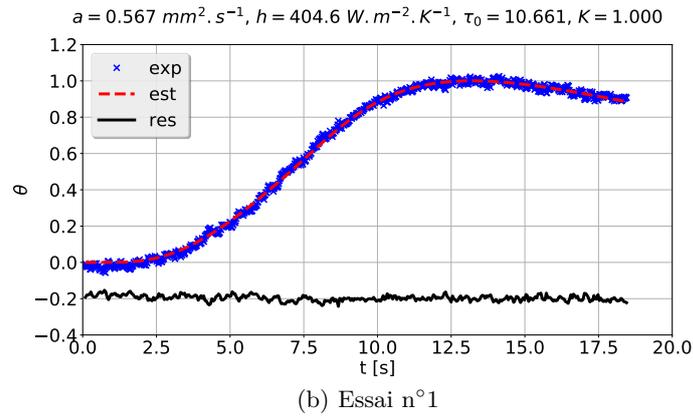
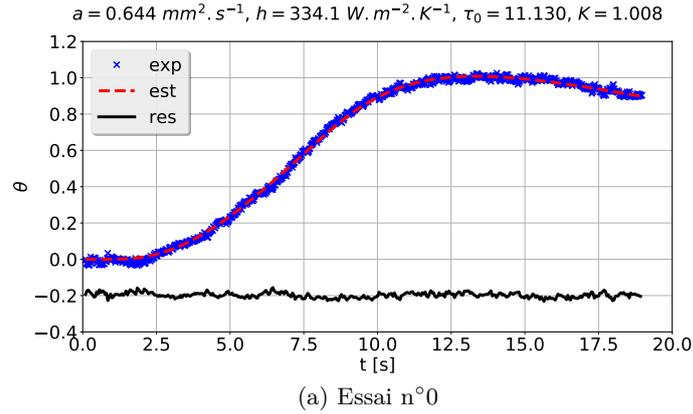


Fig. E.12 Estimations à 1300 °C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

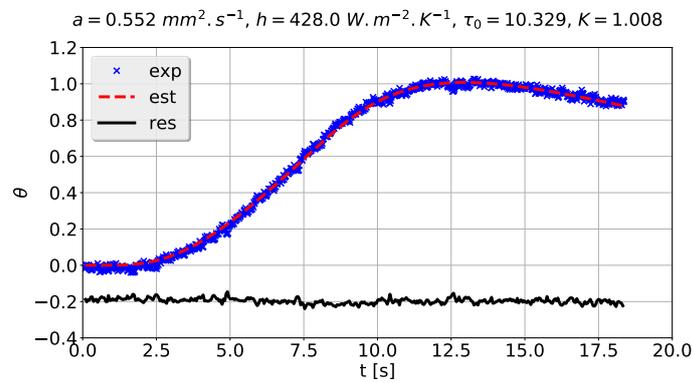
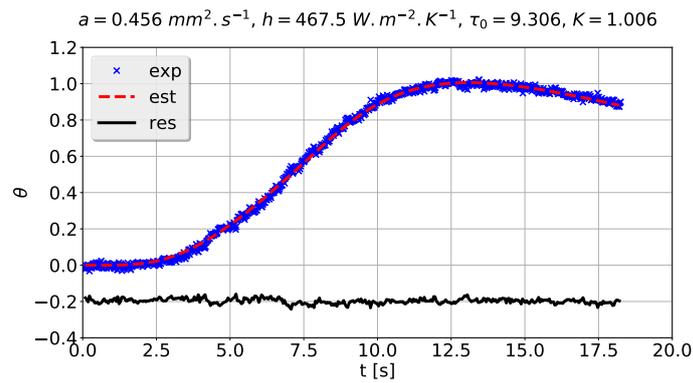


Fig. E.13 Estimations à 1350°C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

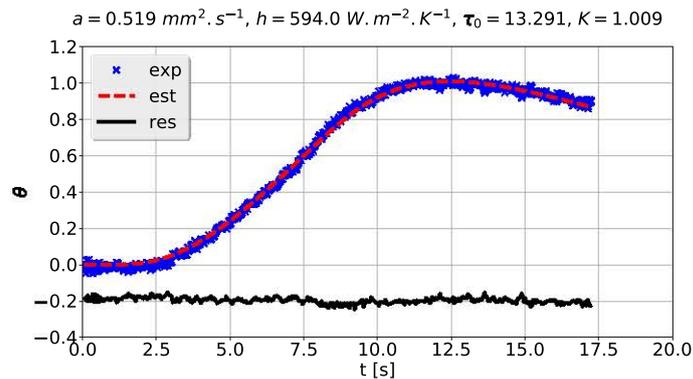
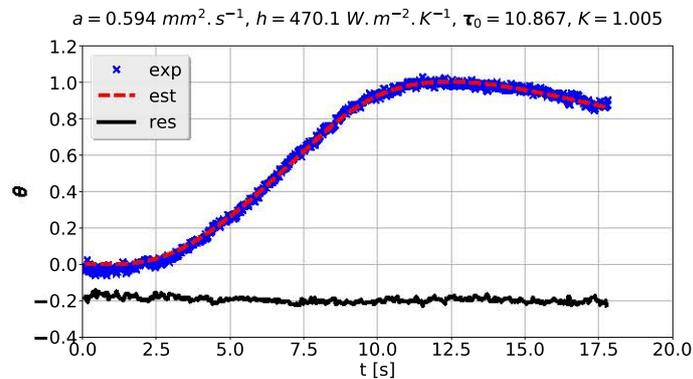
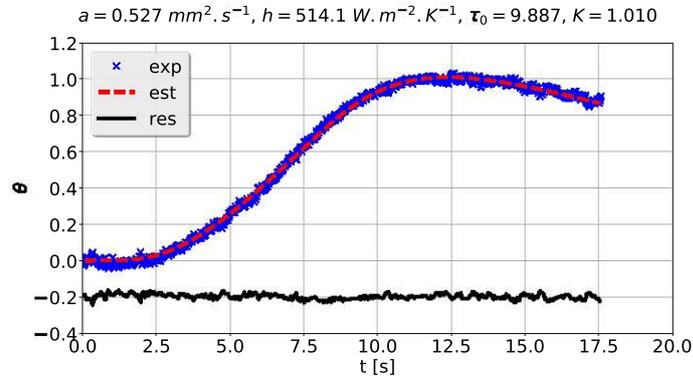


Fig. E.14 Estimations à 1400°C pour l'échantillon AS. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table E.1. Certaines estimations ont été écartées (lignes grisées dans la Table E.1) car les thermogrammes expérimentaux présentaient un rapport signal sur bruit trop important et/ou des biais expérimentaux (légère décroissance du thermogramme aux temps courts et/ou ruptures de pentes lors de la montée par exemple) pour garantir une incertitude relative satisfaisante sur l'estimation des paramètres.

T [°C]	Essai	Paramètres			
		a [mm ² s ⁻¹]	h [W m ⁻² K ⁻¹]	τ_0 [-]	K [-]
1100	1	0,519	202,2	7,44	0,995
1100	2	0,292	253,1	2,79	0,992
1100	4	0,526	251,5	8,02	0,991
1150	1	0,526	257,6	8,02	0,992
1150	2	0,382	233,6	3,54	0,995
1150	3	0,519	242,3	7,12	0,996
1150	4	0,533	217,3	7,09	0,997
1200	1	0,236	208,5	1,34	0,999
1200	2	0,545	242,5	6,08	0,995
1200	3	0,514	309,9	9,52	1,004
1200	4	0,534	220,3	3,56	0,994
1250	1	0,580	260,9	6,61	1,000
1250	2	0,553	352,3	11,08	1,003
1250	3	0,676	274,7	7,56	1,002
1250	4	0,557	275,6	7,29	0,996
1300	0	0,644	334,1	11,13	1,008
1300	1	0,567	404,6	10,66	1,001
1300	3	0,550	335,6	7,40	0,997
1300	4	0,553	352,9	7,89	1,001
1350	1	0,456	467,5	9,31	1,006
1350	4	0,552	428,0	10,33	1,008
1400	2	0,527	514,1	9,89	1,010
1400	3	0,594	470,1	10,87	1,005
1400	4	0,519	594,0	13,29	1,009

Tab. E.1 Valeurs des paramètres estimés à partir de thermogrammes expérimentaux pour l'échantillon AS. Les lignes grisées correspondent aux estimations qui n'ont pas été retenues.

E.2 Echantillon SC1

E.2.1 Thermogrammes expérimentaux

Les thermogrammes réduits expérimentaux obtenus pour l'échantillon SC1 entre 1000 et 1200 °C sont représentés sur les Figures E.15 à E.19. Pour chaque température, entre deux et trois thermogrammes expérimentaux ont été exploités. On observe une relative bonne répétabilité des thermogrammes sur la gamme de température investiguée. Le rapport signal sur bruit est relativement bon pour l'ensemble des thermogrammes. Le bruit de mesure croît légèrement lorsque la température augmente.

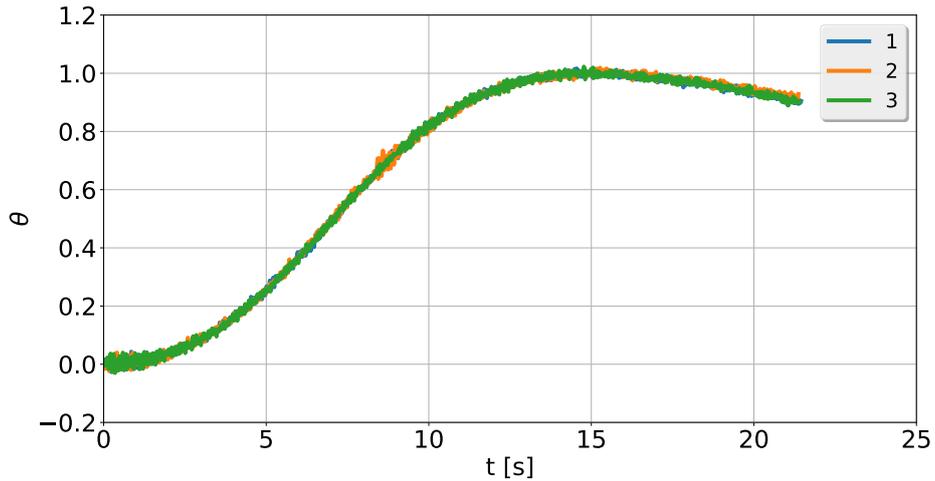


Fig. E.15 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1000 °C pour l'échantillon SC1

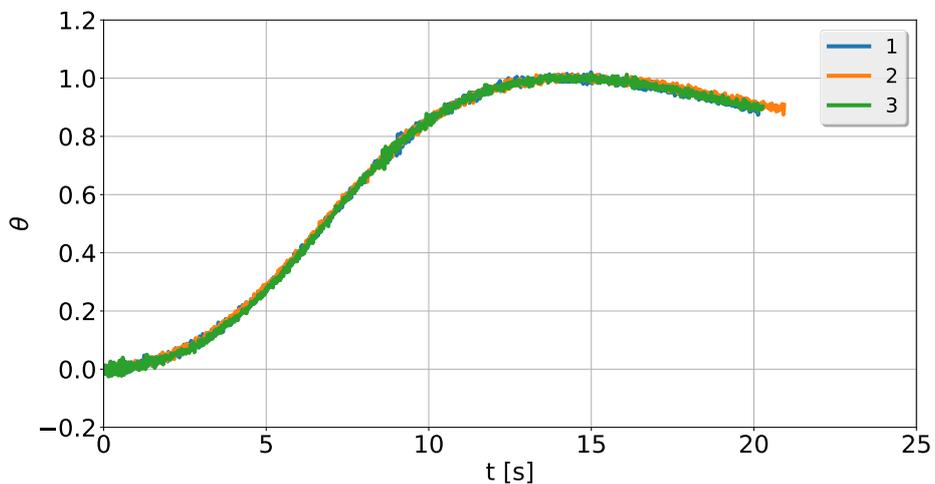


Fig. E.16 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1050 °C pour l'échantillon SC1

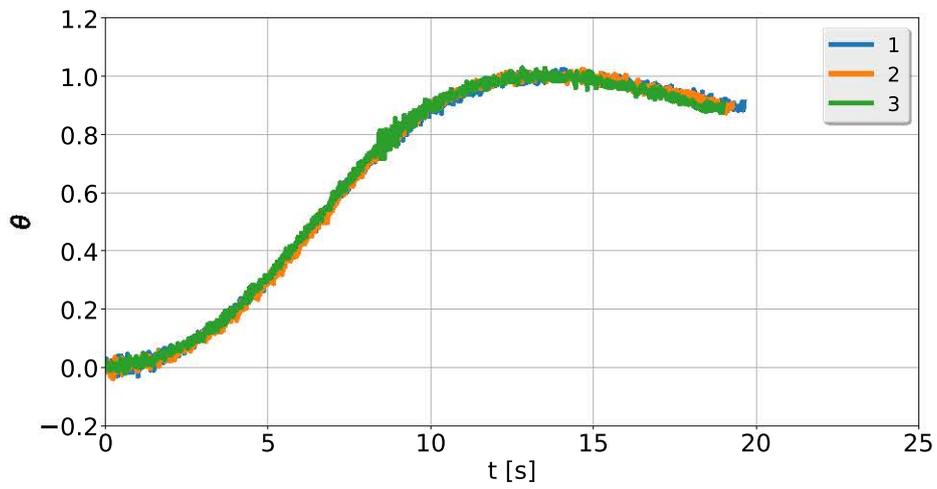


Fig. E.17 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1100 °C pour l'échantillon SC1

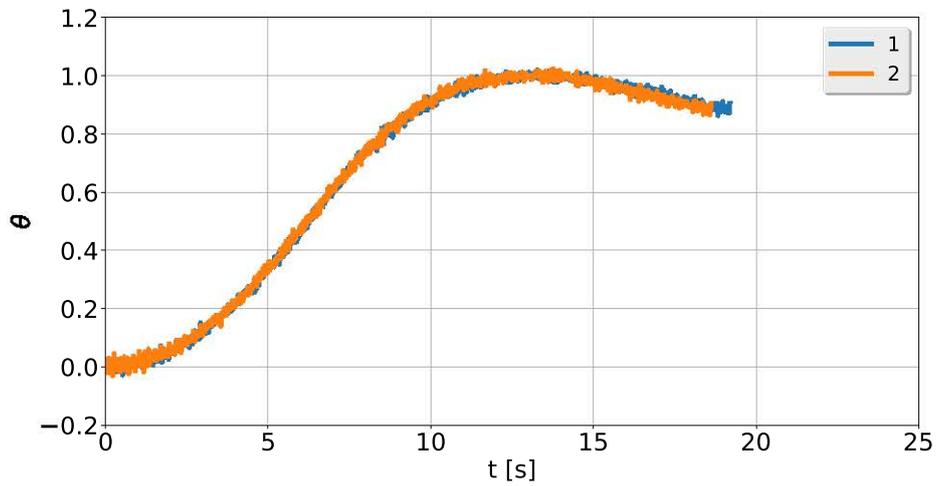


Fig. E.18 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1150 °C pour l'échantillon SC1

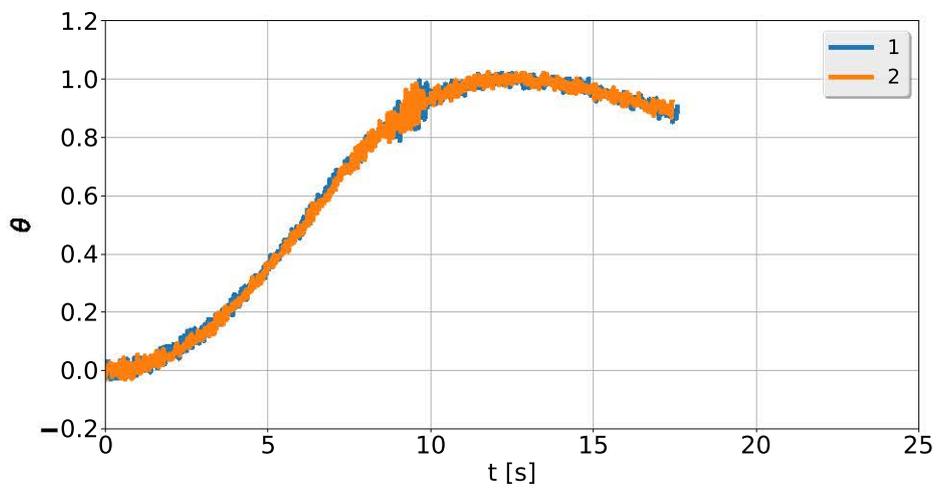
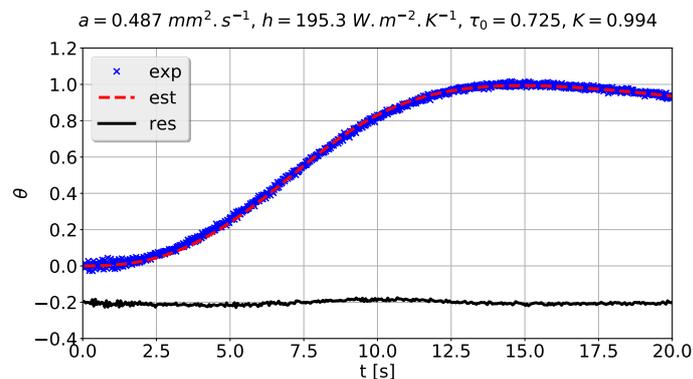


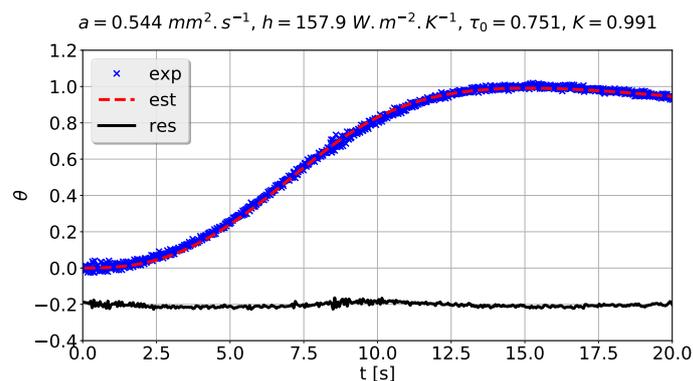
Fig. E.19 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1200 °C pour l'échantillon SC1

E.2.2 Estimations

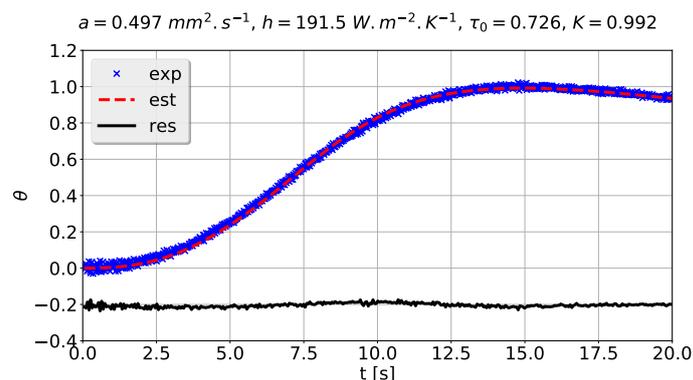
Les estimations réalisées entre 1000 et 1200 °C pour l'échantillon SC1 sont représentées sur les Figures E.20 à E.24. Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre du bruit de mesure). Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure. Les valeurs estimées du paramètre d'amplitude K sont très proches de 1 (i.e., l'écart est inférieur à 1%) indiquant que les normalisations des thermogrammes sont bonnes.



(a) Essai n°1

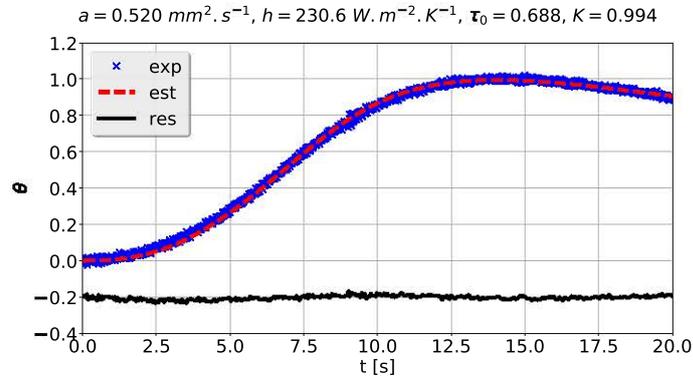


(b) Essai n°2

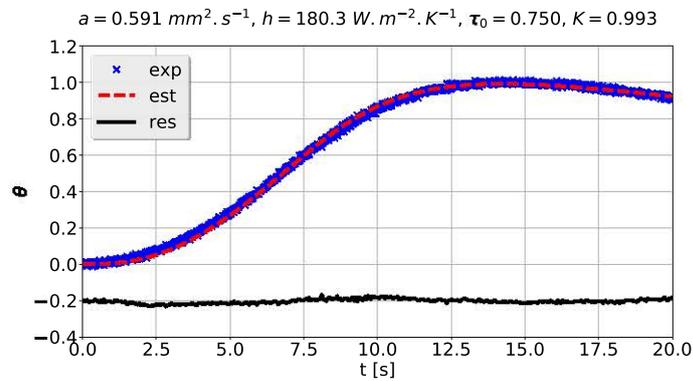


(c) Essai n°3

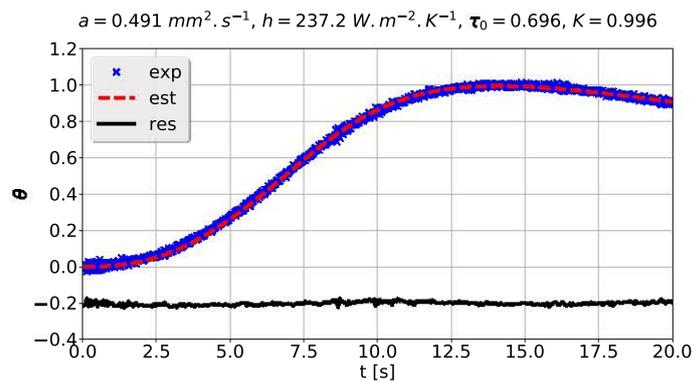
Fig. E.20 Estimations à 1000 °C pour le verre SC1. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



(a) Essai n°1



(b) Essai n°2



(c) Essai n°3

Fig. E.21 Estimations à 1050°C pour le verre SC1. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

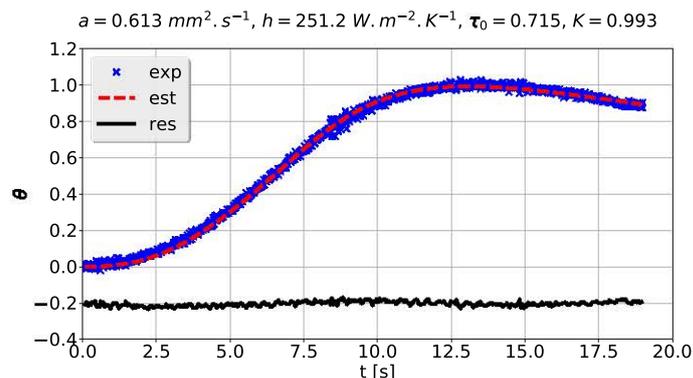
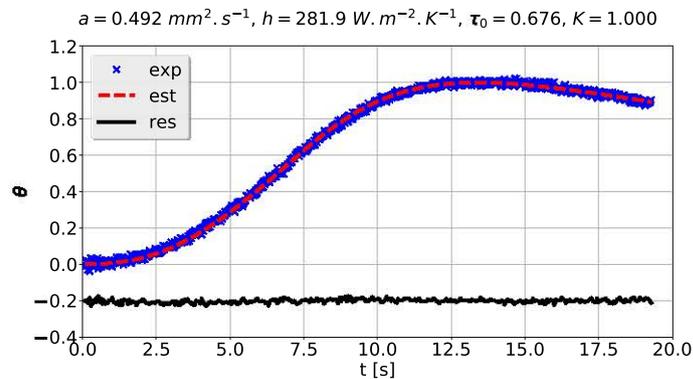
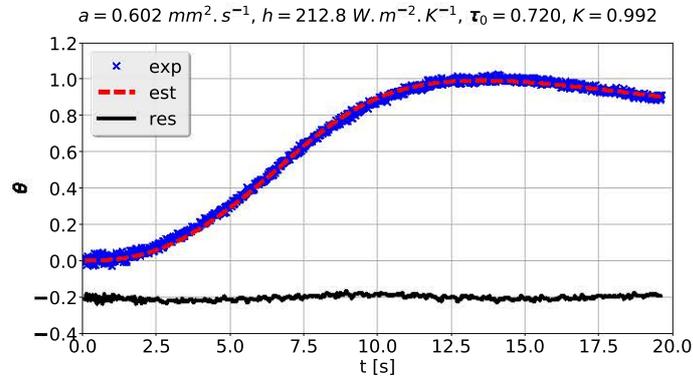


Fig. E.22 Estimations à 1100°C pour le verre SC1. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

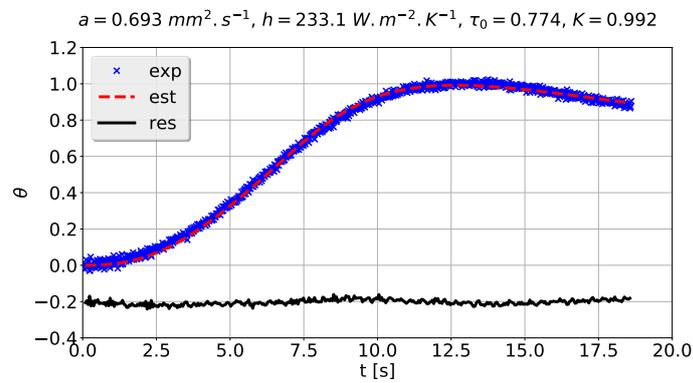
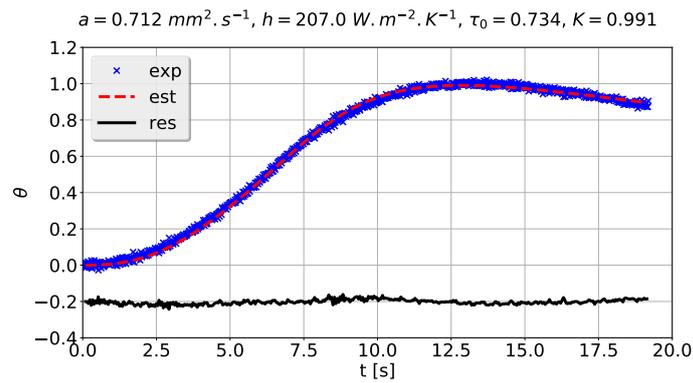
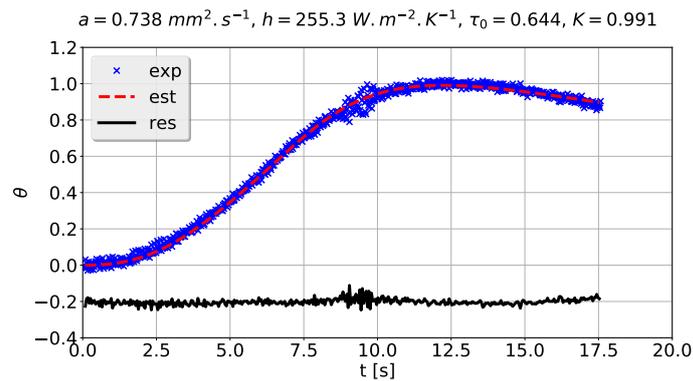
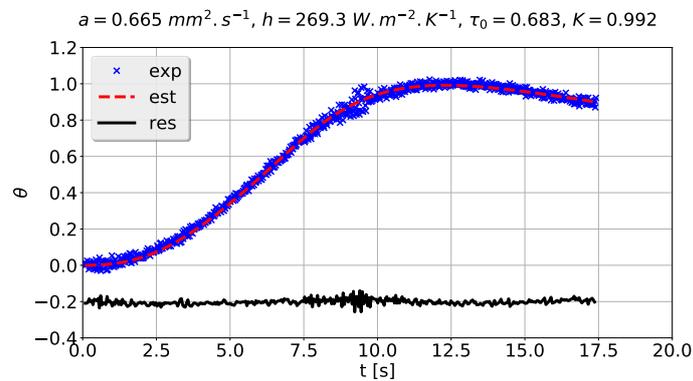


Fig. E.23 Estimations à 1150 °C pour le verre SC1. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



(a) Essai n°1



(b) Essai n°2

Fig. E.24 Estimations à 1200 °C pour le verre SC1. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table E.2. Certaines estimations ont été écartées (lignes grisées dans la Table E.2) car les thermogrammes expérimentaux présentaient un rapport signal sur bruit trop important et/ou des biais expérimentaux (légère décroissance du thermogramme aux temps courts et/ou ruptures de pentes lors de la montée par exemple) pour garantir une incertitude relative satisfaisante sur l'estimation des paramètres.

T [°C]	Essai	Paramètres			
		a [mm ² s ⁻¹]	h [W m ⁻² K ⁻¹]	τ_0 [-]	K [-]
1000	1	0,487	195,3	0,725	0,994
1000	2	0,544	157,9	0,751	0,991
1000	3	0,497	191,5	0,726	0,992
1050	1	0,520	230,6	0,688	0,994
1050	2	0,591	180,3	0,750	0,993
1050	3	0,491	237,2	0,696	0,996
1100	1	0,602	212,8	0,720	0,992
1100	2	0,492	281,9	0,676	1,000
1100	3	0,613	251,2	0,715	0,993
1150	1	0,712	207,0	0,734	0,991
1150	2	0,693	233,1	0,774	0,992
1200	1	0,738	255,3	0,644	0,991
1200	2	0,665	269,3	0,683	0,992

Tab. E.2 Valeurs des paramètres estimés à partir de thermogrammes expérimentaux pour l'échantillon SC1. Les lignes grisées correspondent aux estimations qui n'ont pas été retenues.

E.3 Echantillon SC2

E.3.1 Thermogrammes expérimentaux

Les thermogrammes réduits expérimentaux obtenus pour l'échantillon SC2 entre 1100 et 1300 °C sont représentés sur les Figures E.25 à E.29. Pour chaque température, entre trois et cinq thermogrammes expérimentaux ont été exploités. Les thermogrammes expérimentaux présentent un mauvais rapport signal sur bruit. Celui-ci est attribué à l'encrassement des hublots en sélénure de zinc (ZnSe) utilisés ici.

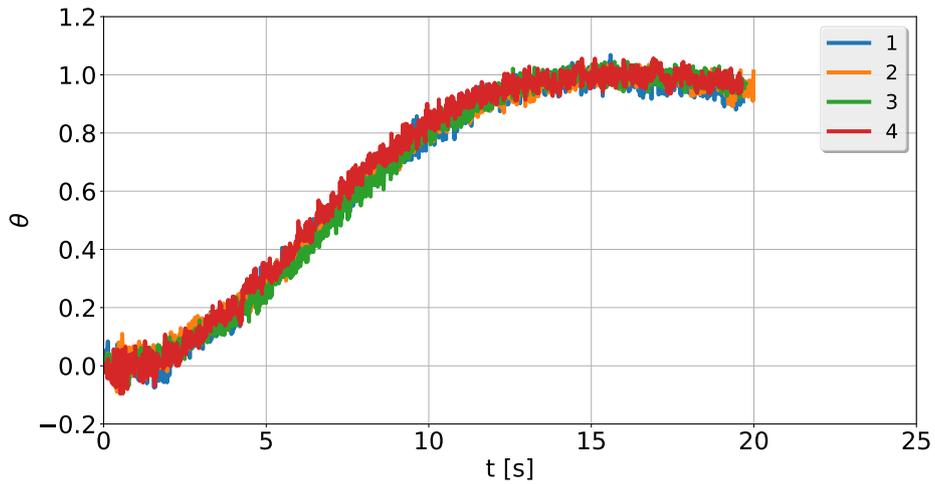


Fig. E.25 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1100 °C pour l'échantillon SC2

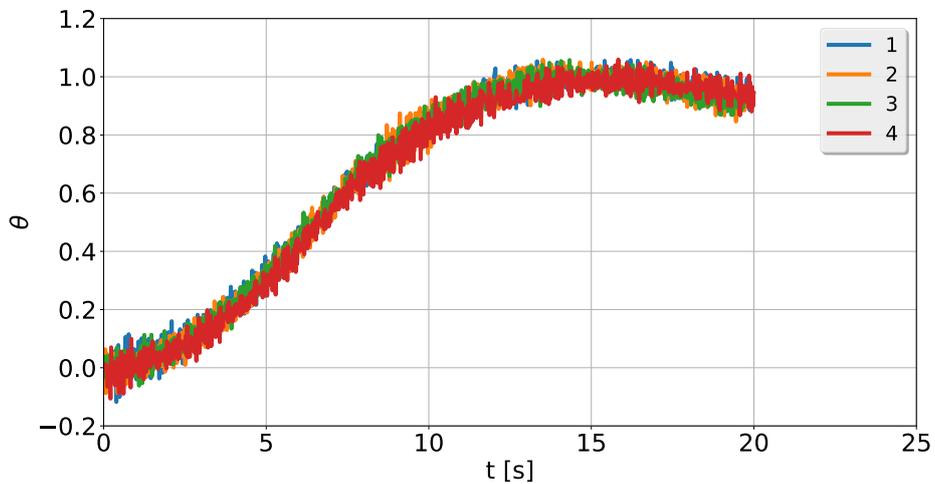


Fig. E.26 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1150 °C pour l'échantillon SC2

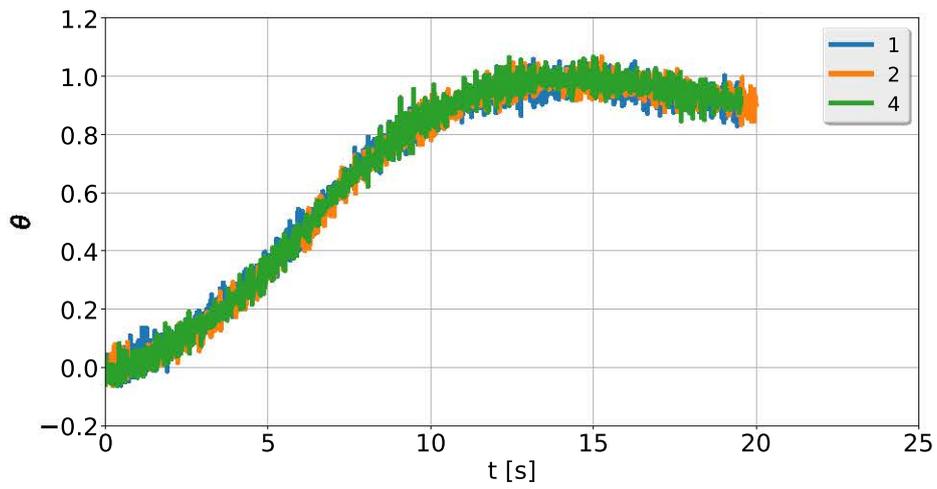


Fig. E.27 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1200 °C pour l'échantillon SC2

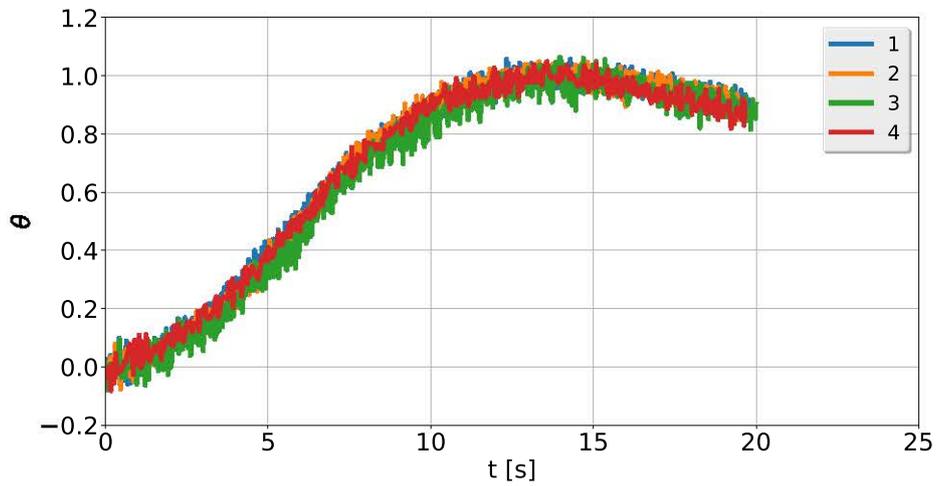


Fig. E.28 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1250 °C pour l'échantillon SC2

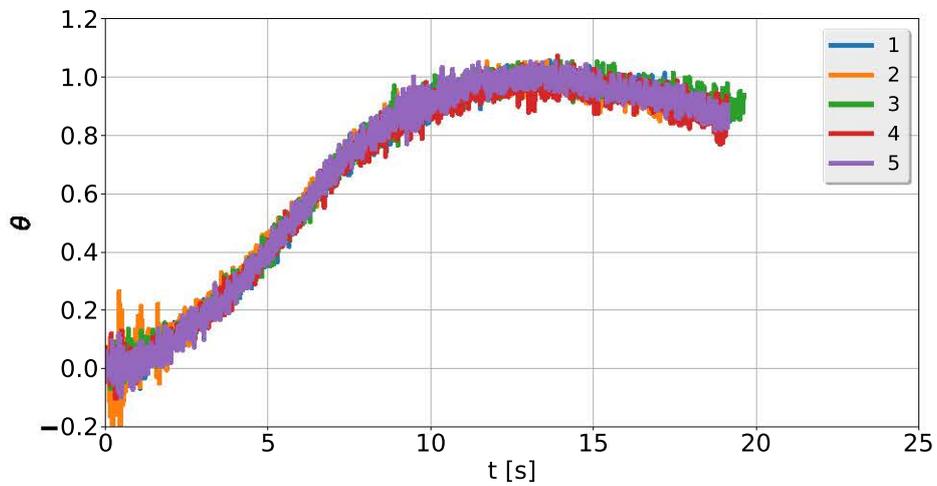
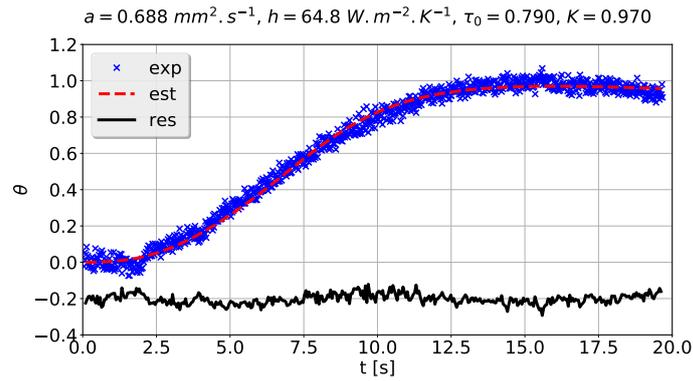


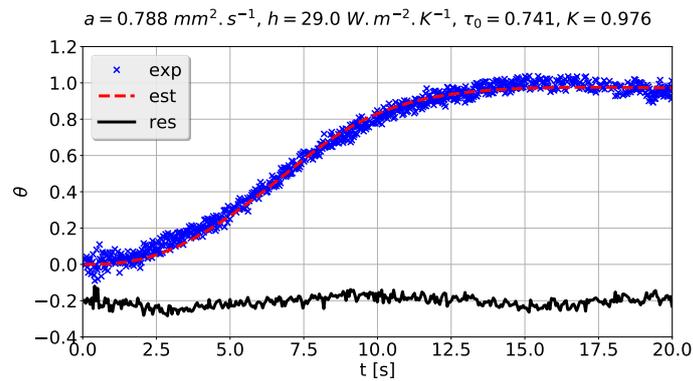
Fig. E.29 Thermogrammes réduits expérimentaux à 1300 °C pour l'échantillon SC2

E.3.2 Estimations

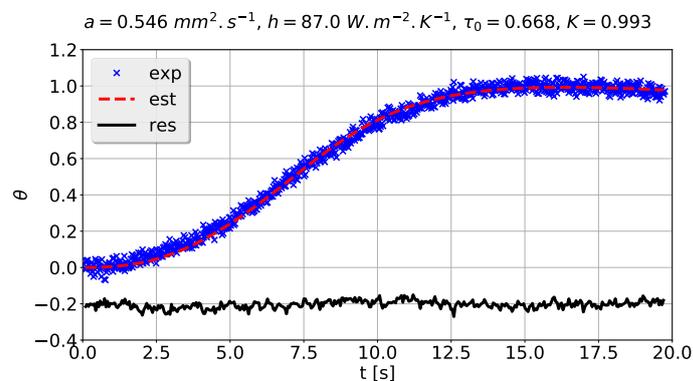
Les estimations réalisées entre 1100 et 1300 °C pour l'échantillon SC2 sont représentées sur les Figures E.30 à E.34. Les résidus semblent signés dans la plupart des cas. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



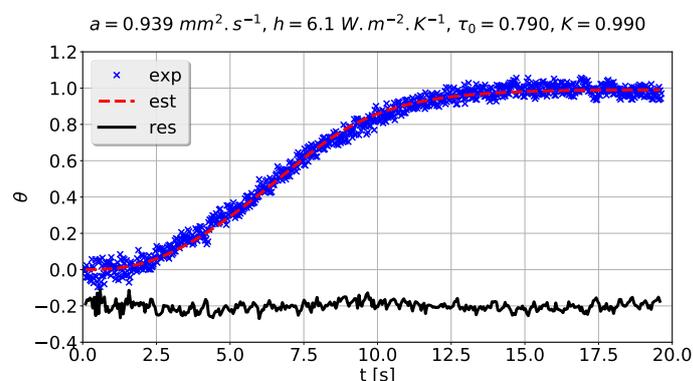
(a) Essai n°1



(b) Essai n°2

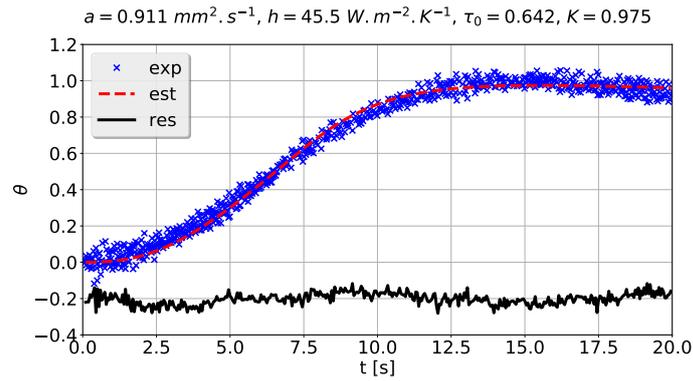


(c) Essai n°3

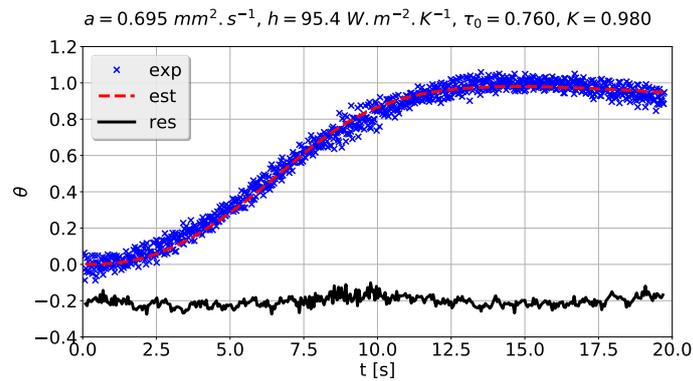


(d) Essai n°4

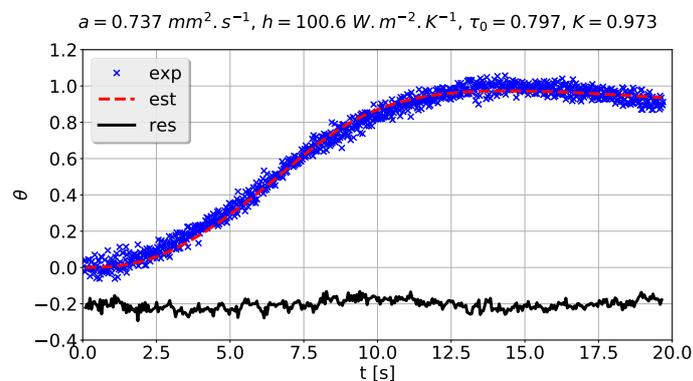
Fig. E.30 Estimations à 1100°C pour l'échantillon SC2. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



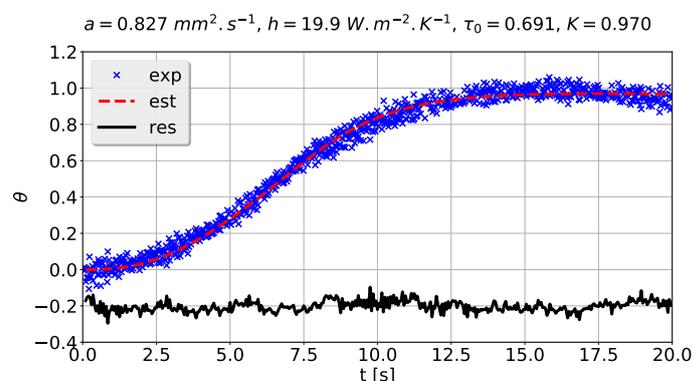
(a) Essai n°1



(b) Essai n°2



(c) Essai n°3



(d) Essai n°4

Fig. E.31 Estimations à 1150°C pour l'échantillon SC2. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

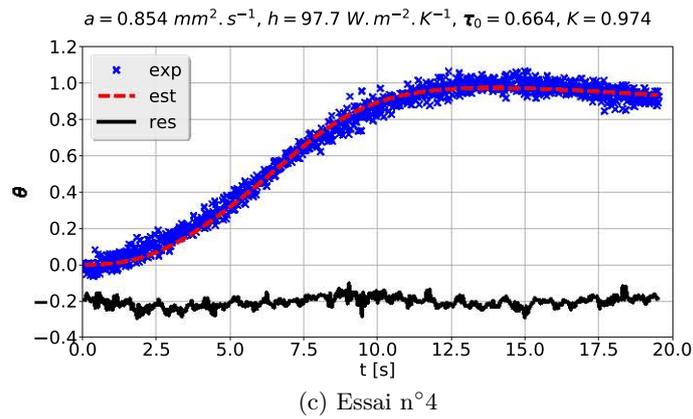
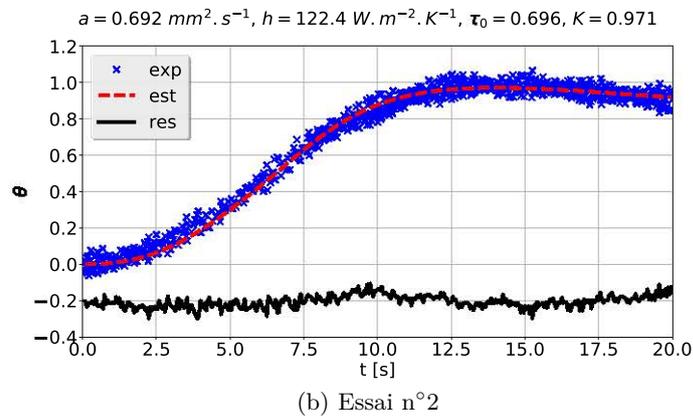
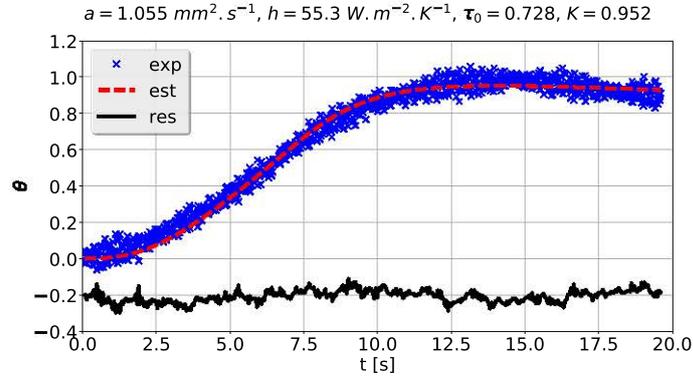
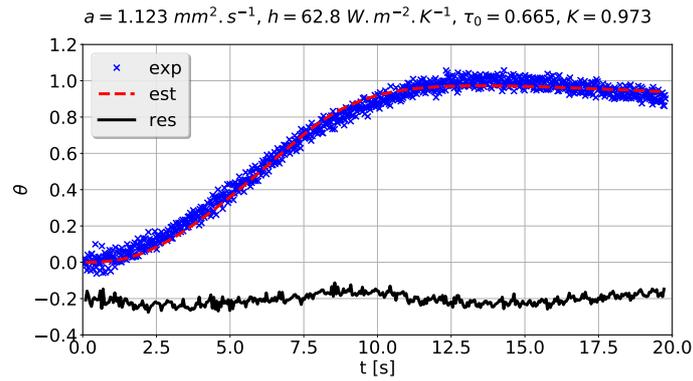
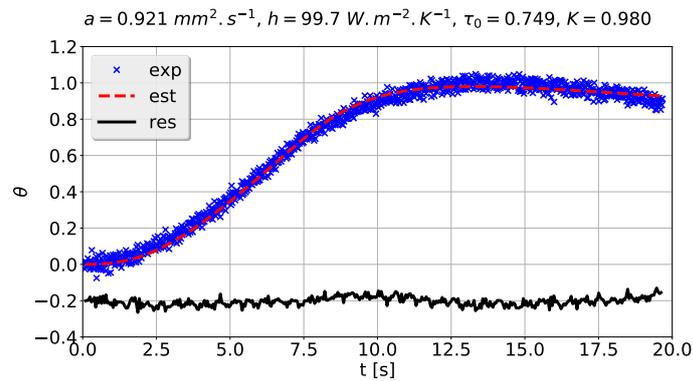


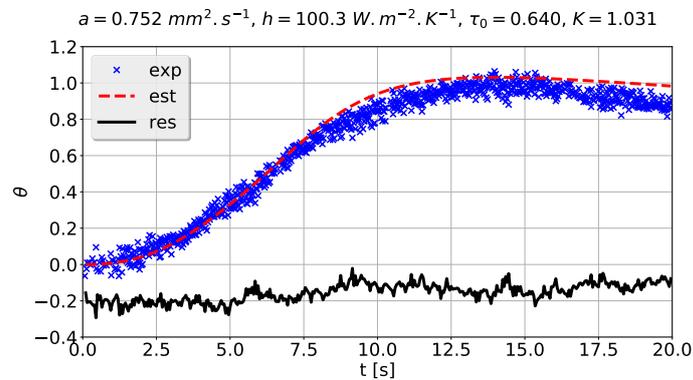
Fig. E.32 Estimations à 1200°C pour l'échantillon SC2. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



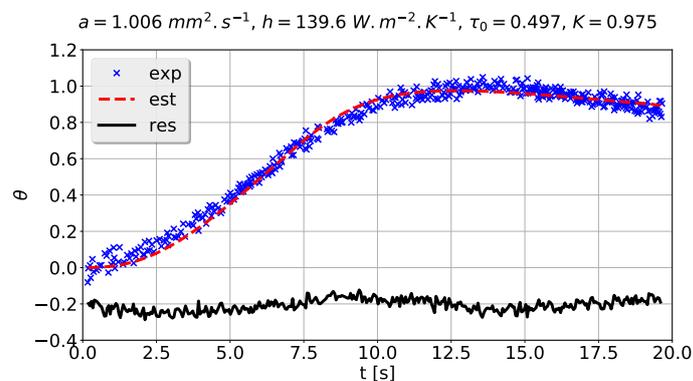
(a) Essai n°1



(b) Essai n°2



(c) Essai n°3



(d) Essai n°4

Fig. E.33 Estimations à 1250°C pour l'échantillon SC2. Les résidus ont été arbitrairement décalés de $-0,2$ pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

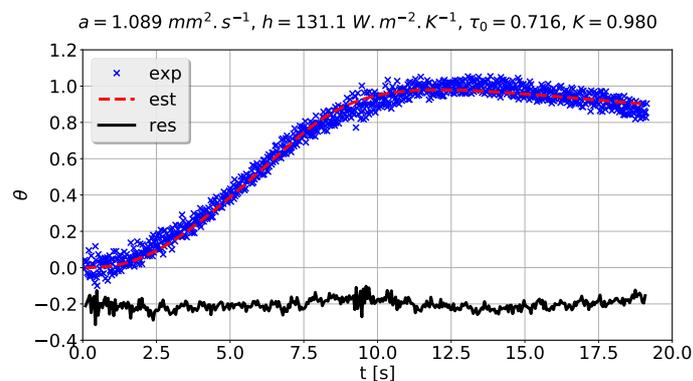
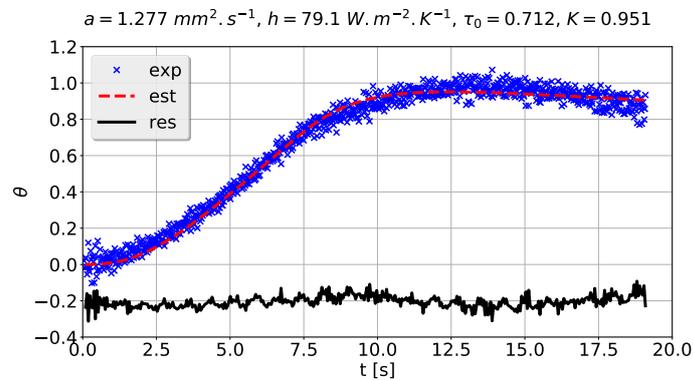
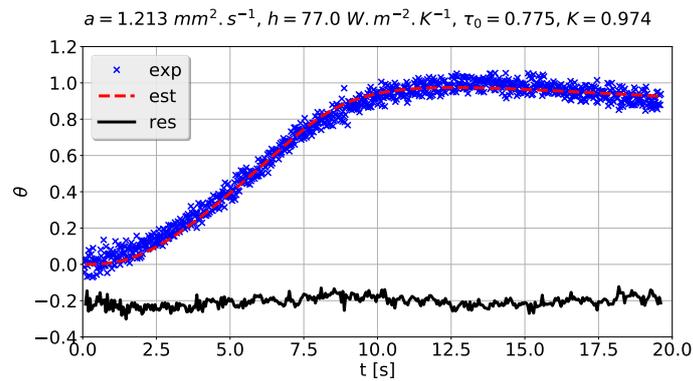
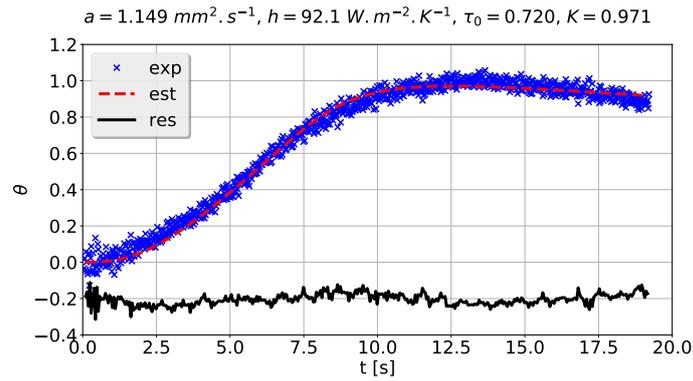


Fig. E.34 Estimations à 1300 °C pour l'échantillon SC2. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table E.3. La quasi-totalité des estimations ont été écartées (lignes grisées dans la Table E.3) car les thermogrammes expérimentaux présentaient un rapport signal sur bruit trop important et/ou des biais expérimentaux (légère décroissance du thermogramme aux temps courts et/ou ruptures de pentes lors de la montée par exemple) pour garantir une incertitude relative satisfaisante sur l'estimation des paramètres.

T [°C]	Essai	Paramètres			
		a [mm ² s ⁻¹]	h [W m ⁻² K ⁻¹]	τ_0 [-]	K [-]
1100	1	0,688	64,8	0,790	0,970
1100	2	0,788	29,0	0,741	0,976
1100	3	0,546	87,0	0,668	0,993
1100	4	0,939	6,1	0,790	0,990
1150	1	0,911	45,5	0,642	0,975
1150	2	0,695	95,4	0,760	0,980
1150	3	0,737	100,6	0,797	0,973
1150	4	0,827	19,9	0,691	0,970
1200	1	1,055	55,3	0,728	0,952
1200	2	0,692	122,4	0,696	0,971
1200	4	0,854	97,7	0,664	0,974
1250	1	1,123	62,8	0,665	0,973
1250	2	0,921	99,7	0,749	0,980
1250	3	0,752	100,3	0,640	1,031
1250	4	1,006	139,6	0,497	0,975
1300	1	1,149	92,1	0,720	0,971
1300	2	1,353	94,9	0,724	0,966
1300	3	1,213	77,0	0,775	0,974
1300	4	1,277	79,1	0,712	0,951
1300	5	1,089	131,1	0,716	0,980

Tab. E.3 Valeurs des paramètres estimés à partir de thermogrammes expérimentaux pour l'échantillon SC2. Les lignes grisées correspondent aux estimations qui n'ont pas été retenues.

Résultats expérimentaux – Estimations de propriétés thermiques apparentes à partir d'un modèle direct conductif pur pour l'échantillon AS

F.1 Introduction

L'échantillon AS est un verre très absorbant (i.e., son coefficient d'absorption moyen estimé est compris entre 15 et 30 cm⁻¹). Le milieu peut ainsi être considéré comme optiquement épais (i.e., l'épaisseur optique est supérieure à 5) et un modèle conductif pur utilisé pour estimer la diffusivité thermique *apparente* à partir des thermogrammes expérimentaux..

F.2 Méthodologie

On considère un modèle avec trois paramètres méconnus qu'il s'agira d'estimer : la diffusivité thermique *apparente* (ou la conductivité thermique *apparente*), le coefficient de pertes thermiques et le paramètre d'amplitude. On a donc le vecteur de paramètres suivant : $\beta = [a_{app} \ h \ K]^T$.

Le modèle direct conductif pur est couplé à un algorithme de Levenberg-Marquardt implémenté dans Matlab R2014 [95] (cf. Chapitre 3). L'intervalle de temps choisi pour réaliser l'estimation des paramètres correspond au thermogramme coupé à 90% de son maximum (une fois le maximum du thermogramme atteint). Les valeurs initiales des paramètres sont les suivantes : $a_{app,init} = 0,5 \text{ mm}^2 \text{ s}^{-1}$, $h_{init} = 200 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ et $K_{init} = 1$.

F.3 Estimations

Les estimations réalisées entre 1100 et 1400 °C pour l'échantillon AS sont représentées sur les Figures F.1 à F.7. Les résidus sont plats (i.e., non signés) et de valeurs quasi nulles (i.e., leur magnitude est de l'ordre du bruit de mesure). Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure. Les valeurs estimées du paramètre d'amplitude K sont très proches de 1 (i.e., l'écart est inférieur à 1%) indiquant que les normalisations des thermogrammes sont bonnes.

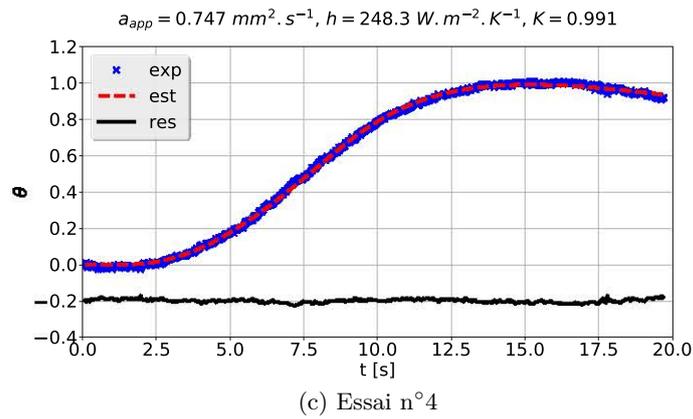
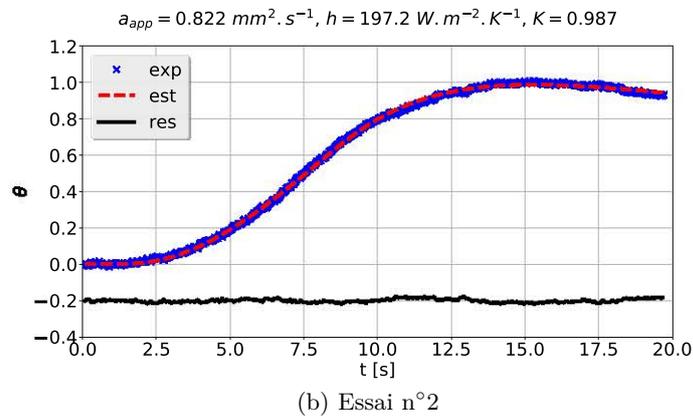
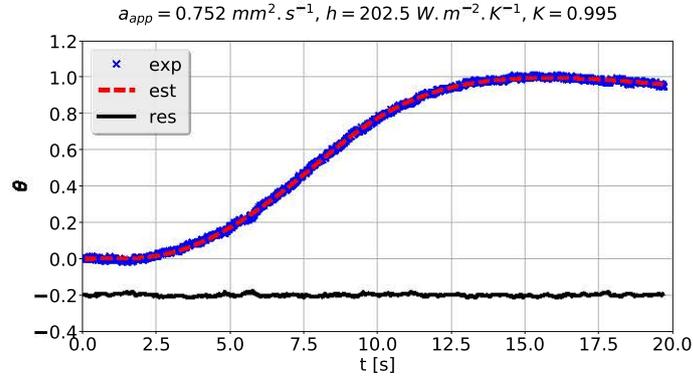


Fig. F.1 Estimations à 1100 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

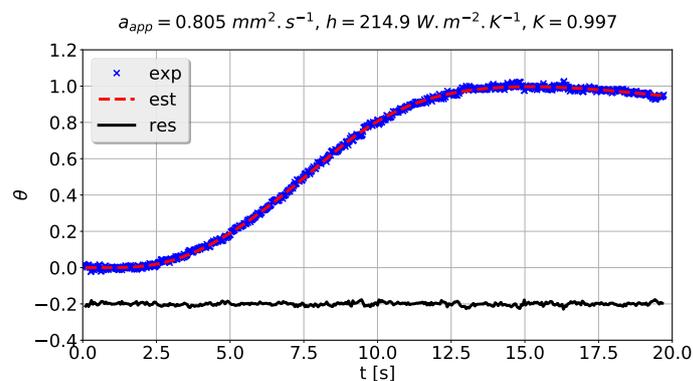
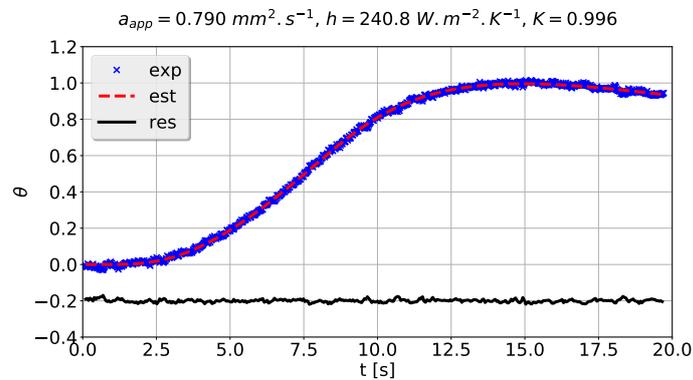
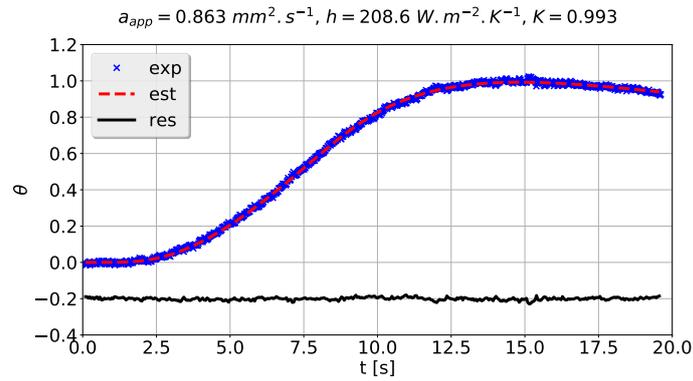
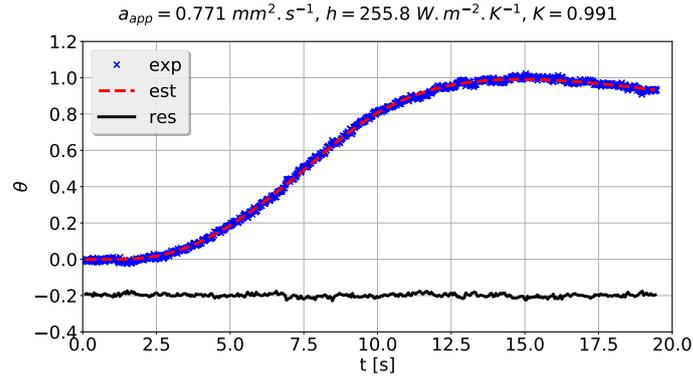


Fig. F.2 Estimations à 1150 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

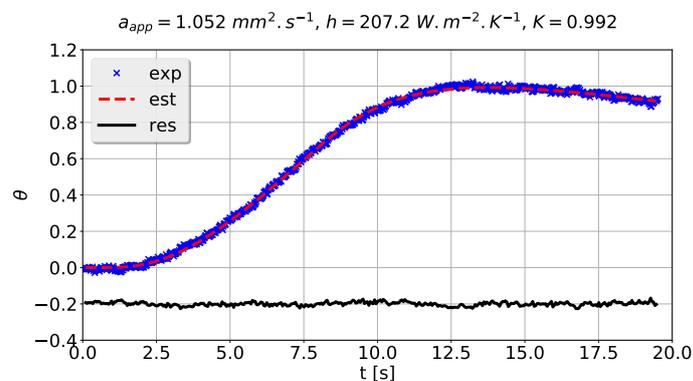
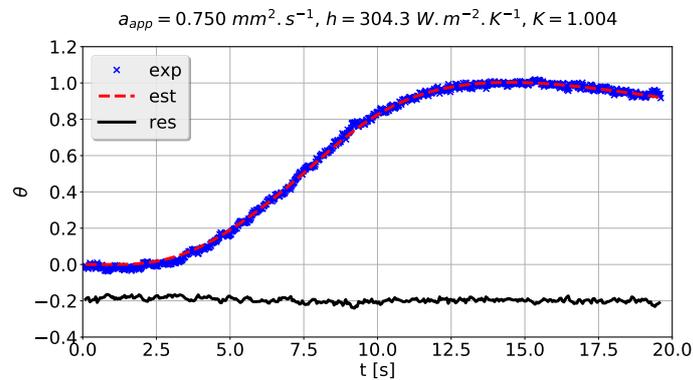
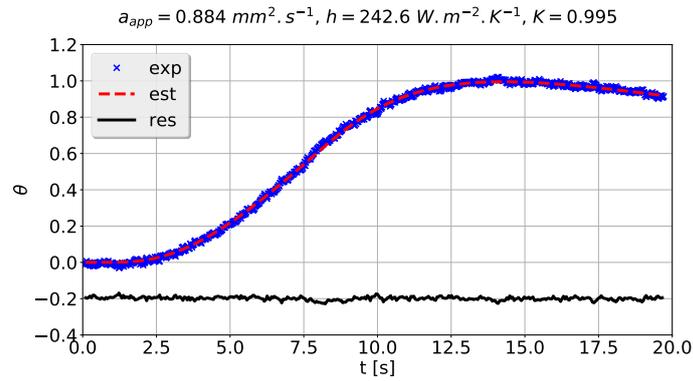
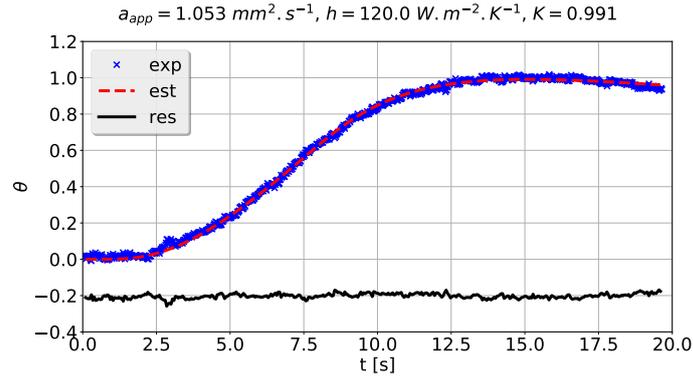
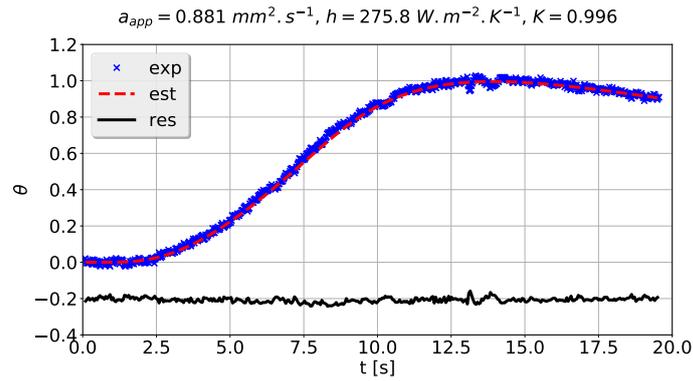
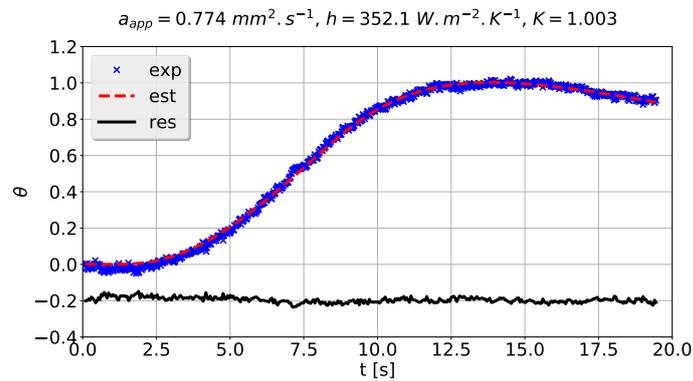


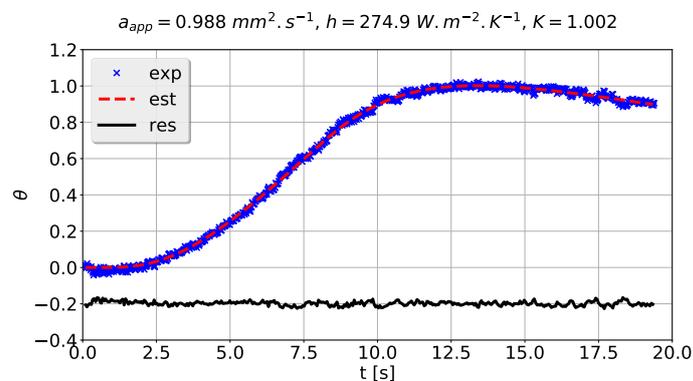
Fig. F.3 Estimations à 1200 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



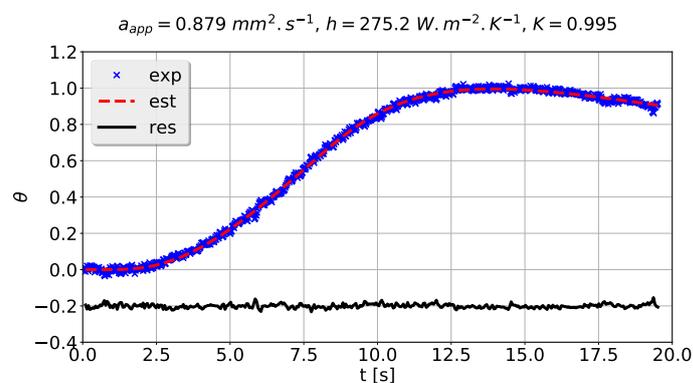
(a) Essai n°1



(b) Essai n°2

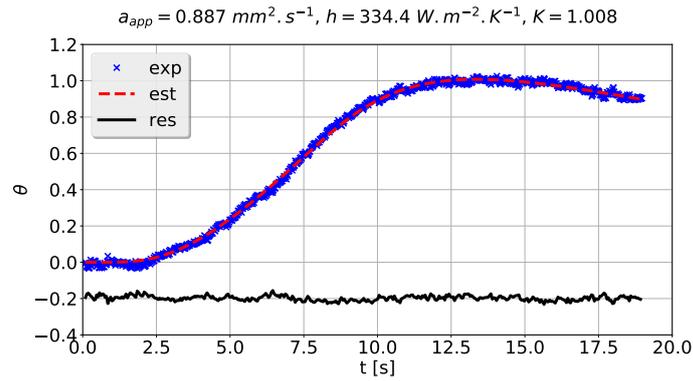


(c) Essai n°3

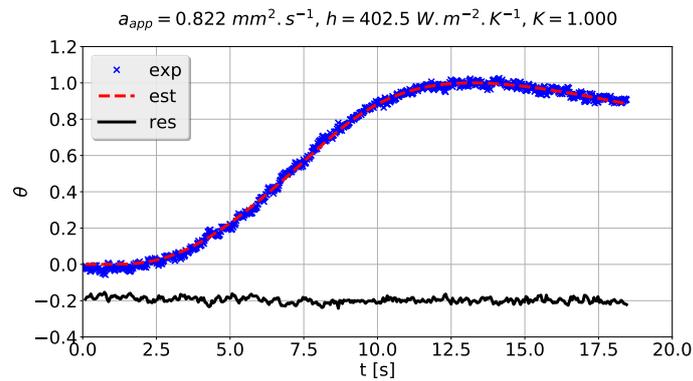


(d) Essai n°4

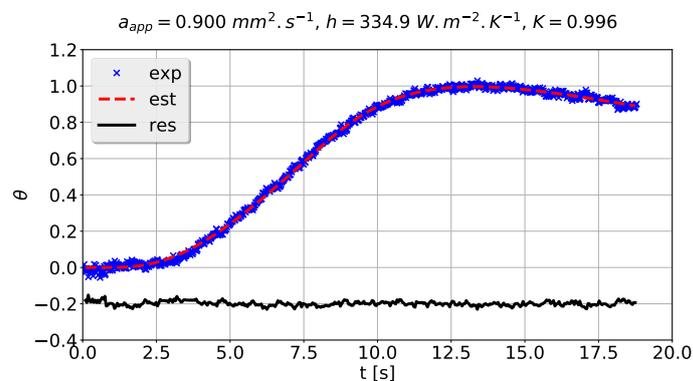
Fig. F.4 Estimations à 1250 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.



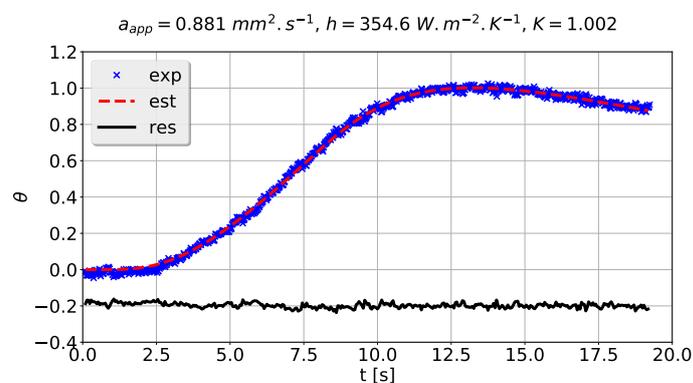
(a) Essai n°0



(b) Essai n°1



(c) Essai n°3



(d) Essai n°4

Fig. F.5 Estimations à 1300 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

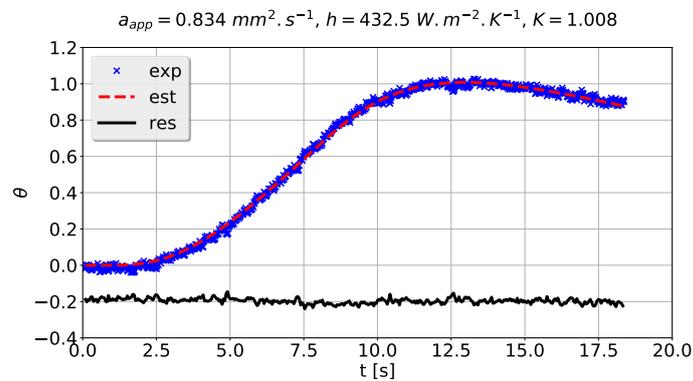
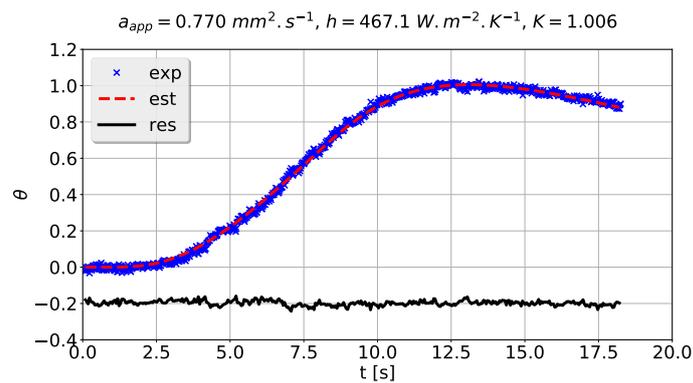


Fig. F.6 Estimations à 1350 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

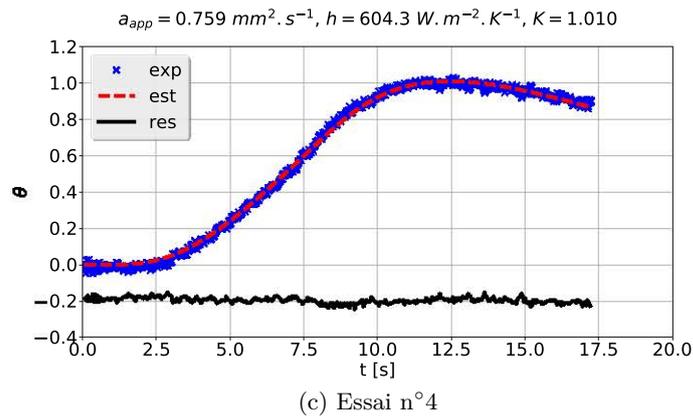
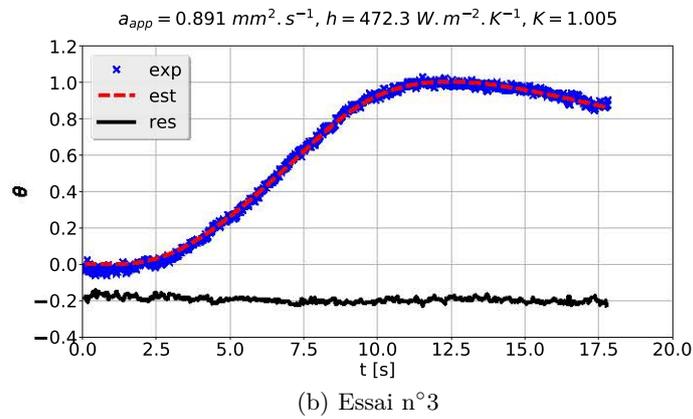
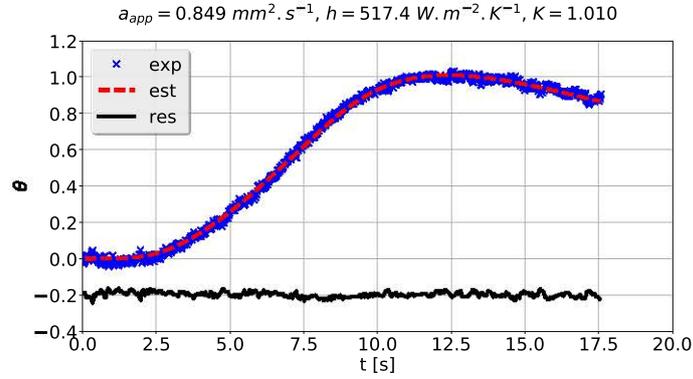


Fig. F.7 Estimations à 1400 °C pour l'échantillon AS à partir d'un modèle direct conductif pur. Les résidus ont été arbitrairement décalés de -0,2 pour faciliter la lecture. Les valeurs des paramètres estimés sont reportées en haut de chaque figure.

Les valeurs des paramètres estimés sont reportées dans la Table F.1. Certaines estimations ont été écartées (lignes grisées dans la Table E.1) car les thermogrammes expérimentaux présentaient un rapport signal sur bruit trop important et/ou des biais expérimentaux (légère décroissance du thermogramme aux temps courts et/ou ruptures de pentes lors de la montée par exemple) pour garantir une incertitude relative satisfaisante sur l'estimation des paramètres.

T [°C]	Essai	Paramètres		
		a_{app} [mm ² s ⁻¹]	h [W m ⁻² K ⁻¹]	K [-]
1100	1	0,752	202,5	0,995
1100	2	0,822	197,2	0,987
1100	4	0,747	248,3	0,991
1150	1	0,771	255,8	0,991
1150	2	0,863	208,6	0,993
1150	3	0,790	240,8	0,996
1150	4	0,805	214,9	0,997
1200	1	1,053	120,0	0,991
1200	2	0,884	242,6	0,995
1200	3	0,750	304,3	1,004
1200	4	1,052	207,2	0,992
1250	1	0,881	275,8	0,996
1250	2	0,774	352,1	1,003
1250	3	0,988	274,9	1,002
1250	4	0,879	275,2	0,995
1300	0	0,887	334,4	1,008
1300	1	0,822	402,5	1,000
1300	3	0,900	334,9	0,996
1300	4	0,881	354,6	1,002
1350	1	0,770	467,1	1,006
1350	4	0,834	432,5	1,008
1400	2	0,849	517,4	1,010
1400	3	0,891	472,3	1,005
1400	4	0,759	604,3	1,011

Tab. F.1 Valeurs des paramètres estimés à partir de thermogrammes expérimentaux pour l'échantillon AS avec un modèle direct conductif pur. Les lignes grisées correspondent aux estimations qui n'ont pas été retenues.

F.4 Discussion

F.4.1 Diffusivité thermique apparente

Les valeurs estimées de la diffusivité thermique *apparente* en fonction de la température sont illustrées sur la Figure F.8. Les valeurs reportées correspondent aux valeurs moyennes et écart-types calculés à partir des estimations réalisées sur la gamme de température considérée (i.e., entre 1100 et 1400 °C pour l'échantillon AS). On représente également, à titre indicatif, les valeurs estimées de la diffusivité thermique *phonique* (i.e., *intrinsèque*).

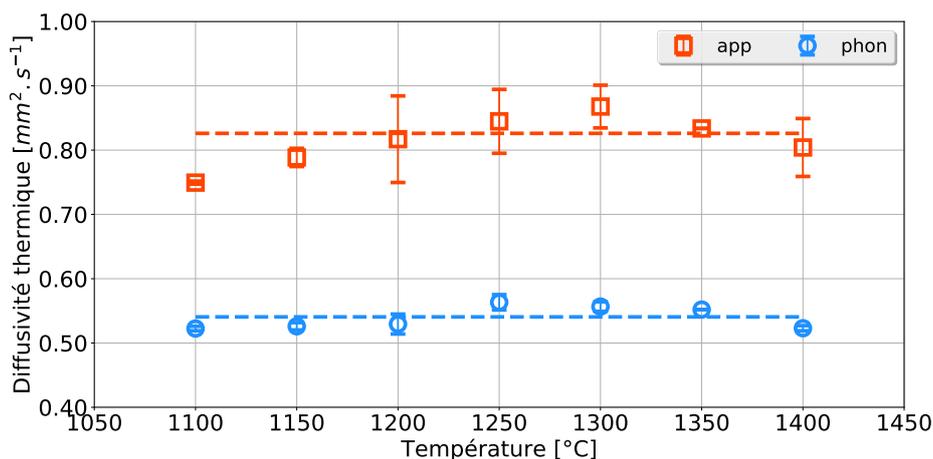


Fig. F.8 Diffusivités thermiques (apparente et phonique) estimées en fonction de la température pour l'échantillon AS. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

Les diffusivités thermiques *apparentes* estimées présentent une incertitude relative acceptable pour chaque température (i.e., le coefficient de variation est inférieur à 8%). La diffusivité thermique *apparente* estimée peut être considérée comme quasiment constante sur la gamme de températures investiguée et vaut $0,83 \pm 0,03 \text{ mm}^2 \text{ s}^{-1}$ (+54% par rapport à la diffusivité thermique *phonique*).

F.4.2 Conductivités thermiques apparente et radiative

La capacité thermique de l'échantillon étant connue, on peut également estimer la conductivité thermique *apparente*. Les valeurs estimées de la conductivité thermique *apparente* en fonction de la température sont illustrées sur la Figure F.9. On représente également, à titre indicatif, les valeurs estimées des conductivités thermiques *phonique* (i.e., *intrinsèque*) et radiative. Cette dernière est calculée à partir des estimations des conductivités thermiques *apparente* et *phonique* ($k_{rad} = k_{app} - k_{ph}$).

La conductivité thermique *apparente* estimée peut être considérée comme quasiment constante sur la gamme de température investiguée et vaut $3,07 \pm 0,09 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. La conductivité thermique radiative vaut ici $1,06 \pm 0,06 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. Ce résultat est cohérent avec un coefficient d'absorption moyen (gris) qui croît avec la température (cf. Chapitre 8). En effet, la conductivité thermique radiative est proportionnelle au cube de la température absolue et à l'inverse du coefficient d'absorption. On peut donc avoir une conductivité thermique radiative constante si le coefficient d'absorption augmente avec la température.

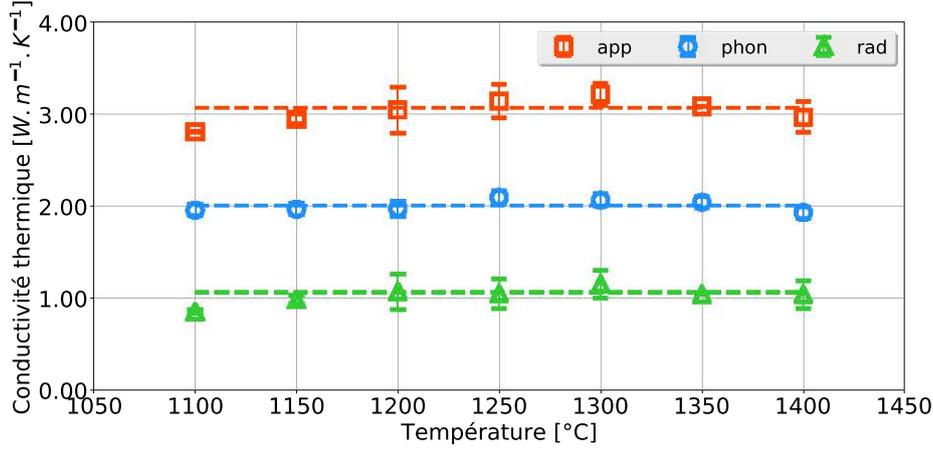


Fig. F.9 Conductivités thermiques apparente, phonique et radiative estimées en fonction de la température pour l'échantillon AS. Les symboles correspondent à des mesures et les traits en pointillés à des régressions linéaires proposées à partir des mesures réalisées.

F.4.3 Estimation de la conductivité thermique phonique avec un modèle de conductivité thermique radiative

Pour un échantillon très absorbant (i.e., pour milieu optiquement épais), on peut faire l'approximation de diffusion et estimer une conductivité thermique *apparente* à partir des thermogrammes expérimentaux. Si l'on connaît les propriétés radiatives de l'échantillon (i.e., indice de réfraction et coefficient d'absorption moyen) et des parois de la cellule de mesure, on peut calculer une conductivité thermique radiative et en déduire ensuite la conductivité thermique *phonique* ($k_{ph} = k_{app} - k_{rad}$).

On notera toutefois que le choix du modèle de conductivité thermique radiative est alors primordial. En effet, les conductivités thermiques radiatives calculées à partir des modèles proposés par Rosseland [22, 23], Poltz-Jugel [69] et Deissler [68] ne sont équivalentes que pour les très grandes épaisseurs optiques.

Pour un milieu optiquement épais gris, la conductivité thermique radiative peut s'écrire sous les formes suivantes :

$$k_{rad, ross} = \frac{16n^2\sigma T_0^3}{3\kappa} \quad (\text{F.1})$$

$$k_{rad, poltz} = \frac{16n^2\sigma T_0^3}{3\kappa} \times Y(\varepsilon, \tau_0) \quad (\text{F.2a})$$

$$Y(\varepsilon, \tau_0) = 1 - \frac{3}{4\tau_0} (1 - 4E_5(\tau_0)) - \frac{2}{3\tau_0} \left(\frac{1 - \varepsilon - 2(1 - \varepsilon)^2 E_3(\tau_0)}{1 - 4(1 - \varepsilon)^2 E_3(\tau_0)^2} \right) (1 - 3E_4(\tau_0))^2 \quad (\text{F.2b})$$

avec E_i les fonctions exponentielles intégrales.

$$k_{rad, deis} = \frac{4n^2\sigma T_0^3 e}{\frac{2}{\varepsilon} - 1 + \frac{3}{4}\kappa e} \quad (\text{F.3})$$

La première formule a été proposée par Rosseland [22, 23] et est valable pour les milieux de très fortes épaisseurs optiques (i.e., $\tau_0 \gg 1$) en assimilant les transferts radiatifs à un phénomène diffusif, analogue à la conduction thermique. On notera que les propriétés radiatives des parois entourant le milieu n'interviennent pas car le milieu est supposé suffisamment épais pour que les parois ne puissent pas interagir entre elles.

La deuxième formule a été proposée par Poltz et Jugel [69] en linéarisant la fonction de Planck au premier ordre et en considérant de faibles gradients de température dans le milieu. Dans le cas limite où l'épaisseur optique est très grande (i.e., $\tau_0 \rightarrow +\infty$), on retrouve l'expression de la conductivité radiative de Rosseland.

La troisième formule a été proposée par Deissler [68] en faisant l'approximation de diffusion dans le milieu et en supposant l'équilibre thermique local (ETL) à proximité des parois. Dans le cas limite où l'épaisseur optique est très grande (i.e., $\tau_0 \rightarrow +\infty$), on retrouve également l'expression de la conductivité radiative de Rosseland.

La Figure F.10 représente les conductivités thermiques radiatives calculées avec les modèles de Rosseland, Poltz-Jugel et Deissler en fonction de l'épaisseur optique du milieu dans le cas de parois noires ($\varepsilon = 1$) et de parois grises réfléchissantes ($\varepsilon = 0,1$). On a considéré ici un milieu à une température uniforme $T_0 = 1600$ K entouré par des parois distantes de 4 mm. L'indice de réfraction du matériau n a été pris égal à 1,467.

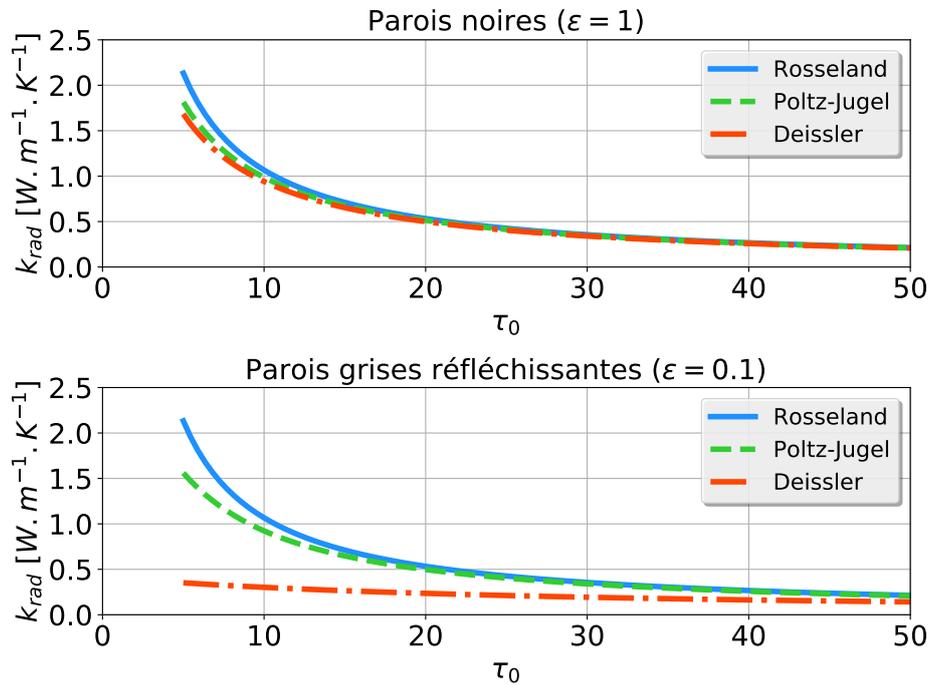


Fig. F.10 Conductivités thermiques radiatives en fonction de l'épaisseur optique avec les modèles de Rosseland, Poltz-Jugel et Deissler ($T_0 = 1600$ K, $n = 1,467$ et $e = 4$ mm) : parois noires (en haut) et parois grises réfléchissantes (en bas).

Les conductivités thermiques radiatives calculées avec les modèles de Rosseland et Poltz-Jugel sont très proches. En revanche, celles calculées avec le modèle de Deissler sont nettement inférieures dans le cas de parois grises réfléchissantes lorsque les épaisseurs optiques sont inférieures à environ 50.

Sujet : Caractérisation des propriétés thermiques de liquides semi-transparents à haute température. Application aux liquides silicatés.

Résumé : Le sujet de l'étude concerne la caractérisation des propriétés thermiques de liquides semi-transparents à haute température : les liquides silicatés. La caractérisation de ces matériaux est particulièrement délicate car il faut séparer les contributions des différents modes de transfert thermique (conduction, convection et rayonnement) si l'on veut mesurer des propriétés intrinsèques. Le dispositif expérimental est basé sur une méthode pulsée de type flash. La cellule de mesure, placée au centre d'un four tubulaire, est soumise à une excitation délivrée par un laser continu et l'élévation de température est mesurée à l'aide d'un détecteur infrarouge sur la face opposée à l'excitation. La modélisation du problème direct prend en compte le couplage conducto-radiatif en résolvant l'équation de la chaleur en régime transitoire et l'équation de transfert radiatif (ETR) pour un milieu gris émettant, absorbant et non diffusant à l'aide de la méthode des harmoniques sphériques (approximation P_1). La méthode développée permet d'estimer simultanément la diffusivité thermique et un coefficient d'absorption moyen (gris) par méthode inverse. Les résultats expérimentaux obtenus sur des liquides silicatés présentant des propriétés radiatives différentes (i.e., des coefficients d'absorption différents) valident la méthode de caractérisation développée et mise en œuvre dans nos travaux.

Mots clés : propriétés thermiques, matériaux semi-transparents, haute température, méthode flash, méthodes inverses, métrologie

Subject: Characterization of the thermal properties of semi-transparent liquids at high temperature. Application to molten silicates.

Abstract: The study deals with the characterization of the thermal properties of semi-transparent liquids at high temperature: molten silicates. The characterization of such materials is particularly challenging because the contributions of the different heat transfer modes (conduction, convection and radiation) should be accounted for to allow the measurement of intrinsic properties. The experimental setup is based on a transient pulse method derived from the flash method. A heat flux stimulation is generated on the front face of an experimental cell, placed at the center of a tube furnace, with a continuous laser beam and the temperature rise is measured by an infrared detector on the opposite side. The modeling of the direct problem takes into account the conducto-radiative coupling by solving both the heat equation and the radiative transfer equation (RTE) for a gray emitting, absorbing but non-scattering medium with the spherical harmonics method (P_1 approximation). The developed method allows to simultaneously estimate the thermal diffusivity and a mean (gray) absorption coefficient by an inverse method. The experimental results obtained on molten silicates with different radiative properties (i.e., different absorption coefficients) validate the characterization method developed and implemented in our work.

Keywords: thermal properties, semi-transparent materials, high temperature, flash method, inverse methods, metrology