HAL
open science

Etude de l'interaction laser-matière pour la fabrication de pièces à haute valeur ajoutée en céramiques oxydes semi-transparentes par fusion laser sélective sur lit de poudre

Liliana Moniz da Silva Sancho

To cite this version:

Liliana Moniz da Silva Sancho. Etude de l'interaction laser-matière pour la fabrication de pièces à haute valeur ajoutée en céramiques oxydes semi-transparentes par fusion laser sélective sur lit de poudre. Matériaux composites et construction. Université Paris sciences et lettres, 2020. Français. NNT : 2020UPSLM060 . tel-03170259

HAL Id: tel-03170259

https://pastel.hal.science/tel-03170259

Submitted on 16 Mar 2021

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.

PSL UNIVERSITÉ PARIS

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à MINES ParisTech

Etude de l'interaction laser-matière pour la fabrication de pièces à haute valeur ajoutée en céramiques oxydes semi-transparentes par fusion laser sélective sur lit de poudre

Soutenue par

Liliana MONIZ DA SILVA SANCHO

Le 15 décembre 2020

Ecole doctorale n° 621

ISMME

Spécialité

Sciences et génie des matériaux

Composition du jury :

Michel BELLET Professeur, Mines ParisTech	*Président*
Patrice PEYRE Directeur de recherche, ENSAM-Paris	*Rapporteur*
Gilbert FANTOZZI Professeur, INSA Lyon	*Rapporteur*
Cécile DAVOINE Docteur, ONERA	*Examinateur*
Bruno MACQUAIRE Responsable R&T, SAM, Safran Tech	*Examinateur*
Samuel MARLIN Docteur, Saint-Gobain	*Examinateur*
Christophe COLIN Chargé de recherche, Mines ParisTech	*Directeur de thèse*
Marie-Hélène BERGER Directrice de recherche, Mines ParisTech	*Directeur de thèse*

LA THESE C'EST UN BAMBOU DE CHEMIN JUSQU'A LA SOUTENANCE
Qui a eu l'idée d'amener un panda à la soutenance ? Surtout avec des manuscrits imprimés en bambou !
Le bambou c'est écolo mais pas très durable dans ce cas...
Lili

Remerciements

Je tiens en premier lieu à remercier tous les membres du Jury qui ont accepté d'examiner cette thèse et pour les discussions qui en sont ressorties. Un remerciement particulier s'impose aux rapporteurs, qui ont su arriver à bout de ces nombreuses pages.

Je suis reconnaissante à Naka Shigeisha, mon tuteur de stage de fin d'études et Jérôme Crépin, directeur du CDM, sans lesquels je n'aurai pas eu l'opportunité de m'investir dans cette thèse.

Je remercie toute l'équipe du Projet CEFALE faisant partie de la collaboration ACLAME inter Ecole des Mines : Qiang, Michel, Gildas, Charles-André et toutes les autres parties prenantes de l'étude. Merci pour les journées d'échange et de visites de laboratoires si diversifiés ainsi que de forts débats.

J'exprime ma plus profonde gratitude à mes encadrants. Avant tout, de m'avoir fait confiance pour mener à bien cette thèse. Toujours disponibles et passionnés par leurs métiers, ils m'ont beaucoup appris tant professionnellement que personnellement. Marie-Hélène pour ta bienveillance hors-pair. Et Christophe pour avoir toujours été là, nuit et jour, ton investissement est unique.

Merci également à l'équipe FAMHES, Jean-Do, Maria, Karine, Lyliat, Gérard, Sylvain, pour leur chaleureux accueil, leur expertise, leur bonne humeur rayonnante et les nombreuses dégustations. Je reviendrai sans hésiter pour un petit gâteau nantais ! Mille mercis à Karim pour m'avoir accompagné tout au long de ce périple et qui a contribué à une bonne partie des pages de cette thèse. Un grand merci à Fabrice pour les nombreuses heures passées à découper mes lames au FIB, un challenge peu évident mais réussi ! Merci aussi à Antoine et sa « Mac Guyver » attitude en salle polissage sans lesquels j'aurai dû finir par découper mes échantillons à la main. Je n'oublie pas non plus tous ceux qui ont pu m'aider de près ou de loin pour la mise en œuvre des essais, ou simplement échanger au détour d'un couloir, ou encore partager quelques heures de ménage. Chercheurs, techniciens, personnels administratifs ou étudiants, mais que je ne vais pas nommer pour éviter d'en oublier.

Merci à Nicolas, Victor, Anthony et Rudy pour m'avoir empêché de prendre les dix kilos pendant la thèse en se motivant pour la piscine.

Je remercie mes co-bureaux, Toinou, Juline, Hiba, Aude, Thibault, Séb, Saber, Elise mais aussi aux autres co-bureaux rapportés, Daniel, Bastien, David, Alex, Laurent, Chiraz, Fédérica, Benji et j'en passe. Ce bureau en aura vu de toutes les couleurs, des séances de déguisement pour les 12 heures, aux ateliers d'arts plastiques créatifs pour les cadeaux de thèses et surtout aux discussions de théories physiques bien farfelues jusque tard dans la nuit. Merci aux différentes promotions que j'ai vu passer, il y en a eu en 5 ans.

Seb, Alex, Bastien, un merci inquantifiable pour tout. Cela a été fatiguant de vous apprivoiser mais on s'y fait plutôt bien au final ! Surtout ne changez pas ! Après tout, au sein du CDM, j'ai trouvé une petite famille et je souhaite que les prochaines générations y retrouvent le même sentiment.

Merci à mes colocataires, Amandine, Paul, Léna, pour les apéros et les fous rires qui m'ont fait oublier le quotidien, surtout en cette année 2020.

J'exprime ma gratitude également à mes nouveaux collègues à l'accent chantant ou non, au LAP, à la team Escape game-Raclette, ils m'ont montré que l'alliance des jeux et du fromage était parfaite. Je remercie aussi

mes nouveaux responsables, Arnaud et Julien pour m'avoir offert le poste enrichissant que j'ai actuellement et pour le chaleureux accueil dans cette nouvelle région.

Je ne saurai terminer enfin, sans avoir une pensée particulière pour mon compagnon, mes parents, ma famille et mes amis. Ici ou ailleurs, ils ne sont pas loin du cœur.

TABLE DES MATIERES

ABREVIATIONS **10**

NOTATIONS **11**

NOMENCLATURE POUR LES ECHANTILLONS **17**

INTRODUCTION GENERALE **18**

I. FUSION LASER CERAMIQUE : PROBLEMATIQUES MATERIAU ET PROCEDE **23**

I.1. LE LBM AU SEIN DE LA FABRICATION ADDITIVE CERAMIQUE 26
I.1.1. Classification 26
I.1.2. Le LBM pas à pas 31
I.2. CERAMIQUES OXYDES PAR LBM 36
I.2.1. Projet CEFALE : enjeux et applications 36
I.2.2. Transparence au rayonnement laser : mécanismes d'absorption dans les matériaux diélectriques 39
I.2.3. Résistance aux chocs thermiques et préchauffage 44
I.3. FORMATION ET REGIMES D'INTERACTION DES BAINS DE FUSION 46
I.3.1. Régimes d'interaction laser-matière 46
I.3.2. Cas de l'alumine 49
I.3.3. Etapes de formation d'un bain : interaction laser-matière et phénomènes associés 51

II. CERAMIQUES OXYDES : PROPRIETES, POUDRES, SOLIDIFICATION EUTECTIQUE ET FISSURATION **60**

II.1. MATERIAUX DE L'ETUDE 62
II.1.1. Les propriétés des céramiques oxydes 62
II.1.2. L'alumine-α 65
II.1.3. La zircone 66
II.1.4. Eutectique alumine-zircone 69
II.2. CARACTERISATION DES POUDRES, LITS DE POUDRE ET SUBSTRATS 69
II.2.1. Poudres céramiques de réception 69
II.2.2. Ajout d'absorbant à la poudre 75
II.3. MICROSTRUCTURES 81
II.3.1. Théorie de la solidification eutectique 81
II.3.2. Microstructures obtenues par LBM 86
II.3.3. Réactivité des absorbants 99
II.4. FISSURATION 103

III. INTERACTION LASER-MATIERE : RELATIONS ENTRE PROPRIETES RADIATIVES ET OPTIQUES 108

III.1 PROPAGATION DU RAYONNEMENT ELECTROMAGNETIQUE DANS UN MATERIAU HOMOGENE 110
III.1.1 Polarisation électromagnétique 110
III.1.2 Relation entre propriétés optiques et diélectriques 110
III.1.3 Relation entre propriétés radiatives et propriétés optiques 116
III.2 PROPAGATION DU RAYONNEMENT ELECTROMAGNETIQUE DANS UN MILIEU HETEROGENE 123
III.2.1 Phénomène de diffusion 124
III.2.2 Equation du transfert radiatif 131
III.2.3 Méthodes de résolution de l'ETR 131
III.3 INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES DES MILIEUX SUR LES PROPRIETES RADIATIVES : ETAT DE L'ART 146
III.3.1 Température et paramètres de premier ordre 148
III.3.2 Lien entre milieu granulaire et milieu dense 153
III.3.3 Rugosité d'un substrat massif 155
III.3.4 Taille des particules et compacité 155

IV. DETERMINATION DES PROPRIETES OPTIQUES VIA DES MESURES RADIATIVES IN OPERANDO 166

IV.1 DISPOSITIF DES MESURES RADIATIVES 168
IV.1.1 Mise en place 168
IV.1.2 Configurations de mesure 169
IV.1.1 Plan d'expériences 171
IV.1.2 Etude préliminaire 173
IV.2 MATERIAUX CERAMIQUES DE RECEPTION 174
IV.2.1 Formation d'un bain statique (0D) 174
IV.2.2 Ligne de fusion (1D) 189
IV.2.3 Compacité 198
IV.2.4 Taille des particules 200
IV.2.5 Conclusion pour les matériaux céramiques de réception 201
IV.3 MELANGES CERAMIQUES – ABSORBANTS 204
IV.3.1 Formation d'un bain statique (0D) 204
IV.3.2 Ligne de fusion (1D) 215
IV.3.3 Conclusion partielle pour les systèmes mélangés à des absorbants 223
IV.4 FORMATION D'UN DRAP : PARAMETRES 2D 226

V. MODELES D'INTERACTION LASER-MATIERE 234

V.1 MODELE DE TYPE SLA 236
V.1.1 Approche analytique 236
V.1.2 Du SLA au LBM 239
V.1.1 Morphologie des bains et domaines d'interaction 242
V.2 MODELE EVOLUTIF 245
V.2.1 Cas du milieu unique : approche analytique 245
V.2.2 Relation entre $E_{l,\,min}$ et $E_{l,\,min^*}$ 257
V.2.3 Cas du lit de poudre sur substrat dense 257
V.3 SECTION DES BAINS 271
V.3.1 Interaction et consolidation dans le milieu granulaire (lit ou compact de poudre) 271
V.3.2 Interaction à l'interface 273
V.3.3 Interaction dans le substrat 274
V.4 COMPARAISON DES MODELES ET RESULTATS 279
V.4.1 Nature absorbante des matériaux et compacité 280
V.4.2 Taille des particules 283
V.4.3 Nature et teneur en absorbant 285

VI ETUDE PARAMETRIQUE 292

VI.1 ETUDE 1D 294
VI.1.1 Critères de stabilité 295
VI.1.2 Fenêtre de stabilité 311
VI.1.3 Ejections 312
VI.2 MODELES DE CONSOLIDATION DU LIT DE POUDRE 314
VI.2.1 Conservation de la matière 314
VI.2.2 Zone élargie d'interaction laser-matière : prise en compte des éjections 316
VI.3 ETUDE 2D ET 3D 326
VI.3.1 Etude 2D 326
VI.3.2 Étude 3D 332
VI.3.3 Pièces 3D et traitements thermiques 335

CONCLUSION ET PERPECTIVES 348

ANNEXES 357

BIBLIOGRAPHIE 373

Abréviations

0D	Régime stationnaire, en un point fixe, statique
1D	Une dimension, relatif aux essais sur ligne de fusion ou monocordons, dynamique, stationnaire
2D	Deux dimensions, relatif aux essais sur draps ou murs (juxtaposition de monocordons)
3D	Trois dimensions, relatif aux essais sur pièces 3D (empilement de draps)
3DP	Impression 3D
ATD	Analyse Thermique Différentielle
AR	Aller-Retour
AZ	Alumine-zircone à composition eutectique 60/40 %m.
CAO	Conception Assistée par Ordinateur
CEFALE	**Cé**ramiques hautes performances par **F**usion l**A**ser sé**LE**ctive
CFAO	Conception et Fabrication Assistées par Ordinateur
CSL	Stéréolythographie céramique
EDS	« Energy dispersive spectroscopy »
EMSE	Ecole des Mines de Saint-Etienne
ETR	Equation du transfert radiatif
FDM	« Fused deposition modelling”
ICP-AES	« Inductively Coupled Plasma – Atomic Emission Spectrometry » (spectrométrie d'émission optique)
INPACT	« Inorganic Nanostructured Parts by Aerosol Cold Technology»
IR	Infrarouge
K-M	Kubelka-Munk
LBM	« Laser Beam Melting » ou fusion laser sélective, anciennement SLM , équivalent à LPBM,…
LDP	Lit de poudre
LFZ	« Laser floating zone »
MEB	Microscope Électronique à Balayage
MO	Microscope Optique
PSZ	« Partially Stabilized Zirconia »
YSZ	zircone stabilisée à l’yttrine
SLS	Frittage Laser Sélectif ou « Selective Laser Sintering »
SD	Solidification dirigée
TZP	« Tetragonal Zirconia Polycristals »
UV	Ultra-violet
DRX	Diffraction des rayons X
ATZ	« Alumina Toughened Zirconia »
ZTA	« Zirconia Toughened Alumina »
ZA	Axe de zone
ZAT	Zone affectée thermiquement
ZD	Zone dénudée
MET	Microscopie électronique à transmission

Notations

Symbole	Dénomination	Unité
	PROCEDE LBM	
P	Puissance du faisceau laser	W
V	Vitesse de balayage du faisceau laser	$mm.s^{-1}$
V_{crit}	Vitesse de balayage critique en deçà de laquelle le cordon est discontinu	$mm.s^{-1}$
E_l	Energie linéique	$J.mm^{-1}$
$E_{l,i}$	Energie linéique minimale pour la fusion à l'interface	
$E_{l,f}$	Energie linéique de fusion	
$E_{l,t}$	Energie linéique correspondant au début du régime triangulaire	
$E_{l,k}$	Energie linéique correspondant au début du régime de keyhole	
$E_{l,min}$ ou DE'_c	Energie linéique minimale pour former un bain en profondeur	
$E^*_{l,min}$ ou DE^*_c	Energie linéique minimale pour former un bain en largeur	
E_s ou DE	Energie surfacique (ou fluence ou encore densité d'énergie)	$J.mm^{-2}$
DE_c	Energie surfacique minimale (ou critique)	
E_{vol}	Energie volumique	$J.mm^{-3}$
Δz_{poudre}	Epaisseur de poudre : hauteur de poudre étalée selon z	µm ou mm
Δz_{piston}	Épaisseur de couche, abaissement incrémental du piston de fabrication	µm
E_v	Ecart-vecteur, distance entre deux vecteurs (centre du monocordon)	µm
τ_r	Taux de recouvrement entre deux cordons juxtaposés	-
Φ_l	Diamètre du faisceau laser	µm
Φ_{int}	Diamètre d'interaction laser-matière	µm
t_{int}	Temps d'interaction	s
Δt_{int}	Durée du régime d'interaction	s
t_f	Temps au bout duquel la fusion est amorcée	s
H_{app}	Hauteur apparente du cordon	µm
H_{ZR}	Hauteur de la zone refondue	
H_{bain}	Hauteur du bain de fusion	
$H_{retrait}$	Hauteur de retrait	
H_{Gonf}	Hauteur de gonflement	
H_{ZF}	Hauteur de zone fondue	
H	hauteur de la zone fondue issue l'interaction entre le laser et le LDP (ou compact de poudre)	
e_{app}	Largeur apparente du cordon	
e_i	largeur de la zone d'interaction laser-LDP à l'interface LDP-substrat	
e_{ZR}	Largeur de la zone refondue	
L_{ZF}	Largeur de la zone fondue	
L_{bain}	Largeur du bain	
L_{Gonf}	Largeur du gonflement	
L	Largeur de la zone fondue issue l'interaction entre le laser et le LDP	
l_{app}	Longueur du bain	
$S_{retrait}$	Section de retrait	mm^2
S_{Gonf}	Section de gonflement	
S_{bain}	Section du bain de fusion	
S_{ZF}	Section de zone fondue	
S_0	Section de consolidation	
S_0^{part}	Partie dense de la section de consolidation	
S_0^{pore}	Partie poreuse ou gazeuse de la section de consolidation	
$S_0^{éjecté}$	Section de particules éjectées de la zone de consolidation	

$S_{LDP/0}^{éjecté}$	Section de particules solides éjectées de la section de consolidation	
$S_{spatter/0}^{éjecté}$	Section d'éjectas liquides issus du bain de fusion	
S_{ZD}	Section de zone dénudée	
S_{ZD}^{part}	Partie dense de la section de zone dénudée	
S_{ZD}^{pore}	Partie poreuse ou gazeuse de la section de zone dénudée	
S_{app}	Section du cordon apparent	
$S_{app/ZD}$	Section du cordon apparent provenant des particules éjectées de la zone dénudée	
$S_{LDP/ZD}$	Section des particules éjectées de la zone dénudée vers le lit de poudre	
S_{ZR}	Section de la zone refondue	
S_{tot}	Section totale regroupant section de zone dénudée et section du cordon	
S_{tot}^{part}	Partie dense de la section totale	
S_{tot}^{pore}	Partie poreuse ou gazeuse de la section totale	
D	Dispersion de la hauteur du cordon	-
σ	Ecart-type de la hauteur du cordon	-
r_e^{cordon}	Rapport d'élancement du cordon	-
r_e^{ZR}	Rapport d'élancement de la zone refondue	-
r_e^{bain}	Rapport d'élancement du bain par rapport à sa hauteur	-
$r_e^{bain\ L}$	Rapport d'élancement du bain par rapport à sa longueur	-
τ_{cons}	Taux de consolidation	-
τ_{ZD}^{part}	Taux de particules éjectées de la zone dénudée	-
τ_0^{part}	Taux de particules éjectées de la zone de cosnolidation	-
N_{CR}	Nombre de couches refondues	-
Dil	Rapport de dilution	-
θ	Angle de mouillage	°
α	Angle de dilution	°
RA	Retrait axial	-
RR	Retrait radial	-
ψ	Facteur d'anisotropie	-
D	Dispersion sur la hauteur du cordon	-
Lits de poudre		
Pt	Porosité du lit de poudre	-
Pd	Compacité du lit de poudre	-
d	Diamètre	µm
d_{10}	Diamètre équivalent supérieur ou égal à celui de 10% des particules analysées	µm
d_{50}	Diamètre équivalent supérieur ou égal à celui de 50% des particules analysées – Taille moyenne de particules	µm
d_{90}	Diamètre équivalent supérieur ou égal à celui de 90% des particules analysées	µm
l_p	Distance entre particules	mm
ρ ou $d_{apparente}$	Masse volumique ou densité apparente	$g.cm^{-3}$
ρ_{th} ou $d_{thérorique}$	Masse volumique ou densité théorique	$g.cm^{-3}$
$\rho_{r,tassée}$	Densité relative de la poudre tassée	-
$\rho_{r,versée}$	Densité relative de la poudre versée	-
$\rho_{tassée}$	Masse volumique apparente de la poudre tassée	$g.cm^{-3}$
$\rho_{versée}$	Masse volumique apparente de la poudre versée	$g.cm^{-3}$
$d_{relative}$	Densité relative	-
ρ_l	Masse volumique apparente du liquide	$g.cm^{-3}$
I_H	Indice d'Hausner	-
I_c	Indice de Carr	-
AUTRES		
K_{IC}	Ténacité	$MPa.m^{1/2}$

σ_r	Contrainte à rupture	MPa
γ_{LV}	Tension de surface liquide-vapeur	mJ.m^{-2}
η	Viscosité dynamique	Pa.s
T_g	température de transition vitreuse	K ou °C
T_{amb}	Température ambiante	K ou °C
T_f	Température de fusion	K ou °C
$T_{éb}$	Température d'ébullition	K ou °C
T	Température	K ou °C
C_p	Capacité calorifique massique	J.g^{-1}.K^{-1}
$L_{f,v}$	Chaleur latente volumique de fusion	J.cm^{-3}
$\Delta h_{f,v}$	Enthalpie volumique de de fusion	J.cm^{-3}
a_L	Coefficient de diffusion dans le liquide	$m^2.s^{-1}$
d_{hkl}	Distance inter-réticulaire	nm
OPTIQUE ET ELECTROMAGNETIQUE		
n	Indice de réfraction (ou indice optique)	-
κ_e	Indice d'extinction	-
E	Energie	eV
ΔE	Ecart d'énergie	eV
E_{gap}	Energie de la bande interdite	eV
E_{laser}	Energie de l'onde lumineuse laser	eV
$\mathbf{k}$	Vecteur d'onde	m^{-1}
λ	Longueur d'onde	µm
ν	Fréquence de l'onde lumineuse	Hz
h	Constante de Planck	$6{,}626.10^{-34} J.s$
c_0	Célérité de la lumière	m.s^{-1}
σ_e	Conductivité électrique du matériau	$\Omega^{-1}.m^{-1}$
η_c	Densité critique d'électrons	e^-/m^3
$\vec{E_i}/\vec{E_r}/\vec{E_t}$	Champ électrique incident/réfléchi/ transmis	$V.m^{-1}$
$E_i^{max}/E_r^{max}/E_t^{max}$	Amplitude des champs électriques incident/réfléchi/transmis	$W.m^{-2}$
$\vec{P}$	Polarisation électrique	-
$\vec{D}$	Déplacement électrique	$C.m^{-2}$
ε_0	Permittivité diélectrique du vide	$F.m^{-1}$
ε_m	Permittivité diélectrique du matériau	$F.m^{-1}$
χ_e	Susceptibilité électrique du matériau	-
ε_r	Permittivité diélectrique relative ou fonction diélectrique du matériau	-
$\tilde{\varepsilon}_r$	Permittivité diélectrique relative complexe	-
δ_{th}	Distance de diffusion thermique	m
λ_{th}	Conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
C_p	Chaleur spécifique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
ω	Pulsation de l'onde	Rad.s^{-1}
μ_m	Perméabilité magnétique du matériau	$kg.m.A^{-2}s^{-2}$
μ_0	Perméabilité magnétique du vide ou constante magnétique	$4\pi.10^7$ $g.m.A^{-2}s^{-2}$
μ_r	Perméabilité magnétique relative du matériau	-
δ	Epaisseur	m
δ_{abs}	Distance de pénétration ou épaisseur optique	
δ_{ext}	Libre parcours moyen d'extinction ou épaisseur optique d'extinction	
δ_{sub}	Epaisseur du substrat	
α_{ext}	Coefficient d'extinction pour un milieu hétérogène	m^{-1}
α_{abs}	Coefficient d'absorption linéaire ou volumique pour un milieu homogène	
α_{abs}^p	Coefficient d'absorption du lit de poudre	
α_{abs}^s	Coefficient d'absorption du substrat	

α_{abs}^{ps}	Coefficient d'absorption d'un milieu multicouche {lit de poudre+substrat}	
α_f	Coefficient d'absorption de l'état fondu (liquide sur solide)	
α_k	Coefficient d'absorption de l'état keyhole	
α_l	Coefficient d'absorption du liquide	
I_0	Irradiance incidente	$\mathrm{W.m^{-2}}$
$I_R/I_{Tr}/I_A$	Irradiance réfléchie/ transmise/ absorbée	$\mathrm{W.m^{-2}}$
$\tilde{r}$	Coefficients de réflexion en amplitude	-
$\tilde{t}$	Coefficients de transmission en amplitude	-
a_{th}	Diffusivité thermique du matériau	$\mathrm{m^2}.s^{-1}$
ε	Émissivité monochromatique directionnelle	-
c_m	Vitesse de propagation l'onde dans le matériau	
$\tilde{n}$	Indice de réfraction complexe	-
$C_{abs}/C_{diff}/C_{ext}$	Section efficaces d'absorption/ de diffusion / d'extinction	$\mathrm{m^2}$
$Q_{abs}/Q_{diff}/Q_{ext}$	Facteur d'efficacité d'absorption/ de diffusion / d'extinction	-
W_{abs}/W_{diff}	Flux d'énergie absorbé / diffusé	W
x	Paramètre de taille de Mie	-
N	Nombre de particules	-
r_p	Rayon de la particule	m
s	Coefficients macroscopiques de diffusion	m^{-1}
k	Coefficients macroscopiques de d'absorption	m^{-1}
d_{ip}	Distance inter-particulaire	m
fv_p	Compacité ou fraction volumique de particules	-
f	Fraction volumique d'inclusions au sein d'une matrice	-
f_{min}	Fraction volumique de la phase minoritaire	-
f_{maj}	Fraction volumique de la phase majoritaire	-
R/Tr/A ou $\mathbf{R_c/Tr_c/A_c}$	Coefficient de réflexion/transmission/absorption monochromatique directionnel (spéculaire ou collimaté) ou **réflectivité/ transmittivité/ absorptivité**	-
$\mathbf{R_h/T_h/A_h}$	Coefficient de réflexion/transmission/absorption monochromatiques hémisphériques ou **réflectance/ transmittance/ absorbance**	-
$\mathbf{R_d/\ Tr_d/A_d}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance diffuses	-
$\mathbf{R_p\ /\ Tr_p\ /A_p}$	Réflectivité/ transmittivité/ absorptivité du lit de poudre	–
$\mathbf{R_s\ /\ Tr_s/\ A_s}$	Réflectivité/ transmittivité/ absorptivité du substrat	-
$\mathbf{R_{h,ps}^{abs}\ /Tr_{h,ps}^{abs}}$	Réflectance / Transmittance de l'ensemble {lit de poudre+substrat} pour un matériau absorbant ou d'épaisseur semi-infinie	-
$\mathbf{R_{h,p}/Tr_{h,p}/A_{h,p}}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance du lit de poudre semi-transparent d'épaisseur finie	-
$\mathbf{R_{h,s}/Tr_{h,s}/A_{h,s}}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance du substrat semi-transparent d'épaisseur finie	-
$\mathbf{R_i/Tr_i}$	Réflectance / Transmittance à l'interface lit de poudre/substrat	-
$\mathbf{R_{h,ps}/Tr_{h,ps}/A_{h,ps}}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance de l'ensemble {lit de poudre+substrat} semi-transparent d'épaisseur finie	-
$\mathbf{R_k\ /\ Tr_k/\ A_k}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance du régime keyhole	-
$\mathbf{R_f\ /\ Tr_f/\ A_f}$	Réflectance / Transmittance/Absorbance du liquide	-
$\mathbf{R_{nf}}$	Réflectance de la matière non fondue	-
$\tilde{\varepsilon}_{eff}$	Fonction diélectrique effective complexe	-
$\tilde{\varepsilon}_{mat}/\tilde{\varepsilon}_i/\tilde{\varepsilon}_{air}/\tilde{\varepsilon}_p/\tilde{\varepsilon}_{sub}/\tilde{\varepsilon}_{min}/\varepsilon_{maj}$	Fonction diélectrique effective complexe de la matrice / des inclusions / de l'air / des particules / du substrat / de la phase minoritaire / de la phase majoritaire	-
n_p	Indice optique du lit de poudre	-
n_{mat}	Indice optique de la matrice	-
n_{eff}	Indice optique effectif	-

n_r/n_p /n_{Ar}/ n_{air}	Indice de réfraction respectivement de la résine, des particules, de l'argon, de l'air	
$\kappa_{e,eff}$	Indice d'extinction effectif	-
$R_{h,\infty}$	Réflectance d'une épaisseur semi-infinie	-
R_{∞}^{KM}	Réflectance suivant Kubelka-Munk d'une couche d'épaisseur semi-infinie dite **« cas opaque »**	-
R_g^{KM}	Réflectance suivant Kubelka-Munk d'une couche d'épaisseur finie dite « **cas translucide** »	-
R_g	Réflectance du fond ou substrat	-
R^{KM}	Réflectance suivant Kubelka-Munk d'une couche d'épaisseur finie sans substrat ou dont le substrat est un fond noir ou un verre transparent dit « **cas autoporté** »	-
Tr^{KM}	Transmittance suivant Kubelka-Munk d'une couche d'épaisseur finie sans substrat ou dont le substrat est un verre transparent	-
a, b	Coefficients secondaire définis par Kubelka-Munk	-
$I(z)$	Irradiance dans le sens de propagation du rayonnement incident	W. m^{-2}
$J(z)$	Irradiance sens inverse e propagation du rayonnement incident (ou rétrograde)	
$I_d(z)/J_d(z)$	Irradiance diffuse incidente/ rétrograde à la position z	
$I_{d,0}$ /$J_{d,0}$	Irradiance diffuse à la face avant incidente/ rétrograde à la position z=0	
I_d^f/J_d^f	Irradiance diffuse incidente/ rétrograde de la face avant de la surface supérieure	
I_d^b/J_d^b	Irradiance diffuse incidente de la face arrière de la surface supérieure	
r_{dd}^f/r_{dd}^b	Coefficient de réflexion diffus d'un rayonnement diffus à la face avant /face arrière	-
r_{dd}^s	Coefficient de réflexion diffus d'un rayonnement diffus du substrat	-
r_c^f	Coefficient de réflexion d'un rayonnement collimaté à la face avant de la surface supérieure	-
r_{cc}^f/r_{cc}^b	Coefficient de réflexion collimaté d'un rayonnement collimaté à la face avant/arrière	-
r_{cc}^s	Coefficient de réflexion collimaté d'un rayonnement collimaté du substrat	
r_{cd}^f/r_{cd}^b	Coefficient de réflexion diffus d'un rayonnement collimaté à la face avant/arrière	-
r_{cd}^s	Coefficient de réflexion diffus d'un rayonnement diffus à la face supérieure du substrat	-
K	Coefficient d'absorption effectif	m^{-1}
S	Coefficient de diffusion effectif	m^{-1}
θ_i	Angle d'incidence	°
θ_r	Angle réfléchi	°
R_{cc}/Tr_{cc}	Fraction collimatée du flux total incident réfléchi (transmis) de manière collimatée	-
R_{cd}/Tr_{cd}	Fraction diffuse du flux total incident réfléchi (transmis)de manière collimatée	-
R_{dd}/Tr_{dd}	Fraction diffuse du flux total incident réfléchi (transmis) de manière diffuse	-
$R_{dd,\infty}$	Réflectance diffuse sous incidence diffuse d'une couche de poudre d'épaisseur semi-infinie	-
$R_{cd,\infty}$	Réflectance diffuse sous incidence collimatée d'une couche de poudre d'épaisseur semi-infinie	-
ζ	Fraction d'intensité du faisceau collimaté transformée en rayonnement diffus dans la direction incidente	-
γ	Facteur multiplicative du trajet optique liée à la diffusion	-
k	Coefficient de perte d'intensité du faisceau collimaté par suite de l'absorption du milieu,	-
s	Coefficient de perte d'intensité par suite de la diffusion par le milieu, du faisceau collimaté	-
$r_F(\theta_i)$	Coefficient de Fresnel	-
$r^{\perp}(\theta_i)/r^{//}(\theta_i)$	Coefficient de réflexion de la lumière polarisée avec un champ électrique perpendiculaire /parallèle au plan	-
SOLIDIFICATION		
G	Gradient thermique	$°C.mm^{-1}$
ΔT	Surfusion	K ou °C
ΔT_{crit}	Ecart de température critique ΔT_{crit} admissible par le matériau céramique	
T_E	Température de croissance eutectique	

$\boldsymbol{T_D}$	Température de croissance dendritique	
$\mathbf{\Delta T_C}$	Surfusion constitutionnelle	
$\mathbf{C_E}$	Composition eutectique exacte	%m ou % vol
$\mathbf{C_{max}}$	Limite de concentration en zircone	
$\mathbf{V_s}$	Vitesse de solidification	$°C.s^{-1}$

Nomenclature pour les échantillons

Dans cette étude, les fusions ont étés menées sur différentes natures de substrat et de poudre mélangées ou non à différentes teneurs en absorbant. La nomenclature choisie pour les échantillons est la suivante :

Nom d'échantillon	Description
P*X* + *ax*_**S***Y* + *by*	Lit de poudre déposé sur un substrat (configuration de fabrication LBM)
P*X* + *ax*_**C***Y* + *by*	Lit de poudre déposé sur un compact de poudre
P*X* + *ax*	Lit de poudre
S*Y* + *by*	Substrat dense
C*Y* + *by*	Compact de poudre

Avec :

- « **X** » : la nature de la poudre
- « **Y** » la nature du substrat

Prenant les valeurs suivantes :

A	Alumine
AZ	Alumine-Zircone
Z	Zircone
INCO625	Inconel 625
Ha188	Haynes 188
EMSE2	Poudre d'alumine fournie par l'Ecole des Mines de Saint-Etienne élaborée à partir d'un déliantage à **2% de liant** (voir Chapitre II)
EMSE4	Poudre d'alumine fournie par l'Ecole des Mines de Saint-Etienne élaborée à partir d'un déliantage à **4% de liant** (voir Chapitre II)
VERRE	Substrat transparent (BK7)

- « ***x*** » la nature de l'absorbant mélangé à la poudre
- « ***y*** » la nature de l'absorbant mélangé au substrat

Prenant les valeurs suivantes :

C	carbone
SiC	SiC-β
INCO625	Inconel 625

- « **a** » et « **b** » les teneurs en absorbants mélangés respectivement à la poudre ou au substrat. Ces teneurs varient entre 0,1 et 2% en masse.

A titre d'exemple, pour un dépôt de poudre d'alumine mélangée à 0,5% en masse de carbone et déposée sur un substrat dense lui-même contenant 0,5% de carbone, on écrit : **« PA+0,5C_SA+0,5C ».**
Dans le cas d'un compact d'alumine-zircone de réception dit « pur », à savoir non mélangé à un absorbant, on note : **« CAZ ».**

INTRODUCTION GENERALE

La plupart des recherches menées dans le domaine de la fabrication additive ont trait à des pièces polymères ou métalliques. L'application de cette technologie, et plus particulièrement de la fusion laser sélective sur lit de poudre *(laser beam melting LBM)* aux céramiques constitue un enjeu de taille. La combinaison de ces matériaux avec ce procédé permettrait le design de nouvelles pièces céramiques aux formes complexes sans usinage excessif. Ce dernier pouvant représenter jusqu'à 80% du coût de production d'une pièce en céramique par voie conventionnelle. En général, la plupart des procédés de fabrication additive associés aux céramiques sont essentiellement indirects. Ils reposent sur l'association de grains avec une résine photosensible aux UV ou avec un liant polymère, suivi d'un déliantage et enfin d'un frittage naturel. Or, le LBM permet la construction de pièces céramiques en une seule étape par fusion et engendrent une microstructure spécifique bien différente de celle obtenue par frittage conventionnel.

Le travail de recherche exposé dans ce manuscrit, s'inscrit dans le cadre du projet *CÉFALÉ (fabrication additive de pièces **CE**ramiques hautes performances par **F**usion l**A**ser sé**LE**ctive)* qui est-lui même intégré dans un projet Carnot inter-MINES 2014. Il porte majoritairement sur une céramique oxyde, l'Al_2O_3-ZrO_2 à composition eutectique. Ce matériau est léger, intrinsèquement résistant à l'oxydation à chaud et réfractaire. Les conditions thermiques du LBM pourraient engendrer une solidification dirigée menant à des microstructures colonnaires (orientées et au nombre limité de grains), polyphasées et finement interpénétrées. Celles-ci inhiberaient ainsi le mouvement des dislocations intra-lamelles, conférant ainsi une résistance au fluage élevée à haute température. La taille et la distance inter-lamellaire sont gérées par la vitesse de refroidissement. Ainsi, le choix d'allier ce matériau au procédé LBM qui a pour caractéristique un refroidissement rapide, semble cohérent vis-à-vis de l'objectif défini. En complément de l'Al_2O_3-ZrO_2, l'Al_2O_3 faisant office de matériau modèle est aussi envisagé pour comparaison, ses propriétés étant largement étudiées dans la littérature et son évolution microstructurale plus simple. Les applications visées sont des structures aux géométries complexes (aubes de turbines, noyaux de moules de fonderie,…) nécessitant une haute tenue mécanique à haute température. En effet, les céramiques oxydes de composition eutectique suscitent depuis une quinzaine d'années un regain d'intérêt chez les motoristes aéronautiques et dans le monde académique comme éventuelle solution de remplacement des superalliages à revêtement céramique ; encore faut-il que ces céramiques eutectiques démontrent en fonctionnement une bonne ténacité, un bon comportement aux chocs thermiques et une résistance à la fatigue thermique.

La mise en forme des céramiques oxydes par LBM consiste en la mise en couche d'un milieu granulaire sur un substrat dense qui passe en voie liquide suite à l'impact d'un laser Yb:YAG de longueur d'onde 1070 nm avec la formation rapide d'un bain. Ce procédé est alors confronté à différentes problématiques. Les principales sont la très faible absorption des céramiques oxydes à ce rayonnement laser Yb:YAG usuellement présent sur les machines de fabrication additive ; et leur faible résistance aux chocs thermiques. Ici, l'ajout d'un absorbant éphémère (carbone ou SiC-β) ou persistant (particules métalliques d'Inconel 625) à la poudre céramique permet de pallier la quasi-transparence du matériau. Le contrôle de la fissuration induite par les fortes vitesses de refroidissement et les gradients thermiques élevés du LBM ne sera pas un objectif de ce travail. Néanmoins, une brève analyse exploratoire de la fissuration sera menée ainsi que des moyens à envisager pour la réduire voire la supprimer.

*Le **Chapitre I** de ce manuscrit présente le LBM céramique parmi les autres procédés de fabrication additive céramique existants et plus matures. Les objectifs du projet CÉFALÉ sont clairement définis dans ce chapitre ainsi que les problématiques liées au transfert du rayonnement laser et des calories aux céramiques oxydes. Un état de l'art concernant l'interaction laser-matière est également établi. Grace au développement récent*

des techniques d'imagerie rapide appliquées au LBM, les études sur l'interaction laser-matière au voisinage du bain se sont fortement multipliées ces dernières années. Elles ont principalement trait aux matériaux métalliques mais permettent toutefois d'appréhender les mécanismes de formation d'un bain de fusion ainsi que les phénomènes physiques associés tels que les éjections de matière solide comme liquide.

Le ***Chapitre II*** *définit premièrement les propriétés physico-chimiques et mécaniques des céramiques oxydes qu'il convient de contrôler ou d'améliorer pour l'application visée (aubes de turbines). Les matières premières du procédé de fusion laser, à savoir, les poudres et leurs mélanges avec des absorbants, étant primordiales pour la réussite de la fabrication de pièces en céramique oxyde, leurs caractéristiques chimiques, morphologiques, optiques et granulométriques sont étudiées. La solidification des céramiques oxydes fondues et leurs microstructures sont ensuite analysées. Dans la mesure où les cycles de fusion et de solidification engendrés par le LBM sont rapides, il s'établit une microstructure et un état de contraintes internes spécifiques qu'il convient de bien décrire. Les problèmes de fissuration rencontrés après la solidification et les solutions envisagées seront abordés. Ces travaux de thèse étant principalement dédiés à la compréhension de l'interaction laser-matière de céramiques oxydes semi-transparentes, les études de la microstructure et de la fissuration ne seront pas exhaustives mais serviront à guider les futures études sur ces matériaux et leurs poudres associées.*

L'ajout d'un absorbant à la poudre céramique a un impact sur l'arrangement des particules dans le lit de poudre et sur ses propriétés optiques, ce qui va directement influencer la stabilité des bains et donc la fenêtre paramétrique du procédé pour la construction de pièces 3D. Il convient alors de comprendre les mécanismes d'interaction du rayonnement laser dans un lit de poudre constitué de particules céramiques oxydes mélangées ou non avec un absorbant. En effet, le cas de l'interaction du laser avec un lit de particules de poudre semi-transparente et déposé sur un substrat dense est complexe. Les propriétés radiatives (la réflectance, la transmittance et l'absorbance) régissent l'interaction laser-matière et la formation d'un bain dont une partie est dans le substrat (ou dans les couches précédentes). Ces propriétés radiatives sont influencées par la nature chimique de l'échantillon mais également par les caractéristiques du lit de poudre (porosité, taille de particules), de celles du substrat et donc de l'interface entre les deux, ainsi que par les paramètres du procédé et l'état solide ou liquide de la matière. Les données optiques de la littérature pour ces matériaux sont limitées. Elles se résument souvent à une gamme restreinte de longueurs d'onde et concernent le plus souvent l'état massif de ces matériaux. Des mesures radiatives par sphère intégrante (en réflexion et en transmission) ont été développées *in operando* de manière à connaître précisément les propriétés optiques des matériaux élaborés dans l'enceinte de fabrication ; ainsi que leur évolution avec la nature et teneur en absorbant et les caractéristiques du milieu granulaire. Les signaux recueillis à la sortie de la sphère intégrante nécessitent un traitement numérique très précis reposant sur les lois de l'optique et dépendent de la nature du milieu (dense ou poreux) ainsi que de la nature du rayonnement incident et de la configuration de mesure.

Le ***Chapitre III*** *aborde les théories optiques et leurs approximations applicables au LBM qui permettront de traiter les signaux issus des mesures radiatives réalisées* in operando*. Il est notamment nécessaire de prendre en compte un rayonnement incident de nature collimatée et un rayonnement émergent du matériau de manière diffuse. On distingue d'une part les lois de l'optique géométrique applicables à un milieu homogène (substrat dense ou bain liquide) ayant pour fondement la loi de Beer-Lambert ; et d'autre part, les méthodes multi-flux issues de la résolution de l'équation de transfert radiatif nécessaires au traitement d'un milieu hétérogène (granulaire). Les propriétés radiatives mesurées dépendront des caractéristiques des milieux étudiés (composition chimique, rugosité, compacité, taille de particules, etc) et des paramètres du procédé LBM (puissance, vitesse, taux de recouvrement, épaisseur de poudre, etc.). Une revue bibliographique des quelques propriétés radiatives fournies par la littérature permettra d'établir les premières corrélations avec les propriétés des milieux, servant ainsi de guide pour les mesures réalisées par la suite.*

Les mesures radiatives informent donc sur les mécanismes d'interaction laser-matière et permettent le calcul des propriétés optiques des matériaux tels que les coefficients d'absorption et de diffusion à l'état

solide et liquide. Ces coefficients permettent d'une part l'alimentation de modèles numériques complexes comme ceux développés au *CEMEF*, notamment dans la thèse de (Chen 2018) inclue dans le projet CEFALE. D'autre part, ils sont employés au sein d'un modèle analytique d'interaction laser-matière, dit *modèle évolutif*. Ce modèle constitue une amélioration du modèle d'interaction laser-matière dit modèle *de type SLA* proposé par (Shaker 2017) et reposant sur la loi de Beer-Lambert. Le *modèle de type SLA* permet le calcul des diamètres d'interaction et des énergies linéiques minimales pour la fusion en prenant en compte uniquement les dimensions des bains. Le *modèle évolutif*, plus complet, repose sur une description des propriétés optiques à l'état solide et liquide et prend en compte chacun des milieux (granulaire, dense ou l'ensemble {lit de poudre + substrat} caractéristique du LBM). Il fait le lien entre les dimensions des bains, les propriétés radiatives des milieux concernés, les coefficients d'absorption, les paramètres du procédé et les caractéristiques du lit de poudre. Ce modèle d'interaction laser-matière dit *évolutif* constitue alors un outil pour définir des grandeurs propres à chaque système comme l'énergie linéique limite nécessaire pour fondre à l'interface lit de poudre/substrat. Il permet également d'exprimer sous forme analytique la section apparente fondue (S_{app}) au sein du lit de poudre, celle de la zone refondue (S_{ZR}) au sein du substrat ainsi que celle de la consolidation (S_0) du lit de poudre. Ces expressions sont fonction des paramètres du procédé, des caractéristiques du lit de poudre et des dimensions des bains.

*Le **Chapitre IV** présente la mise en place des mesures radiatives par sphère intégrante ainsi que les résultats associés et traités selon les modèles optiques présentés au Chapitre III. L'effet des paramètres du procédé, des caractéristiques du lit de poudre (granulométrie, porosité,…), ainsi que de la nature et teneur en absorbant sont mis en évidence. Les mesures sont effectuées sur différents milieux, qu'ils soient dense (substrat), granulaire ou mixte (lit de poudre + substrat) et aussi bien dans un état solide que dans un état liquide. Cette description complète est nécessaire pour le traitement des données radiatives dans le but de calculer les coefficients d'absorption mais également pour l'alimentation du modèle* évolutif. *De plus, la compréhension de l'amorce de la fusion à partir de l'état solide grâce à l'absorbant mélangé à la poudre est primordiale pour ces céramiques oxydes qui sont initialement transparentes au rayonnement laser usuellement utilisé par le LBM. La comparaison des mesures radiatives de ces matériaux avec celles des matériaux métalliques qui sont, à l'inverse, absorbants au rayonnement laser est alors enrichissante.*

*Le **Chapitre V** décrit le modèle* de type SLA *applicable à un milieu unique et le modèle* évolutif *applicable à ce même milieu mais également au milieu représentatif du LBM (lit de poudre + substrat) avec la prise en compte du passage à l'état liquide. A partir du modèle* évolutif, *sont calculées les sections caractéristiques de l'interaction laser-matière. L'application numérique des modèles est réalisée pour les systèmes pures (ou de réception) et pour les mélanges avec les absorbants (carbone, SiC-β et Inconel 625) ainsi qu'une comparaison entre les deux modèles analytiques.*

La fabrication de pièces 3D est possible grâce à une étude paramétrique qui définit les domaines de stabilité. Ces domaines sont identifiés par la définition de critères géométriques tels que la dispersion de la hauteur du cordon sur toute sa longueur, la continuité et rectitude du cordon ou encore les facteurs de forme des bains. Il est alors intéressant de comparer l'étendue des domaines de stabilité identifiés pour les différentes natures et teneurs en absorbant avec les mécanismes d'interaction laser-matière identifiés au travers des mesures radiatives.

Des modèles de consolidation du lit de poudre avaient été définis par (Vilaro 2011; Vinson 2015) en considérant l'absence d'échange de matière entre les différentes zones d'interaction laser-matière. Or, la communauté scientifique est aujourd'hui unanime pour indiquer qu'il y a bien des échanges de matière entre le bain et le lit de poudre. Il convient donc de redéfinir un modèle de consolidation qui prend en compte ces flux de matière. En couplant ce modèle de consolidation avec les sections calculées par le modèle *évolutif*, il sera possible de quantifier les échanges de matière observés (éjection de particules solides ou d'éjectas liquides).

Le ***Chapitre VI*** *constitue l'étude paramétrique qui se divise en études 1D, 2D et 3D afin de prendre en compte le nombre conséquent de paramètres. Cette étude mène finalement à la fabrication de pièces 3D dont une aube de turbine, pour les systèmes identifiés comme étant les plus stables. Ce succès est en grande partie lié au développement d'une stratégie de construction spécifique aux matériaux céramiques pour éviter les points chauds et compenser la zone dénudée bien plus importante que celle observée avec les matériaux métalliques. Un nouveau modèle de consolidation du lit de poudre est développé qui prend en compte les phénomènes d'échange de matière nouvellement observés. Enfin, une brève étude sur les post-traitements thermiques aiguillera sur les solutions à mettre en œuvre pour améliorer la stabilité des microstructures lors de vieillissements à hautes températures (T≥1100°C).*

CHAPITRE I

FUSION LASER CERAMIQUE : PROBLEMATIQUES MATERIAU ET PROCEDE

La fabrication additive céramique reste la moins développée comparée à celle des matériaux métalliques et surtout des matériaux polymères. Néanmoins, il existe une gamme de procédés intéressante et de nombreuses possibilités parmi lesquelles certaines techniques sont déjà matures. La fusion laser sélective (LBM), fonctionnelle sur les matériaux métalliques présente des contraintes vis-à-vis des matériaux céramiques oxydes mais son développement présente de forts enjeux industriels. De plus, afin de discuter de l'interaction laser-matière, il est important pour la suite de cette étude de comprendre les mécanismes de formation d'un bain de fusion ainsi que l'hydrodynamique des bains. Or, une série d'études récentes dans la littérature permet d'ores et déjà de mieux d'appréhender les phénomènes physiques qui gouvernent le LBM.

Ce premier chapitre présentera donc dans un premiers temps la fabrication additive céramique et notamment les spécificités du LBM. Les enjeux du projet CEFALE seront détaillés dans un second temps ainsi que les points limitants du LBM pour l'application aux céramiques oxydes, notamment leur transparence au rayonnement laser et leur faible résistance aux chocs thermiques. La compréhension de ces problématiques mène à une discussion sur les mécanismes d'absorption au sein de ce type de matériau. Enfin dans une troisième partie, les différents régimes d'interaction laser-matière seront abordés ainsi que la dynamique de la formation et l'hydrodynamique du bain de fusion.

Sommaire du Chapitre I

I. FUSION LASER CERAMIQUE : PROBLEMATIQUES MATERIAU ET PROCEDE 23

I.1. LE LBM AU SEIN DE LA FABRICATION ADDITIVE CERAMIQUE 26

I.1.1. Classification 26

I.1.2. Le LBM pas à pas 31

I.2. CERAMIQUES OXYDES PAR LBM 36

I.2.1. Projet CEFALE : enjeux et applications 36

I.2.1.1. Collaboration 36

I.2.1.2. Contexte, positionnement et objectifs 36

I.2.2. Transparence au rayonnement laser : mécanismes d'absorption dans les matériaux diélectriques 39

I.2.3. Résistance aux chocs thermiques et préchauffage 44

I.3. FORMATION ET REGIMES D'INTERACTION DES BAINS DE FUSION 46

I.3.1. Régimes d'interaction laser-matière 46

I.3.2. Cas de l'alumine 49

I.3.3. Etapes de formation d'un bain : interaction laser-matière et phénomènes associés 51

I.4. CONCLUSION DU CHAPITRE I 57

Le développement de la fabrication additive est possible grâce à l'évolution de chaque aspect de la chaîne de fabrication *(Figure I-1)*. La préparation des matières premières, comme par exemple les poudres reste une étape primordiale pour la réussite de la fabrication. Aussi, l'évolution de la taille des enceintes de fabrication, de la puissance des lasers et le développement des méthodes de suivi en temps réel pour le contrôle des défauts participent à répondre aux demandes des industriels (Fosse 2021), mais d'autres aspects importants sont souvent négligés. En effet, l'adaptation de la chaîne numérique (de la maquette numérique au fichier de fabrication) et son inter-connectivité multiplient les possibilités de constructions. Les techniques de digitalisation (scan 3D) se développent de manière intéressante. Les scans optiques de pièces permettent rapidement d'une part, de contrôler les défauts de surface des pièces et d'autre part, de créer directement un fichier de fabrication à partir d'objets réels sans contact, quasiment sans limite de taille. Cette dernière possibilité peut être appliquée par exemple pour le remplacement de pièces uniques ou pour des reproductions à échelle réduite. D'autres scans, par tomographie comme par laser sont plus complexe à mettre en œuvre et sont utilisés à plus petite échelle, mais permettent de contrôler des défauts internes.

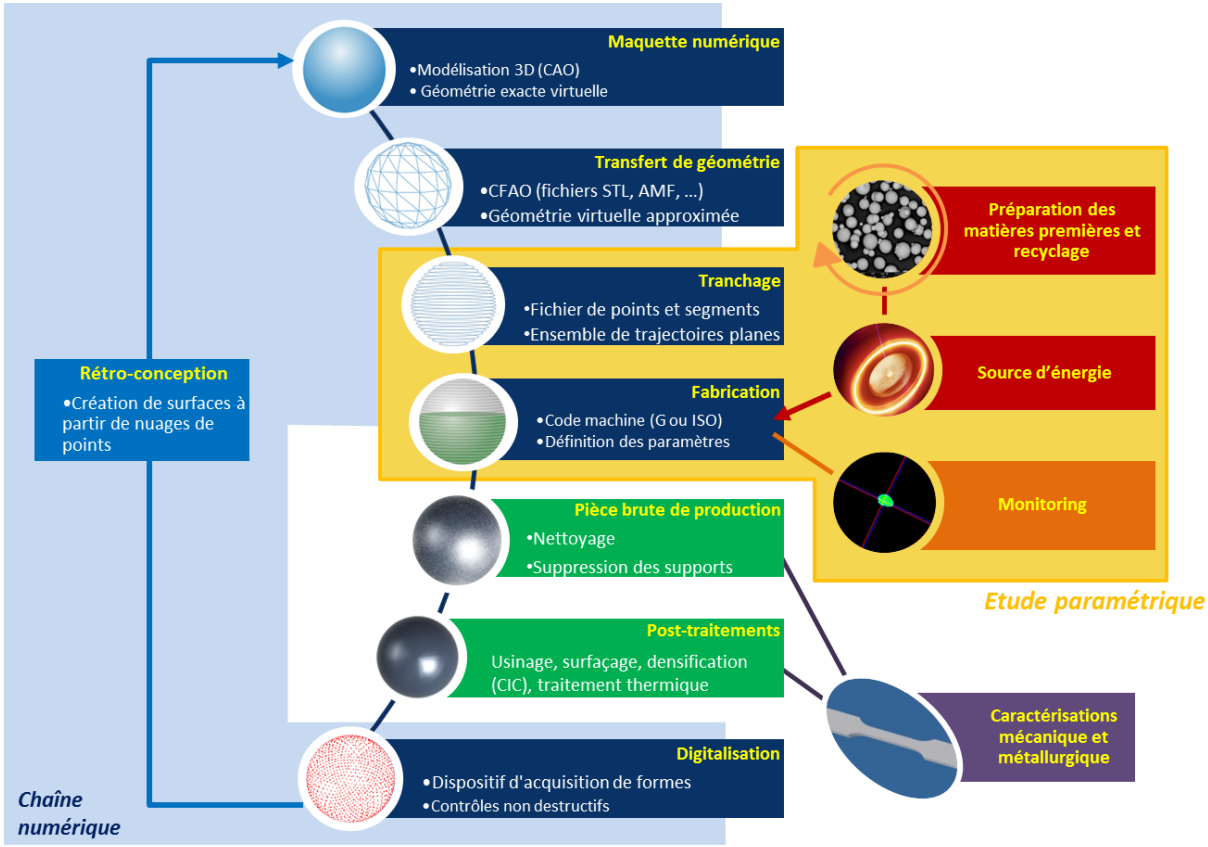


Figure I-1 : Chaîne rétroactive de la fabrication additive

Jusque-là, la majorité des techniques de fabrication additive ont été développées spécifiquement pour la fabrication de pièces polymères ou métalliques. L'application de ces procédés aux céramiques ne se fait en général que par adaptation d'une technique déjà existante pour des métaux ou polymères. Une des premières technologies adaptées aux céramiques fut la stéréolithographie (SLA), au milieu des années 90. Ce fut le cas en France, au *Centre de Transfert de Technologies Céramiques* (CTTC) avec la création par la suite de la société *3D Ceram*. Il s'agit de l'un des procédés les plus utilisés pour la mise en forme de céramiques à partir de poudres.

Aujourd'hui très peu de systèmes sont disponibles commercialement pour la production de céramiques fonctionnelles de bonne qualité. Des nombreuses recherches sont réalisées depuis une dizaine d'années de manière à développer ces nouvelles méthodes céramiques (Travitzky et al., 2014). Les céramiques

mises en forme par fabrication additive n'apparaissent qu'en tant que niches et les informations sur l'activité industrielle sont très limitées (Moritz 2018). Bien que les parts de marché restent bien inférieures à celles des polymères ou des métaux, il s'agit d'un marché multisectoriel en pleine croissance *(Figure I-2)*. De plus, le marché est bien moins structuré que pour la production de pièces traditionnelles et repose sur une multitude d'interconnexions entre les différents acteurs (recherche, fournisseurs de matière première et de machines, industrie conventionnelle, utilisateurs,…).

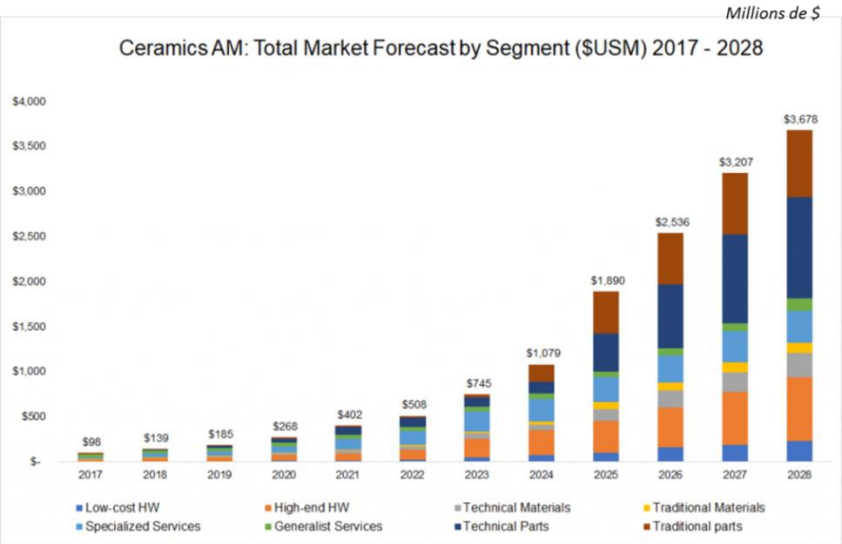


Figure I-2 : Evolution du marché de la fabrication additive céramique d'après (SmarTech Analysis 2018)

I.1. Le LBM au sein de la fabrication additive céramique

Les familles de céramiques mises en forme varient d'un procédé de fabrication additive à l'autre suivant les caractéristiques des différentes techniques. De manière générale, il est possible de fabriquer par procédés indirects, couche par couche des silicates pour les porcelaines techniques, des oxydes et des non oxydes comme des carbures et nitrures. Cependant, les densités relatives atteintes restent faibles (94-97%) et les natures de matériaux sont peu abondantes (CTTC 2016).

I.1.1. Classification

Il n'est pas très pertinent de reprendre la classification des procédés céramiques traditionnels (voies sèche, liquide ou pâteuse) car un procédé additif peut être employé avec plusieurs de ces voies *(Figure I-4)*.

Par exemple, la fusion laser sélective peut s'employer sur poudres (voie sèche) ou sur suspensions (voie liquide) (Chartier 2014; Deckers 2014; Travitzky et al. 2014; Ferraris et al. 2016). Les différentes technologies peuvent alors se différentier par :

- **le type d'énergie de consolidation** :
  - Laser (IR, CO_2, UV)
  - Faisceau d'électrons
  - Assemblage de matière fondue ou non

- **le nombre d'étapes de fabrication** : la fabrication est **directe** si la pièce est produite en une étape qui donne au produit sa géométrie et ses propriétés finales *(Figure I-3)*. La fabrication est **indirecte** si elle est produite en plusieurs étapes avec en général une première étape qui fournit la géométrie de base puis les étapes suivantes qui consolident la pièce afin d'obtenir les propriétés désirées. La plupart des procédés additifs céramiques sont indirects, avec dans la

majorité des cas, l'utilisation d'un liant polymère qui est éliminé après la mise en forme des pièces.

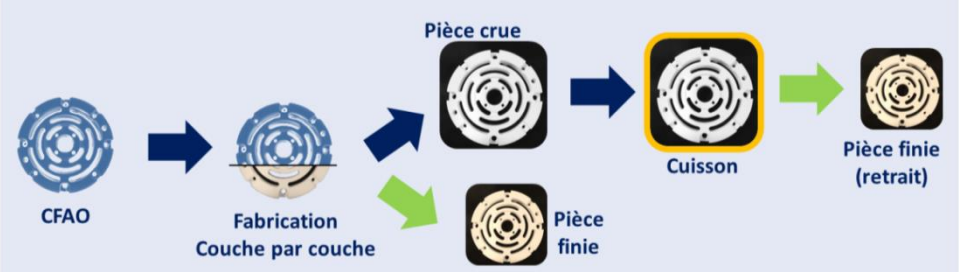


Figure I-3 : Fabrication additive directe et indirecte

- **la matière première** : elle peut être présentée sous forme de poudres (taux de phase secondaire entre 1 et 8%vol.), de suspensions (taux de phase secondaire supérieur à 30%vol), de pâtes (taux de phase secondaire entre 15 et 50%vol.) de filaments ou de feuillets.

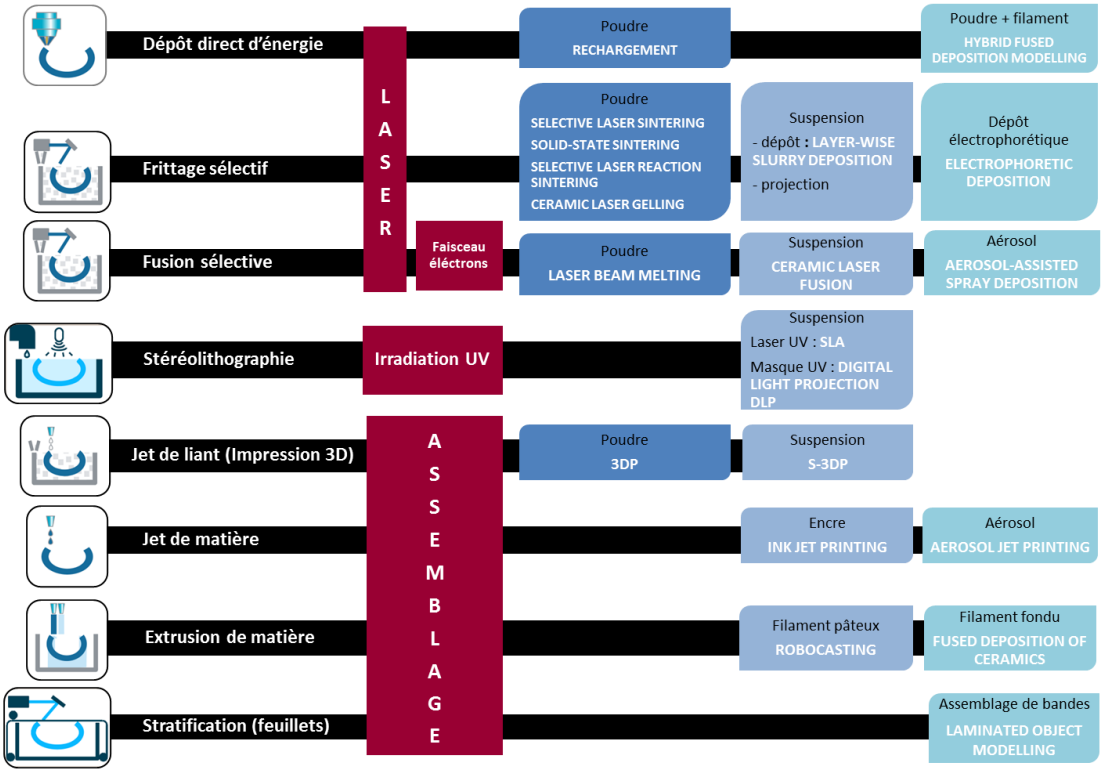


Figure I-4 : Classification simplifiée des procédés de fabrication additive de céramiques

Les procédés de fabrication additive appliqués aux céramiques sont très diversifiés par l'emploi de techniques indirectes reposant sur un intermédiaire polymère. Dans le cas des métaux, ces procédés indirects sont moins pertinents, les matériaux métalliques étant ductiles, très sensibles à l'oxydation et diffèrent des matériaux céramiques par leurs propriétés diffusionnelles.
Aujourd'hui les techniques principalement utilisées sont la stéréolitographie céramique (*ceramic stereolithography* CSL), le dépôt de fil fondu (*fused deposition modelling FDM*) et la projection de liant (*impression 3D, 3DP*).

Le **CSL** repose sur la photo-polymérisation d'une résine photosensible chargée de particules céramiques, à l'aide d'un laser UV *(Figure I-5)*. La résine chargée est déposée couche par couche dans un bac et est

consolidée au fur et à mesure selon le modèle numérique prédéfini. Les points clés de cette technologie sont selon (Chaput et Chartier 2007) :

- **la préparation de la pâte** : choix de la composition organique, maîtrise du taux de charge (fraction de particules) et de la rhéologie.
- **la définition des paramètres du procédé** : épaisseur de couche (25 à 100 µm), paramètres du racleur et du laser.
- **le nettoyage** : nature du solvant et suppression des supports.
- **les traitements thermiques** : définition du cycle de déliantage et de frittage.

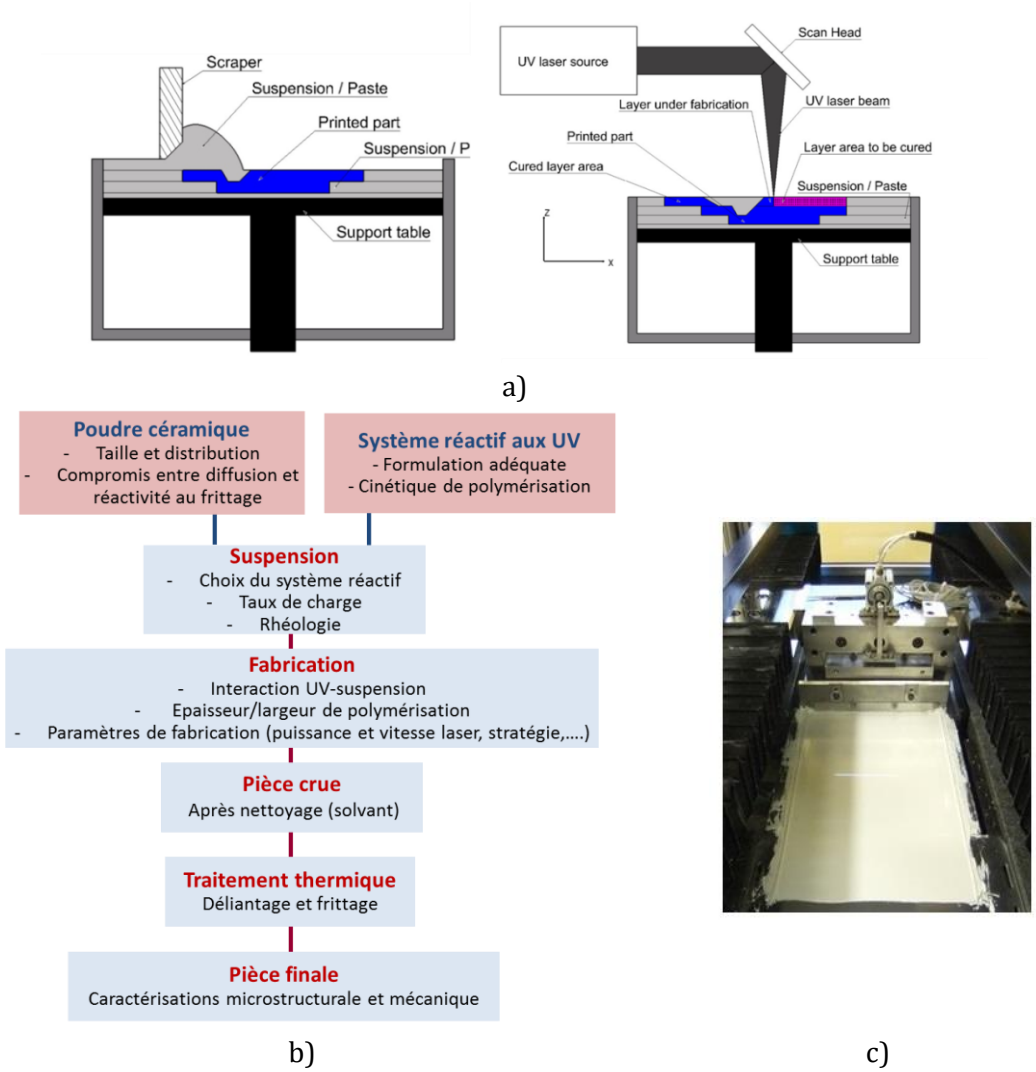


Figure I-5 : Étapes de la fabrication par stéréolithographie céramique (d'après (Euroceram, s. d.; Chaput et Chartier 2007; CTTC 2016)

Dans ces différents procédés, les techniques de production de la pièce finale sont proches des méthodes classiques d'élaboration des céramiques par frittage naturel (sans pression appliquée), les pièces étant obtenues en plusieurs étapes. La première étape consiste à empiler puis à polymériser couche par couche la pâte, constituée d'un mélange de poudre céramique et d'un liant. A ce stade, une pièce crue est obtenue. La deuxième étape est alors la pyrolyse du liant polymère restant et la consolidation de la pièce par frittage naturel. La pièce finale est obtenue avec un certain retrait par rapport à la pièce crue. Le point de fusion des céramiques n'est jamais atteint dans ce cas-là. Il n'y a donc pas de formation de phase liquide et par conséquent de continuité de croissance microstructurale entre les couches successives. Tout comme les procédés classiques de mise en forme des céramiques, la fabrication additive CSL s'oriente vers une consolidation multi-étapes avec la fabrication intermédiaire d'une pièce crue.

D'autres techniques plus directes comme le dépôt énergétique direct se développent. C'est le cas du procédé **INPACT** (*Inorganic Nanostructured Parts by Aerosol Cold Technology*) pour projection à froid de poudres qui est l'une des rares technologies directes à avoir été développée pour les céramiques *(Figure I-6)*. Elle consiste à déposer de la matière sèche directement sur un support. Premièrement, un aérosol sec de particules céramiques est généré. Puis dans un second temps une accélération est créée au travers d'une buse supersonique de Laval en forme de sablier, de manière à impacter le substrat et densifier le dépôt par fragmentation des particules céramiques. Il s'agit là d'une technique de revêtements céramiques plutôt qu'un procédé de fabrication de pièces céramiques mais est développé de plus en plus pour faire des pièces très fines.

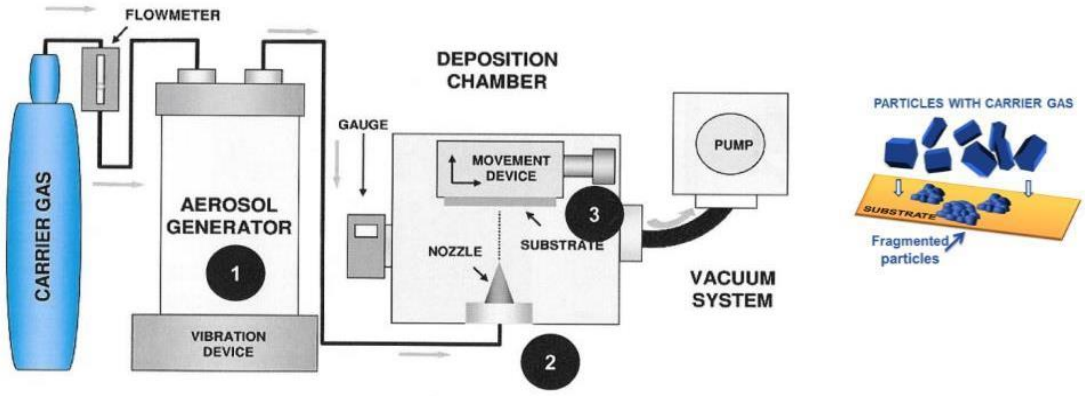


Figure I-6 : Principe de fonctionnement de la technique INPACT (CTTC 2016)

Le choix du procédé adapté au marché et à l'application souhaitée repose sur les avantages et limitations des différentes techniques, en termes de dimension, coût, précision et qualité de surface *(Tableau I-1, Figure I-7 et Figure I-8)*. Le choix du procédé adapté prend également en compte les viscosités des suspensions et les concentrations atteignables en particules céramiques *(Figure I-9)*. Une plus grande concentration de particules permettra en effet, de limiter le retrait volumique et une meilleure densité finale des pièces. Par exemple, le CSL est le procédé le plus adapté pour la fabrication de pièces denses et fines mais à forte valeur ajoutée car leur fabrication sera coûteuse. Le procédé FDM sera quant à lui dédié à un besoin rapide, peu coûteux mais aussi peu précis. Quelques exemples de pièces sont présentés en *Figure I-10*.

Tableau I-1 : Avantages et inconvénients de quelques procédés de fabrication additive céramique

Procédé	Avantages	Limitations
CSL - *Ceramic stereolithography* Indirect	Haute densité relative Faible rugosité Haute résistance mécanique Précision jusqu'à 30µm	Faible vitesse de construction Coût élevé des matières Post-process Mono-matériau
FDM - *Fused deposition modelling* Indirect	Matériaux peu couteux Procédé simple et peu couteux Multi-matériaux	Précision et vitesse conditionnées par le diamètre de la buse
INPACT - *Inorganic Nanostructured Parts by Aerosol Cold Technology* Direct	Densification à température ambiante : pas de Post-process (hors revêtement) Multi-matériaux	Faible épaisseur Nombre restreint de matériaux Faible vitesse de construction
SLS - *Selective Laser Sintering* Direct	Matériaux peu couteux Pas de nettoyage Grande vitesse de construction	Faible densité relative Rugosité élevée Procédé couteux (laser) Mono-matériau
3DP - *3 dimensionnal printing* Indirect	Matériaux peu couteux (et recyclage possible) Post-process simple Grande vitesse de construction Très grands volumes de pièces	Faible densité relative Rugosité élevée

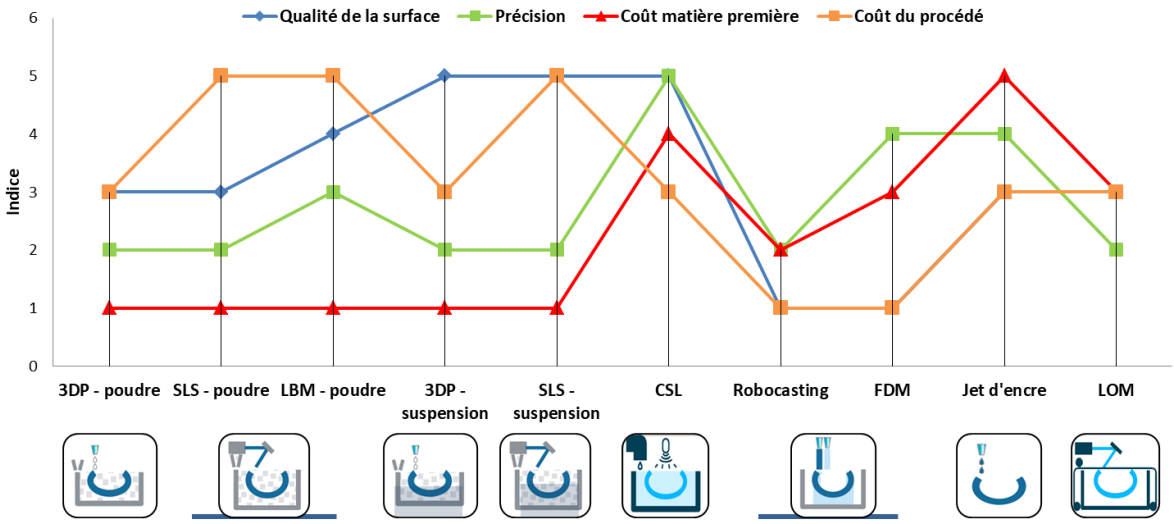


Figure I-7 : Comparatif des principales technologies de fabrication additive céramiques (0 faible et 5 élevé)

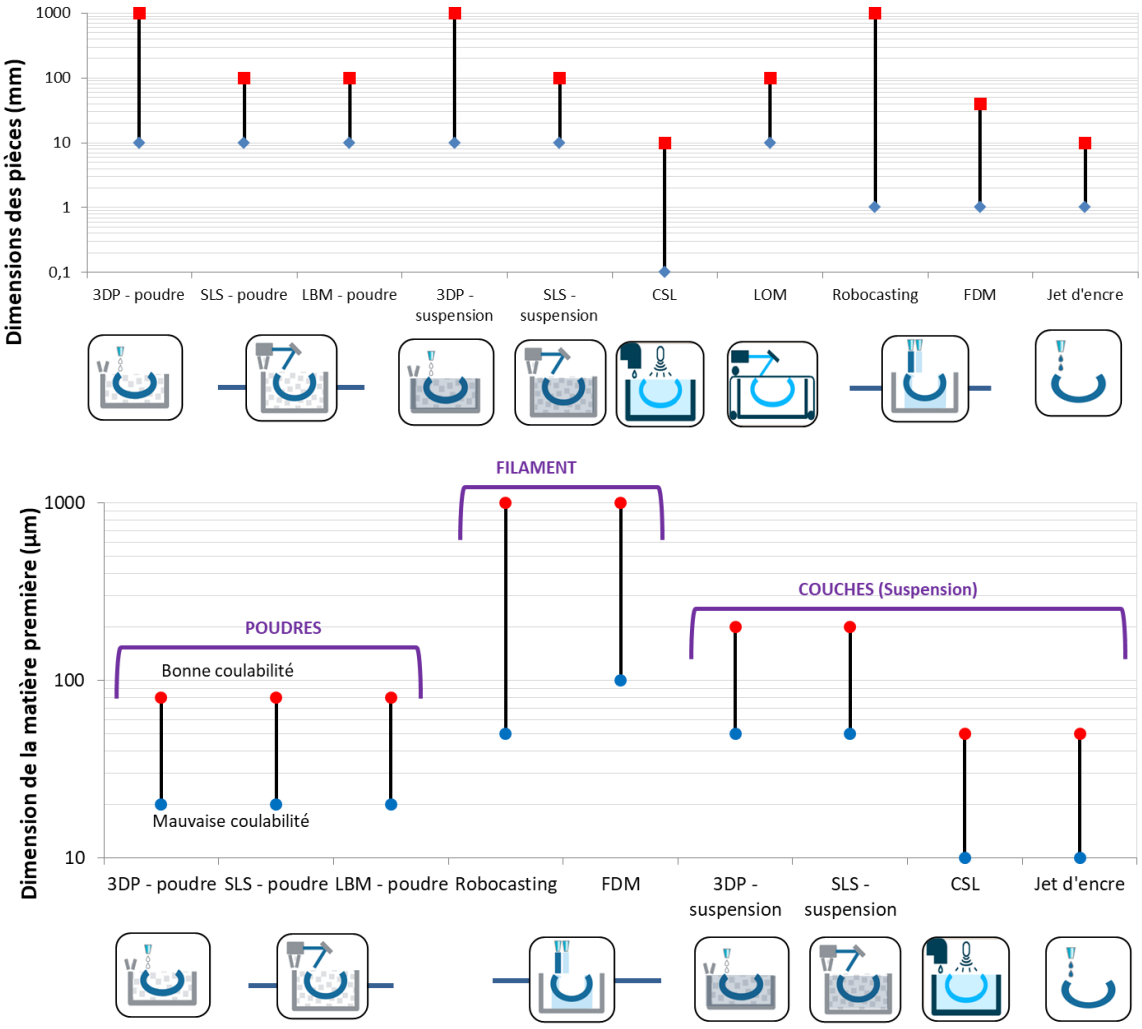


Figure I-8 : Comparatif des dimensions des pièces et de la résolution (taille de l'unité de construction de base) des principales technologies de fabrication additive céramiques

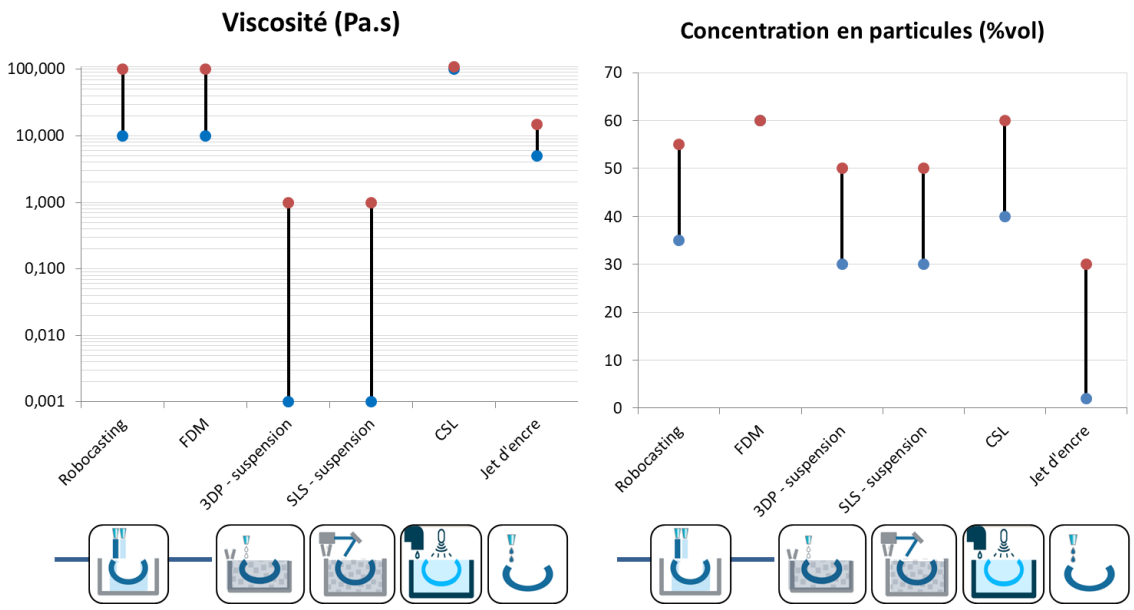


Figure I-9 : Comparatif des viscosités et de la concentration en particules dans le cas des technologies de fabrication additive céramiques en voie liquide ou pâteuse

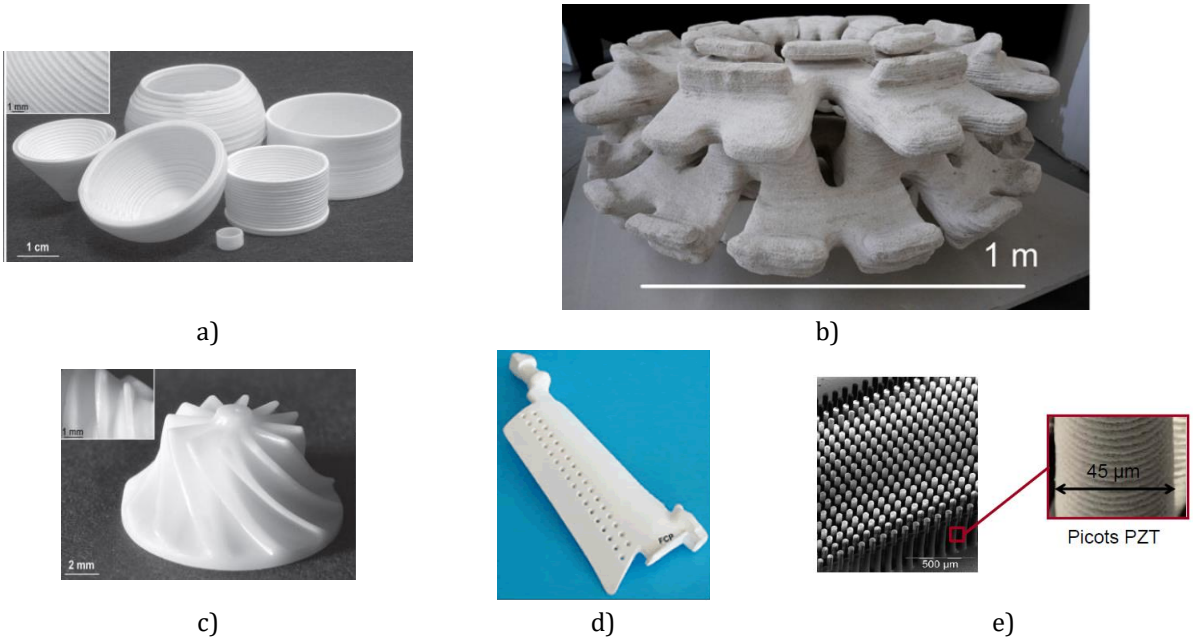


Figure I-10 : De gauche à droite pièces réalisées a) Robocasting de creusets en alumine b) 3DP d'un ouvrage d'art c) DLP d'un rotor en zircone d) SLA d'un noyau d'aube de turbine en zircon/silice e) Jet d'encre de composants piézo-électriques pour sonde à ultrasons d'après (Zocca et al. 2013; 2015; CTTC 2016)

I.1.2. Le LBM pas à pas

La fusion laser sélective est un procédé direct qui pourrait convenir aux matériaux céramiques à haut point de fusion. Ce procédé de construction incrémentale permet la fusion couche par couche de la matière première, sous forme de poudre. De plus, il permet la réalisation de pièces de taille moyenne avec un bon état de surface sans nécessité de ré-usinage et avec une bonne précision *(Figure I-8 et Figure I-7).* Le principe est présenté en *Figure I-11*. La poudre contenue dans un piston ou bac d'alimentation est emmenée par le rouleau (ou racleur) afin d'être étalée sur un substrat ou plateau de fabrication qui s'est abaissé de Δz_{piston}. Une étape de compactage de la poudre sur le plateau de fabrication intervient ensuite.

Une épaisseur de poudre notée Δz_{poudre} est déposée, que le laser vient consolider par fusion selon un schéma (*pattern*) défini en amont par CFAO. Une fois la couche consolidée, une nouvelle couche de poudre est étalée et le processus se répète jusqu'à la fabrication totale de la pièce.

Ici, le liant polymère n'intervient plus, le matériau céramique passe directement par un état liquide, ce qui permet l'amélioration de la densité relative des pièces mais également l'obtention d'une homogénéité et continuité microstructurale. Il s'agit donc d'une technique de fabrication directe, l'abandon du liant polymère permettant de diminuer les temps de fabrication par rapport aux procédés indirects.

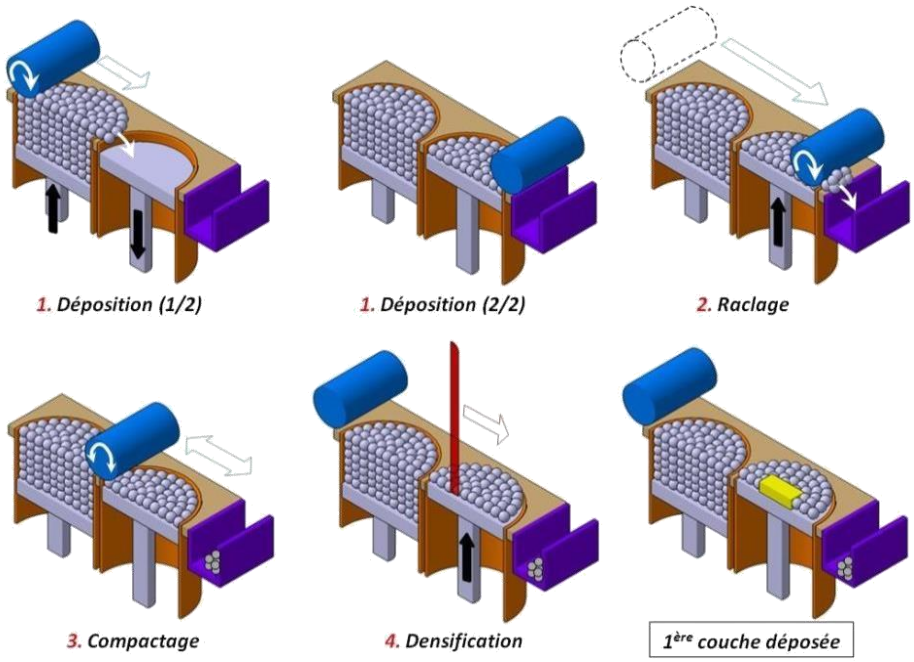


Figure I-11 : Etapes de fabrication par fusion laser sélective de lits de poudre, d'après (Orecchia 2008)

Il existe une quarantaine de paramètres du procédé pouvant être contrôlés. Dans cette étude, nous fixerons donc la plupart d'entre eux. Dans le cas des céramiques, des paramètres additionnels par rapport aux matériaux métalliques sont à prendre en compte comme l'épaisseur du substrat ou la nature du gaz de protection qui sera la plupart du temps l'air ambiant. Le nombre de paramètres étudiés est fonction de la dimension des constructions, soit :

- **Paramètres 0D (régime statique, pointé) :**
  - **Puissance laser** : P (W) $[P \leq 200W]$
  - **Diamètre d'interaction** du faisceau laser dans son plan focal (surface du lit de poudre) : $\Phi_L = 70\ \mu m$
  - **Epaisseur de poudre :** Δz_{poudre} (µm ou mm)
  - **Epaisseur de couche :** Δz_{piston} (µm) correspondant à la descente du piston de fabrication. Pour la première couche $\Delta z_{piston} = \Delta z_{poudre}$, et en régime de fabrication stabilisé cela correspond à l'épaisseur de tranchage de la pièce, soit encore à la hauteur de cordon consolidée H_{app} (Vinson 2015)
  - **Epaisseur du substrat :** δ_{sub} (mm)
  - **Atmosphère de travail** : air ou argon

- **Paramètres 1D (régime dynamique, monocordon):**
  - **Vitesse de balayage laser** à la surface du lit de poudre : V (mm.s^{-1}) $[V \leq 1000\ mm.s^{-1}]$
  - **Energie linéique :** $E_l = \frac{P}{V}$ (J.mm^{-1})

- **Energie surfacique** (ou fluence) : $E_s = \frac{4\,P}{\pi.\Phi_L.V}$ (J.mm^{-2})
- **Energie volumique** : $E_{vol} = \frac{P}{\Delta z_{poudre}\,.\Phi_L.V}$ (J.mm^{-3})
- **Temps d'interaction :** $t_{int} = \frac{\Phi_L}{V}$ (s)

- **Paramètres 2D (juxtaposition de deux cordons, draps) :**
  - **Ecart vecteur** E_v : distance entre deux traits laser lors de la juxtaposition de deux cordons adjacents de largeur apparente e_{app} *(Figure I-12)* :
    $E_v = e_{app}(1 - \tau_r)$ (µm)
  - **Taux de recouvrement :** $\tau_r = 1 - \frac{E_v}{e_{app}}$, fraction de cordon refondue
  - **Sens de balayage du faisceau laser** : {aller} – {aller/retour} – {en îlots}[1] - respectivement *(Figure I-13.a-b-d)*
  - **Angle de balayage du faisceau laser** *(Figure I-13.e)*

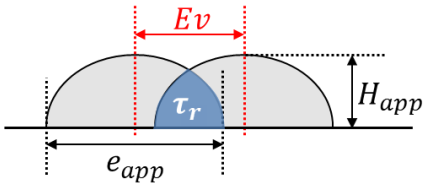


Figure I-12 : Juxtaposition de deux cordons et définition de l'écart vecteur et du taux de recouvrement

- **Paramètres 3D (constructions 3D, empilements de draps) :**
  - **Angle d'orientation des couches** les unes par rapport aux autres - *Figure I-13.f*

- **Paramètres de contours : Puissance P_c et Vitesse V_c -** *Figure I-13c*.

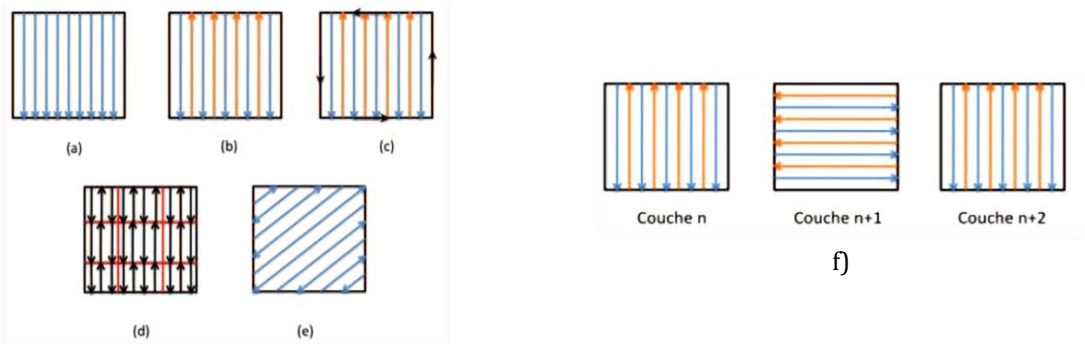


Figure I-13 : Illustration a-e) des sens et de l'angle de balayage laser et f) de l'angle d'orientation des couches les unes par rapport aux autres (Vilaro 2011)

La définition des paramètres permet d'établir différentes stratégies d'empilement 3D. Quelques exemples utilisés dans cette étude sont présentés en *Figure I-14*.

Le **lit de poudre** est décrit suivant :

- La **densité relative, compacité ou fraction volumique de particules** fv_p ou **taux de porosité** $Pt = 1 - fv_p$
- La morphologie des particules de poudre (anguleuses, sphériques, agrégées ou agglomérées)
- La **distribution en taille de particules** *(voir Chapitre II)* et notamment la taille moyenne de particules d_{50}
- Propriétés de l'absorbant le cas échéant : nature, teneur et distribution

[1] La stratégie de construction en îlots requiert une série de nouveaux paramètres à définir.

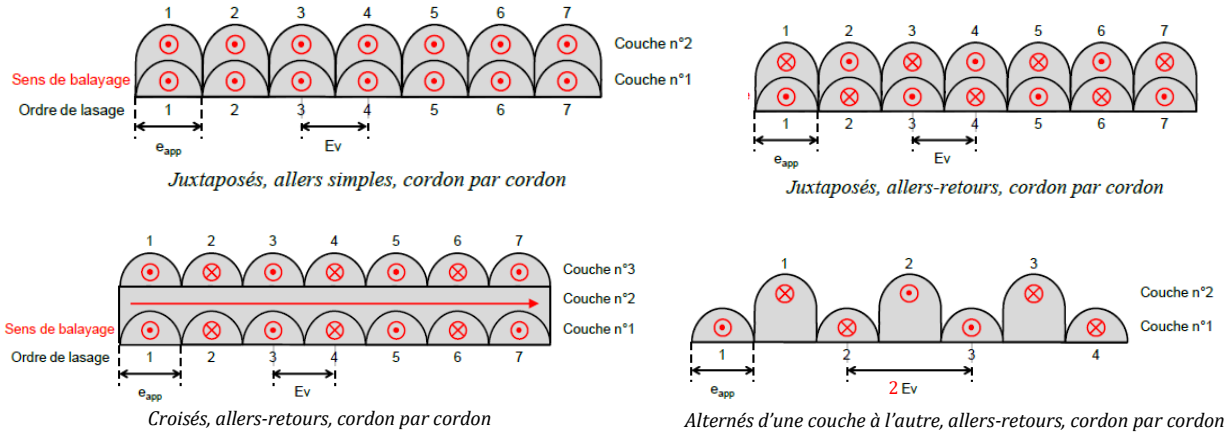


Figure I-14 : Différentes stratégies d'empilement de couches pour la construction 3D pour $\tau_r = 0$ d'après (Vinson 2015)

La source d'énergie est gaussienne et l'intensité incidente I_0 associée vaut :

$$I_0 = \frac{4P}{\pi \Phi_L^2}$$

Les **dimensions du bain de fusion** *(Figure I-15)* sont identifiées par :

- Le cordon apparent de section S_{app}, hauteur H_{app} et largeur e_{app}
- La zone refondue de section S_{ZR}, hauteur H_{ZR} et largeur e_{ZR}
- L'ensemble, le bain de section $S_{bain} = S_{app} + S_{ZR}$ et la hauteur $H_{bain} = H_{app} + H_{ZR}$

On note que e_{app} *et* e_{ZR} peuvent être égaux ou non en fonction des paramètres du procédé.

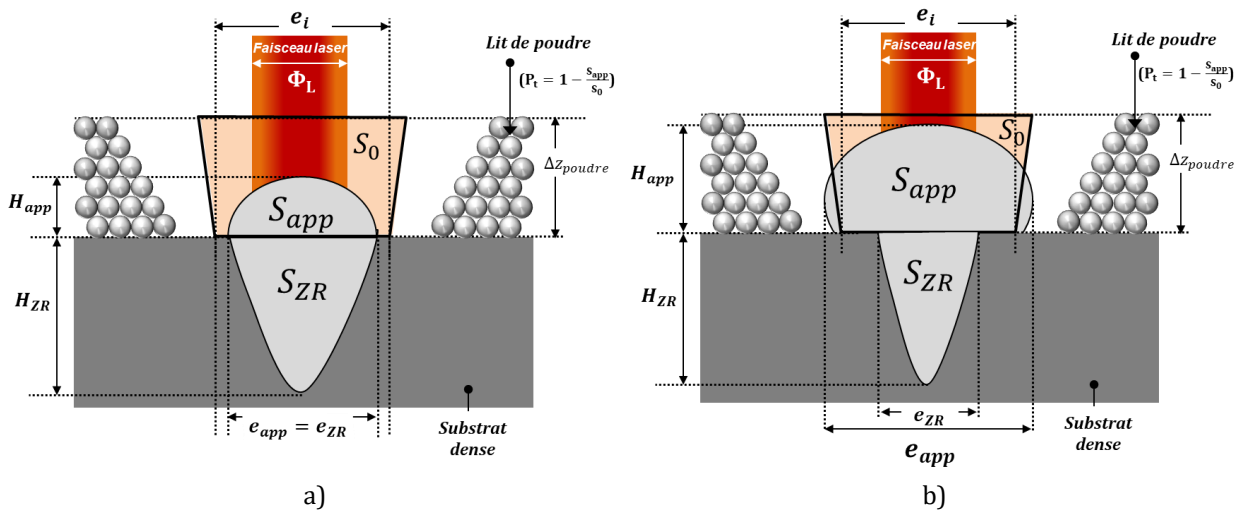


Figure I-15 : Dimensions caractéristiques d'un bain de fusion issu de l'interaction laser-matière d'un lit de poudre déposé sur substrat dense a) cas $e_{app} = e_{ZR}$ b) cas $e_{app} \neq e_{ZR}$

Il est défini une **zone de consolidation** par **conservation de la matière** issue du modèle de consolidation anisotrope (Vinson 2015) avec :

- La section de consolidation au sein du lit de poudre avec conservation de la matière S_0
- La largeur d'interaction largeur de la zone d'interaction laser-LDP à l'interface LDP-substrat e_i
- Le retrait axial RA défini positivement : $RA = 1 - \frac{H_{app}}{\Delta z_{poudre}}$
- Le retrait radial RR défini positivement : $RR = 1 - \frac{e_{app}}{e_i}$

La conservation de la matière considère que le retrait volumique provient uniquement de la porosité du lit de poudre. Dans ce cas, $Pt = 1 - \frac{S_{app}}{S_0}$. Nous reviendrons sur ces paramètres au *Chapitre VI* et nous y

traiterons également le cas **sans conservation de la matière** avec l'introduction du taux de particules solides éjectées au sein de la section de consolidation S_0. Nous définirons également le taux de particules solides éjectées en dehors de cette zone de consolidation, c'est-à-dire dans la zone dite dénudée.

Pour la compréhension des phénomènes se produisant au sein du lit de poudre, l'étude nécessite des mesures sur des bains réalisés au sein d'un milieu unique, *i.e.* dans un compact non dense de poudre ou dans un substrat dense. Dans ce cas, les dimensions du bain issues de l'interaction laser-matière sont définies selon le régime d'interaction : on différencie le cas de **gonflement** du bain (hautes énergies linéiques) du cas de **retrait** du bain (faibles énergies linéiques) – *(Figure I-16)*. Les dimensions issues du gonflement (lié à l'évaporation et à la remontée de matière liquide) sont définies par H_{Gonf}, L_{Gonf} et S_{Gonf}. Celles de la zone fondue au sein d'un lit de poudre ou d'un substrat dense s'écrivent H_{ZF}, L_{ZF} et S_{ZF} et la section issue du retrait du bain, $S_{retrait}$.

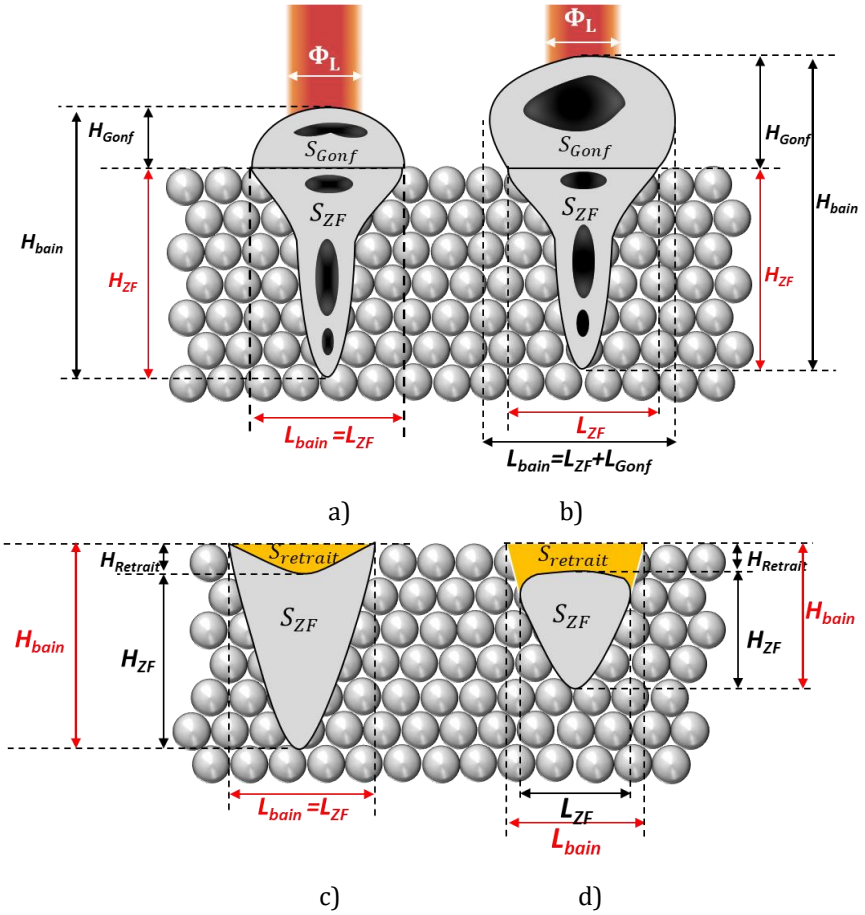


Figure I-16 : Dimensions caractéristiques d'un bain de fusion issu de l'interaction laser-matière dans un milieu unique (compact non dense de poudre ou substrat dense) pour les différents cas rencontrés a-b) cas du gonflement et c-d) cas du retrait. En rouge sont indiquées les grandeurs représentatives de l'interaction laser-matière et qui seront retenues dans la suite de l'étude en tant que profondeur du bain H et largeur du bain L.

I.2. Céramiques oxydes par LBM

I.2.1. Projet CEFALE : enjeux et applications

I.2.1.1. Collaboration

Le projet CARNOT M.I.N.E.S. nommé *CÉFALÉ* (pour **CÉ**ramiques hautes performances par **F**usion l**A**ser sé**LE**ctive) propose une approche pluridisciplinaire combinant l'expertise reconnue de trois centres de recherche des *Ecoles des Mines* dont deux (*CDM* et *CEMEF*) du même département Matériaux de *Mines ParisTech*. Ce projet vise à la fabrication de pièces céramiques réfractaires tenaces à microstructure et qualité métallurgique contrôlées par la maîtrise scientifique et technique de tous les maillons de la chaîne.

Le *Centre des Sciences des Matériaux et des Structures* (SMS-ENSM-St Etienne) synthétise par « spray drying » la matière première, une poudre d'alumine chargée en carbone. La thèse de Q.Chen lancée au *Centre de Mise en Forme des matériaux* (CEMEF-MINES-ParisTech) a permis la modélisation de l'interaction laser-matière, afin de mieux comprendre, quantifier et optimiser le mode de chauffage et de fusion d'un lit de poudre déposé sur un substrat dense dans une large plage de paramètres opératoires (longueur d'onde, forme du faisceau, puissance, vitesse de balayage, épaisseur de couche,…). Pour ce faire, la forme et la dimension de plusieurs bains fondus ont été prédites par modélisation numérique et comparées aux expériences menées dans cette thèse. Cela a permis à Q.Chen de valider certaines hypothèses de calcul et d'accéder à des grandeurs non accessibles expérimentalement, à savoir : gradients thermiques et vitesses de solidification sur l'isotherme de fusion, puis aux contraintes résiduelles après refroidissement du bain et du monocordon. Prenant place au *Centre des Matériaux* (CDM-MINES-ParisTech), la thèse dont les travaux sont exposés dans ce mémoire a pour but de mieux cerner l'interaction laser-matière des céramiques transparentes au rayonnement laser et d'étudier leur mise en forme par fusion en y ajoutant une certaine quantité d'absorbant. La mise en forme de ce type de matériaux s'est faite au moyen d'une machine SLM Phenix PM100T, et l'interaction laser-matière a nécessité la mise en place *in situ* d'un banc optique permettant la mesure des propriétés optiques *in operando* des céramiques étudiées en cours de fusion.

Cette étude *CÉFALÉ* s'inscrit à plus large échelle dans la collaboration *ACLAME* (Action Concertée des LAboratoires Matériaux des Ecoles des mines, sur les procédés de fabrication additive) qui a pour objectif principal de coordonner et de fédérer les projets Carnot M.I.N.E.S. sur la fabrication additive, afin de constituer un pôle de compétences, en termes de matériaux et de technologies, et de rendre la communauté visible et reconnue. En dehors du projet *CÉFALÉ*, on relève les projets suivants :

- *CERAMMET* pour l'élaboration par fabrication additive de cermets (composites céramique / métal) à base de poudres d'alumine et, de titane ou d'acier inoxydable 316L.
- *FATIMA* pour Impression 3D de polymères thermoplastiques multi-matériaux.
- *ELECTROPHORESE* pour le dépôt de particules métalliques en surfaces rugueuses par électrophorèse non-linéaire.

I.2.1.2. Contexte, positionnement et objectifs

La plupart des recherches menées dans le domaine de la fabrication additive ont trait à des pièces polymères ou métalliques. L'application de cette technologie aux pièces céramiques constitue un enjeu de taille, qui permettrait le design de nouvelles pièces aux formes complexes, en limitant l'usinage, ce dernier pouvant représenter jusqu'à 80% du coût de production d'une pièce en céramique. De plus, les procédés classiques de fabrication additive associés aux pièces céramiques sont essentiellement indirects et reposent sur l'utilisation d'un liant polymère et l'absence de fusion de la céramique. L'application d'un procédé comme le LBM permet la construction de pièces céramiques en une seule étape. Le passage à

l'état liquide vis-à-vis d'autres moyens de fabrication additive devrait présenter également une porosité limitée.

Le système retenu pour ce projet CARNOT est une céramique oxyde, l'Al_2O_3-ZrO_2 à composition eutectique. Ce matériau est léger, intrinsèquement résistant à l'oxydation et corrosion, inerte chimiquement et réfractaire. En parallèle, l'Al_2O_3 faisant office de matériau modèle est aussi envisagée pour comparaison. Les conditions thermiques incrémentales du LBM, avec le passage à l'état liquide du matériau et des vitesses du front de solidification élevées pourraient engendrer une solidification orientée et rapide menant à des microstructures biphasées finement interpénétrées, inhibant ainsi le mouvement des dislocations intra-lamelles (Berger 2011) et conférant une résistance au fluage élevée. De plus, la minimisation énergétique des hétéro-interfaces permet d'obtenir des interfaces cohérentes propres dont le glissement requiert des énergies d'activation élevées. L'association du LBM avec l'alumine-zircone de composition eutectique permettrait de produire des pièces aux géométries complexes difficiles à mettre en forme par un moyen conventionnel et sans la nécessité de post-traitements, diminuant ainsi fortement les coûts d'usinage.
Les secteurs industriels visés sont le spatial et l'aéronautique, pour répondre à la problématique de l'augmentation des températures de fonctionnement des turbines à gaz et leur allègement avec par exemple la fabrication et le design de nouvelles aubes de turbine dans un matériau moins dense et plus réfractaire. Les céramiques oxydes de composition eutectique suscitent depuis une quinzaine d'années un regain d'intérêt comme une éventuelle solution de remplacement des superalliages à revêtement céramique *(Figure I-17)* : les propriétés réfractaires alliées à des densités moyennes font de ces céramiques eutectiques des concurrentes sérieuses des alliages métalliques à durcissement par précipitation pour des utilisations à très hautes températures (>1400°C), à condition qu'elles démontrent en fonctionnement une bonne ténacité et une bonne résistance à la fatigue thermique (Parlier et al. 2011). (Waku 2011) a estimé le gain qu'apporterait l'utilisation de pièces céramiques sur le rendement d'une turbine à gaz *(Figure I-18)*. Leurs calculs sont fondés sur un gain de masse allié à une augmentation de la température d'entrée du gaz dans les turbines (TIT) et du ratio pression d'entrée sur pression de sortie (OPR). Le gain en rendement estimé serait de l'ordre de 9% avec le remplacement des superalliages à base nickel par les céramiques oxydes. Ces résultats permettent d'envisager le développement d'une nouvelle génération de turbines qui pourrait travailler à 1700°C.

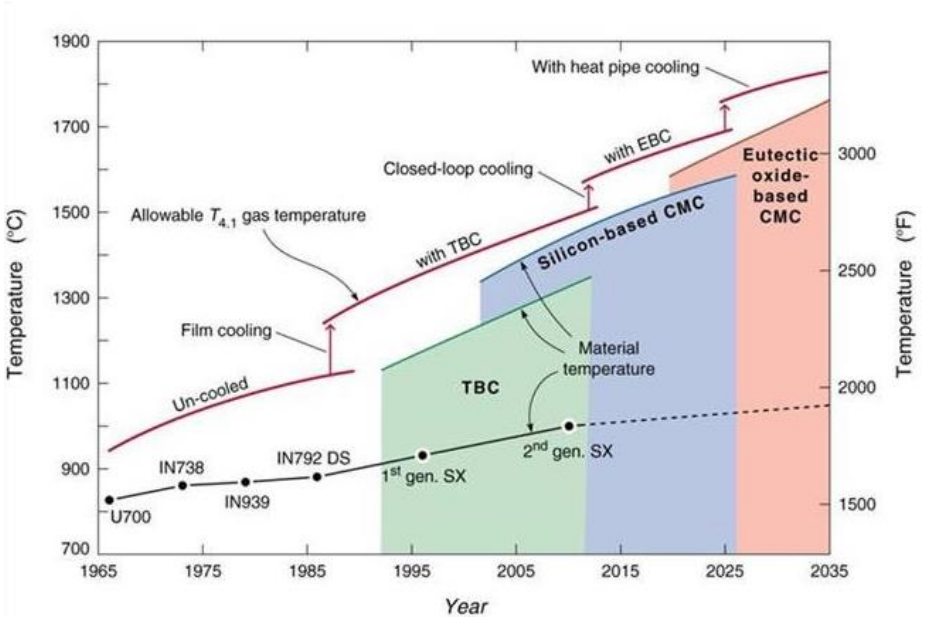


Figure I-17 : Evolution passée et future des matériaux pour turbines à gaz suivant la température de fonctionnement d'après (Wadley Research Group - UVA)

Cependant, les procédés conventionnels de solidification dirigée de type Bridgman, utilisés dans les travaux cités ci-dessus, sont lourds à mettre en œuvre et ne permettent pas de fabriquer des formes ajourées très complexes. Il y a plus d'une dizaine d'années, des premières pièces en céramiques oxydes eutectiques ont été usinées dans des lingots de solidification dirigée élaborée par voie conventionnelle *(Figure I-19)* : des aubes de turbine fixes, des panneaux de chambre de combustion, etc.

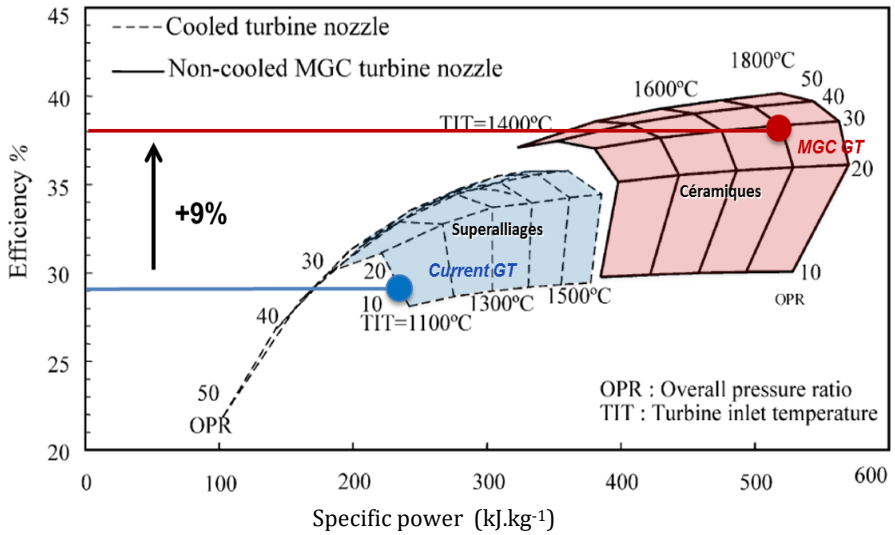


Figure I-18 : Rendement d'une turbine à gaz caractérisé par le ratio de pression entre l'entrée et la sortie du compresseur (OPR) et par la température d'entrée des gaz dans la turbine (TIT) d'après (Waku 2011) – MGC : melted grown ceramics ; GT : ground temperature

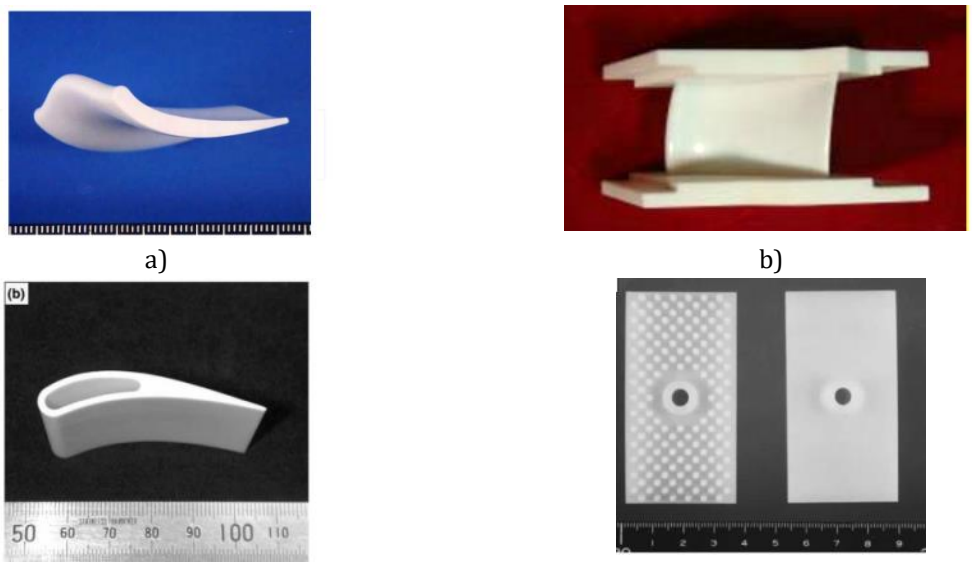


Figure I-19 : Différentes pièces céramiques issues de la solidification dirigée (d'après Ube-Japan) : a-b-c) aubes de turbine - partie courbée dense, assemblage et partie creuse d) panneaux

Le LBM permettra le design de nouvelles pièces en limitant drastiquement l'usinage nécessaire en rendant accessible la fabrication « in situ » de pièces complexes en composite céramique-céramique à fortes valeurs ajoutées. La réalisation de pièces telles que les aubes de turbine comme déjà mentionnées sera possible, mais également celle des pièces pour la fabrication des fibres en superalliages ou des noyaux de moules de fonderie qui ne demandent pas de très bonnes propriétés mécaniques. La fabrication de pièces céramiques par fusion représente donc un challenge majeur avec des gains asymptotiques dans le domaine aéronautique et d'autres industries (photoniques, électroniques, thermiques, mécaniques ...).

Les recherches dans le domaine du LBM de céramiques oxydes commencent à émerger mais n'atteignent pas encore les résultats escomptés. En effet, la mise en forme de céramiques par LBM (*i.e.* par voie liquide avec solidification rapide) est confrontée à différentes problématiques. Les principales sont la très faible absorption des céramiques oxydes au rayonnement du laser Yb:YAG usuellement utilisé et leur faible résistance aux chocs thermiques. Dans la littérature, les quelques travaux abordant ces problématiques (Bertrand et al. 2007; Shishkovsky et al. 2007; Hagedorn 2013) détournent la difficulté de la fusion de l'alumine par laser CO_2, soit par l'ajout d'une poudre d'aluminium jouant le rôle d'absorbant, soit par un préchauffage hors axe de la partie du bain en cours de solidification. Dans les deux cas, la formation d'intermétalliques de type AlZr par réduction de la zircone est avérée ou suspectée. Cependant, les études métallurgiques publiées sont très pauvres et les microstructures dendritiques obtenues ne semblent pas correspondre à celles attendues pour la composition eutectique Al_2O_3-ZrO_2. De plus, les approches thermiques comme mécaniques y sont faiblement développées.

Le projet CEFALE s'inscrit à la suite d'une première thèse réalisée sur l'hydroxyapatite également transparente au laser Yb:YAG (Shaker 2017). Il y avait été démontré que l'ajout d'un absorbant (carbone) à la poudre d'hydroxyapatite permettait de pallier la quasi-transparence du matériau. Dans la littérature, cet effet a été confirmé par (Juste et al. 2014) pour la fabrication d'alumine et par (Ferrage, Bertrand, et Lenormand 2018) pour la zircone. Dans notre étude, l'utilisation de l'absorbant SiC-β et de particules métalliques sont envisagées en plus du carbone. Quant à la fissuration induite par les fortes vitesses de refroidissement et les gradients thermiques élevés, elle pourra par la suite être réduite par un post-chauffage de la zone du bain en cours de consolidation.
Le cas de l'interaction du laser avec un lit de particules de poudre semi-transparente est complexe. L'absorption spectrale doit être étudiée, ainsi que les caractéristiques du lit de poudre. Les données de la littérature sont limitées et se résument souvent à une gamme restreinte de longueurs d'onde, à un nombre de matériaux limités et bien souvent à l'état massif. Aussi, des mesures optiques sont envisagées dans cette thèse de manière à connaître précisément les propriétés optiques des matériaux étudiés au cours du procédé ainsi que leur évolution avec la teneur en absorbant et les caractéristiques du milieu granulaire (compacité, épaisseur de poudre, taille de particules). En parallèle, sont réalisées des études paramétriques afin de définir le domaine de construction stable de chaque matériau étudié.

I.2.2. Transparence au rayonnement laser : mécanismes d'absorption dans les matériaux diélectriques

La possibilité de fabriquer des pièces par empilement de couches consolidées par laser dépend en partie de la capacité à convertir la densité de puissance du faisceau laser en chaleur. La couche de matériau granulaire déposée initialement doit absorber très localement le rayonnement et, idéalement, la zone d'interaction doit être limitée à la surface d'intersection entre le faisceau et le matériau granulaire (surface du lit de poudre). Aussi, doivent être prises en compte les caractéristiques du lit de poudre comme la composition, l'homogénéité, l'épaisseur, la distribution granulométrique, la coordinence et le taux de porosité conditionnant le nombre de dioptres réfléchissants et réfractants.

Au premier ordre, on considère que l'interaction d'un faisceau laser avec un matériau absorbant dense et parfaitement lisse est surfacique : l'énergie lumineuse est alors convertie, à la réflexion près, en chaleur surfacique. Le cas d'un matériau absorbant mais granulaire ou fortement rugueux est différent au sens qu'une partie du faisceau incident subit des réflexions multiples de la part des particules, à l'origine d'une modification de la forme et des dimensions du volume d'interaction laser-matière, ainsi que des valeurs des coefficients d'absorption et de réflexion (Gusarov et al., 2010). La distinction entre ces deux milieux sera abordée au *Chapitre III* mais on peut déjà dire que l'interaction laser-matière est surfacique dans le cas d'un matériau dense, et volumique dans le cas d'un matériau granulaire. Le cas de l'interaction laser avec un lit de poudre constitué d'un matériau semi-transparent est encore plus complexe. C'est le cas des

céramiques de couleur « blanche » et en particulier de l'alumine-zircone. Les signaux de transmittivité et de réflectivité montrent les différentes gammes d'absorption des monocristaux d'alumine et de zircone *(Figure I-20)* :

- **IR lointain** *(fortes longueurs d'onde λ et faibles nombres d'onde σ=1/ λ)* : zone de transmittivité Tr nulle, réflectivité R élevée et zone d'opacité du matériau. Le matériau est absorbant, le rayonnement interagit majoritairement en surface avant d'être atténué rapidement en profondeur par les vibrations du réseau cristallin.
- **IR moyen** : le matériau est semi-transparent, la transmittivité augmente avec l'accroissement du nombre d'onde au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la zone d'absorption liée aux vibrations de réseau (et donc inversement, elle diminue avec la longueur d'onde qui augmente). Cette valeur de la transmittivité dépend de l'épaisseur du monocristal.
- **proche IR, visible et proche UV** *(faibles longueurs d'onde λ et forts nombres d'onde σ=1/ λ)* : zone de transparence dans laquelle les seules pertes observées au niveau de la transmittivité sont liées aux multiples réflexions aux interfaces supérieure et inférieure du matériau avec l'environnement gazeux. La réflectivité ne dépend que de l'indice de réfraction n du monocristal.

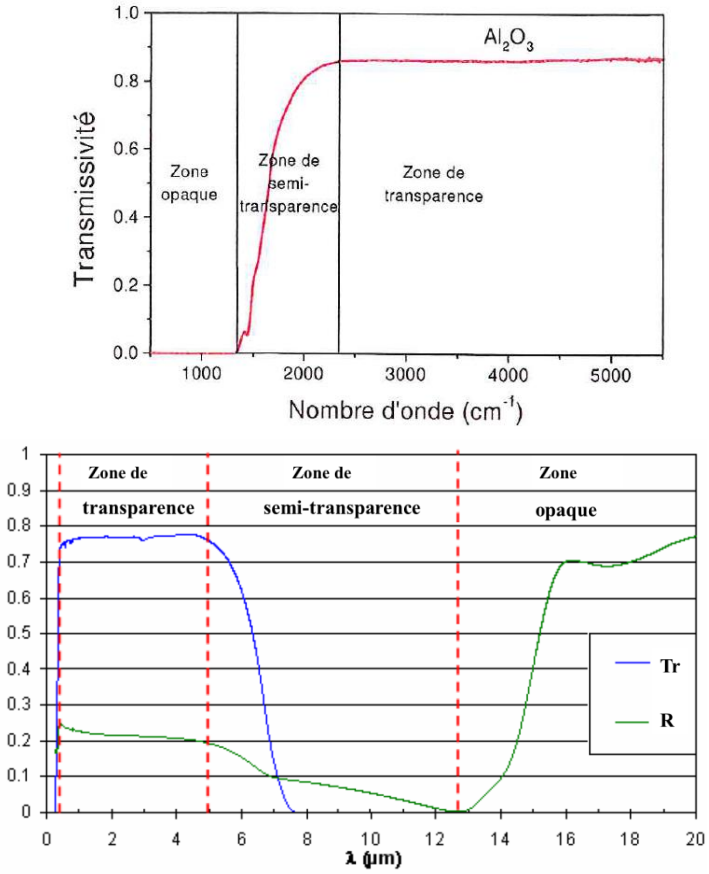


Figure I-20 : a) Transmittivité spectrale normale d'un monocristal d'alumine dans le domaine de l'IR (épaisseur 0,7 mm à température ambiante) d'après (Rozenbaum 1999) b) Réflectivité et transmittivité d'un monocristal de zircone yttriée à 8%m (2 mm d'épaisseur) d'après (Debout 2007).

Dans un matériau diélectrique, les bandes de conduction et de valence sont séparés par une bande interdite de largeur E_{gap}. Pour générer des électrons libres participant à la conduction il faut exciter la matière et fournir une énergie E_{laser} supérieure à E_{gap} pour faire transiter les électrons dans la bande de conduction. Sans cette excitation, le matériau est transparent à la longueur d'onde et n'absorbe pas le rayonnement (Di Maio 2013; Leyder 2014). Pour permettre l'absorption d'un rayonnement laser, la

longueur d'onde d'émission λ du laser doit pouvoir fournir l'énergie nécessaire pour dépasser la bande interdite du matériau E_{gap}[2], soit :

$$E_{laser} = h\nu = \frac{hc_0}{\lambda} \geq E_{gap} \qquad \text{II.1}$$

avec ν la fréquence de l'onde lumineuse (Hz ou s^{-1}), c_0 la célérité de la lumière dans le vide (≈ 3.10^8 m/s) et h la constante de Planck (6.63×10^{-34} J.s)
L'énergie des photons est absorbée par les électrons qui, à leur tour, transmettent leur énergie au réseau en engendrant une excitation des électrons vers des niveaux d'énergie supérieurs. L'énergie lumineuse est alors transformée en agitation thermique qui conduira à la fusion.

L'alumine et la zircone sont des oxydes diélectriques qui possèdent un comportement spectral similaire vis-à-vis du rayonnement thermique. L'alumine-α possède une bande interdite de 8,8 eV (Roger H. French 1990), pour la zircone elle varie entre 4-7 eV suivant la structure cristalline et l'ajout de stabilisants (R. H. French et al. 1994). Par conséquent, seuls les rayonnements dans le domaine de l'ultraviolet-UV) sont directement absorbés grâce à des processus de transition électronique. A haute température (1490°C), l'absorption est légèrement favorisée car la valeur de la bande interdite passe à 7,2 eV (Roger H. French 1990). Pour les carbures SiC-α et SiC-β, la bande interdite est de 2,8 eV et 2,6 eV respectivement selon (Palik 2003).

La *Figure I-21* présente l'évolution de l'indice de réfraction n et le coefficient d'extinction de l'alumine α_{ext} en fonction de la longueur d'onde λ, d'après (Tropf et Thomas 1998). L'absorption d'un rayonnement résulte des phénomènes de polarisation qui diffèrent suivant la longueur d'onde du rayonnement. On retrouve trois domaines distincts : les domaines de l'UV, de l'IR et d'une zone dite "de transparence" qui inclut le proche UV, le visible et le proche IR (comprise entre 0,9 et 8,5 eV soit respectivement entre 1,4 et 0,15 µm). Les différents phénomènes d'absorption sont liés à des **transitions électroniques** aux faibles et moyennes longueurs d'onde (UV et visible) comme vu au paragraphe précédent; ou alors à des **vibrations de réseau** aux plus fortes longueurs d'onde (IR), selon (Bass 1995).

Aux grandes longueurs d'onde (IR moyen et lointain), l'absorption est conséquente *(Figure I-21)*. Ce sont d'une part les vibrations de réseau fondamentales (à un phonon) qui permettent l'absorption. Ce processus est associé à des mouvements électrostatiques de charges opposés qui induisent un moment dipolaire électrique auquel le photon du rayonnement incident peut se coupler et engendrer une absorption. L'absorption dans cette région va également dépendre de la température. En effet, des transitions d'ordres supérieurs peuvent intervenir par combinaison phonon-phonon. On note que ces processus multi-phonons induisent une absorption plus faible comparée à celle de premier ordre (Srivastavas et Bist 1972).
Aux faibles longueurs d'onde (UV, visible et proche IR), comme vu précédemment, l'absorption résulte des transitions électroniques. Le champ électrique incident génère une transition électronique vers un niveau excité, le nuage électronique entourant chaque noyau se déforme alors et il y a formation d'un moment dipolaire induit pour chaque atome. Dans cette gamme spectrale, l'électron peut effectuer des transitions électroniques nécessitant des énergies de plus en plus grandes et il peut ainsi passer de l'état localisé à des états délocalisés de plus en plus éloignés par rapport au noyau auquel il est associé. En fonction des énergies mises en jeu, différentes théories permettent d'interpréter les absorptions dues aux transitions électroniques (Debout 2007b; Faure 2004). Ceci explique la zone de transparence de l'alumine et de la zircone dans le proche UV, visible et proche IR, puisque l'énergie nécessaire pour exciter un électron est importante.
Dans la zone UV, au-dessus de 8,8 eV (soit λ<140 nm), l'alumine présente une absorption inter-bande linéaire (à un photon). Les pics à 9 et 13 eV (138 et 95 nm) correspondent à la plus faible transition

[2] E_{laser} est parfois donnée en eV soit $1{,}602.10^{-19}$J et E_{laser}(eV)~$1{,}24/\lambda$ (λ exprimée en µm)

énergétique entre le niveau supérieur de la bande de valence de l'oxygène ($2p^6$) et le bas de la bande de conduction formé principalement par les niveaux 3s de Al (états 3s+3p). A des énergies plus importantes, un plasma oscillatoire intervient autour de 25 eV (50 nm) ; entre 33 et 45 eV (38 et 28 nm), il s'agit de la transition de l'état ($2s^6$) de l'oxygène à l'état (3p) de l'aluminium. La photo-absorption par les électrons de cœur ne commence qu'à des énergies encore plus importantes, (Jung 2012).

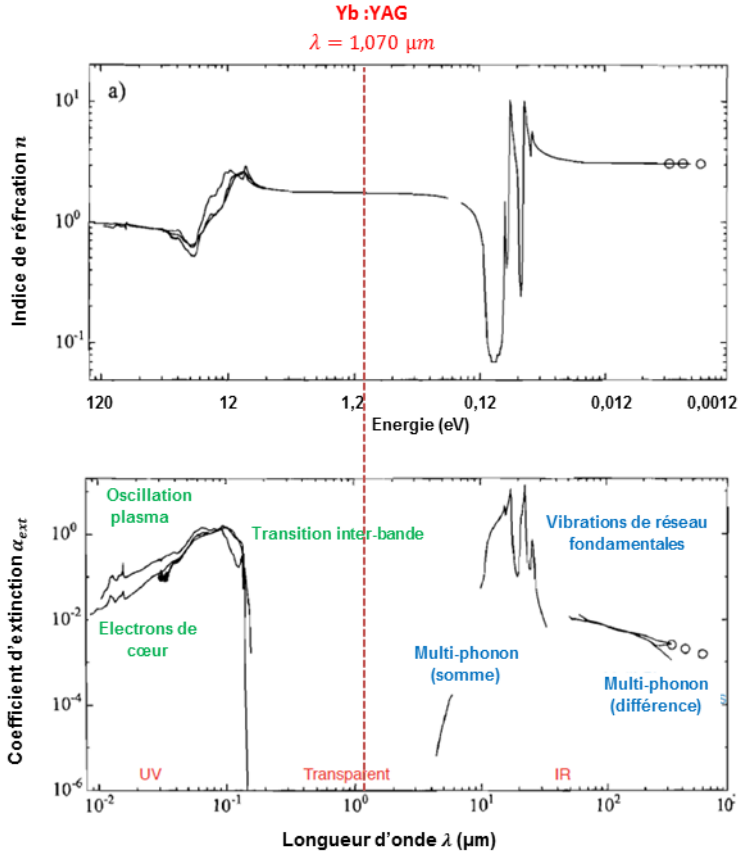


Figure I-21 : Indice de réfraction et coefficient d'extinction en fonction de la longueur d'onde pour Al_2O_3. Les lignes représentent des points expérimentaux, les cercles font références à des valeurs dispersées. En vert les transitions électroniques, en bleu les vibrations de réseau (Jung 2012; Tropf et Thomas 1998)

Dans la zone dite de « transparence », l'absorption y est beaucoup plus faible. C'est aussi la zone d'intérêt de notre étude (λ=1,07 µm soit 1,16 eV). La *Figure I-22* présente le coefficient d'absorption relatif au domaine « transparent » pour des échantillons d'alumine non extrêmement pure ou s'éloignant d'un cristal parfait (Evans 1991). Dans cette région, l'absorption est considérée comme extrinsèque et a été définie comme provenant des traces d'impuretés et des défauts (joints de grains et lacunes d'oxygène par exemple). Il faut également prendre en compte une perte liée à la diffusion intrinsèque de Rayleigh. Cette diffusion est faible mais non négligeable pour des longs parcours dans les fibres optiques. Des centres colorés F et F+ ont été identifiés autour de 6,0 et 4,8 eV et sont associés avec un ou deux électrons piégés dans les lacunes d'oxygène. Ces lacunes peuvent être introduites pendant la solidification ou les traitements de recuit dans un environnement appauvri en oxygène, (Bass 1995). Des études ont montré que cet environnement implique un ordre de liaison plus faible et laisse des états vides en dessous de la bande interdite de l'alumine. L'alumine agirait alors comme un semi-conducteur par sa bande interdite réduite.

L'alumine possède donc toujours une faible densité d'électrons libres provenant essentiellement des impuretés contenues dans ce matériau. Alors qu'une faible intensité lumineuse ne devrait pas perturber cette petite population d'électrons, il existe une probabilité pour que certains de ces électrons absorbent par effet *Bremsstrahlung* inverse. Celui-ci suppose qu'une charge électrique puisse interagir avec la matière environnante moyennant une modification de sa vitesse et de sa direction, ces changements

pouvant impliquer soit un rayonnement (effet direct) lors d'un freinage, soit une absorption (effet inverse) lors d'une accélération. Dès lors, ces électrons accroissent leur énergie cinétique malgré de faibles intensités lumineuses jusqu'à atteindre une énergie supérieure à l'énergie d'ionisation. Le niveau d'absorption dans la zone de transparence est donc fortement dépendant de la pureté de la matière première. On pourra dès lors parler de **semi-transparence** dans cette région.

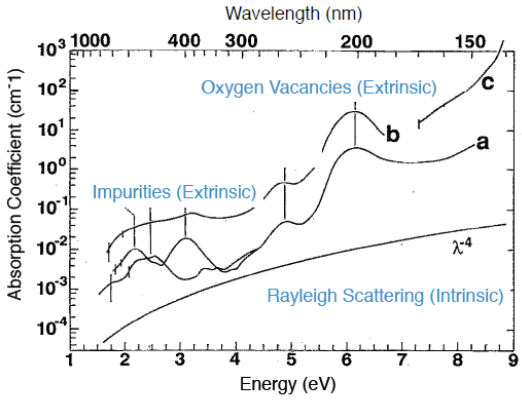


Figure I-22 : Evolution du coefficient d'absorption en fonction de l'énergie photonique correspondant à des cristaux d'Al_2O_3 non dopés solidifiés par trois méthodes différentes (a, b et c). (Evans 1991)

On note que certains lasers à impulsions ultra-brèves (par exemple à impulsions femtosecondes) autorisent l'absorption malgré une énergie photonique inférieure à la bande interdite. Il s'agit d'un phénomène complexe basé sur des mécanismes non linéaires (à plus d'un photon), (Leyder 2014). En maintenant la puissance du faisceau en dessous de la puissance critique d'auto-focalisation (pour ne pas provoquer l'ablation du matériau), les processus d'interaction deviennent extrêmement contrôlables et reproductibles permettant des réalisations technologiques d'une très grande précision (échelles nanométriques).

La longueur d'onde du laser Yb :YAG de la machine Phénix PM100T utilisée dans cette étude (λ =1070nm) correspond au domaine de transparence de ces matériaux *(Figure I-23)*.

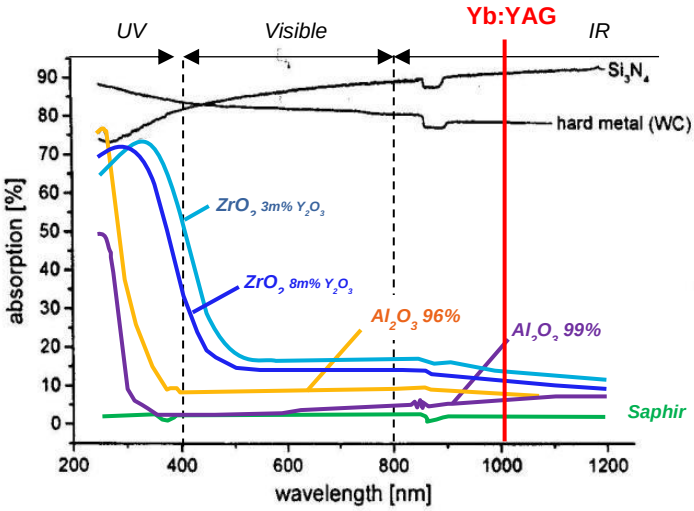


Figure I-23 : Absorptivité en fonction de la longueur d'onde incidente d'après (Hellrung et al. 1999)

Des études sur céramiques oxydes ont choisi comme source de fusion, le laser CO_2 (λ≈10 µm - IR lointain ou zone d'absorbance), dont la longueur d'onde est absorbante pour ces matériaux (Z. Liu et al. 2016; Bourban et al. 1997; Triantafyllidis, Li, et Stott 2002; J. Liu et al. 2010). Cependant, les lasers Yb:YAG ont

un meilleur couple {BPP –M²}[3] par rapport aux lasers CO_2 ou bien même aux lasers Nd:YAG quelles que soient l'irradiance et la longueur d'onde définies *(Figure I-24)*. Cette classification indique que les monocordons peuvent être fusionnés en s'affranchissant d'un contrôle parfait de la position focale, contrairement aux autres sources. Aussi, la distance de travail est supérieure pour le laser Yb:YAG, ce qui permet de diminuer les déplacements du spot d'un point à un autre grâce aux défocalisations du faisceau (Graneix 2015). Ce type de laser proche IR est le plus répandu chez les constructeurs de machines LBM, (Ferrage, Bertrand, et Lenormand 2018)

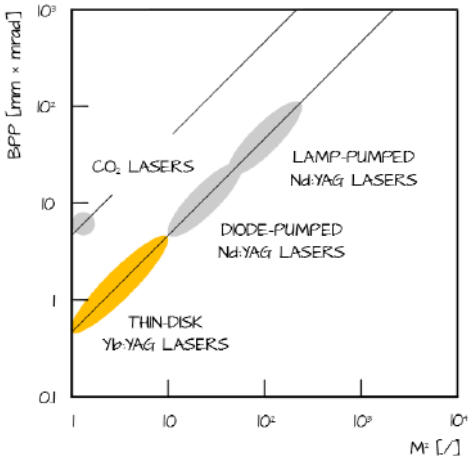


Figure I-24 : Variation du BPP en fonction de l'indice M² pour différentes sources laser d'après (Graneix 2015)

La solution envisagée pour pallier la semi-transparence des céramiques oxydes consiste alors à adjoindre des absorbants à la poudre. (Shaker 2017) a déjà pu tester l'efficacité du mélange hydroxyapatite-carbone. Un des objectifs de ce travail sera de définir la teneur optimale et la nature de l'absorbant nécessaires à une bonne absorption des céramiques étudiées au rayonnement incident, par le biais des mesures radiatives et d'études paramétriques.

I.2.3. Résistance aux chocs thermiques et préchauffage

L'application du LBM aux céramiques a été fortement retardée par leur faible résistance aux chocs thermiques, caractérisée par l'écart de température critique ΔT_c[4] admissible par le matériau céramique lors de tels chocs. En effet, les vitesses de solidification et les gradients thermiques élevés engendrés par le procédé peuvent initier une fissuration à froid lors du refroidissement du bain. La combinaison d'une faible conductivité thermique et d'un fort coefficient de dilatation thermique engendre des forts gradients de déformation thermique *(Figure I-25)*. L'alumine et la zircone supportent très mal les chocs thermiques avec un écart de température critique faible : pour une trempe eau ΔT_c (Al_2O_3)=200-300°C et ΔT_c (ZrO_2-3%Y_2O_3)=250-350°C d'après (Sato, Ishitsuka, et Shimada 1988). L'ensemble alumine-zircone semble présenter une résistance aux chocs thermiques améliorée par rapport aux phases pures, et l'addition de SiC peut même améliorer ces propriétés. La problématique de la sensibilité aux chocs thermiques n'est pas exclusive aux céramiques oxydes mais l'est également pour d'autres matériaux comme c'est le cas pour les intermétalliques TiAl (Gelpi 2020), NiAl ou FeAl, ou encore pour les métaux fortement durcis par précipitation comme l'Inconel 738 (Grange 2020) difficile à mettre en forme.

[3] Le BPP ou *beam parameter product* est le produit du rayon du faisceau au col par le demi-angle de divergence. Plus cet indice est faible, meilleure est la qualité du faisceau.
L'indice M² rend compte de la qualité du faisceau par rapport à la répartition gaussienne parfaite ($M^2 = \theta.\frac{\pi\phi_0}{4\lambda}$ *avec* θ l'angle de divergence du faisceau, $\phi_0$le diamètre du faisceau au « waist » et λ la longueur d'onde).
[4] Ecart de température maximal que peut supporter un matériau, au-delà il y a fissuration suite à l'accumulation de contraintes thermiques importantes.

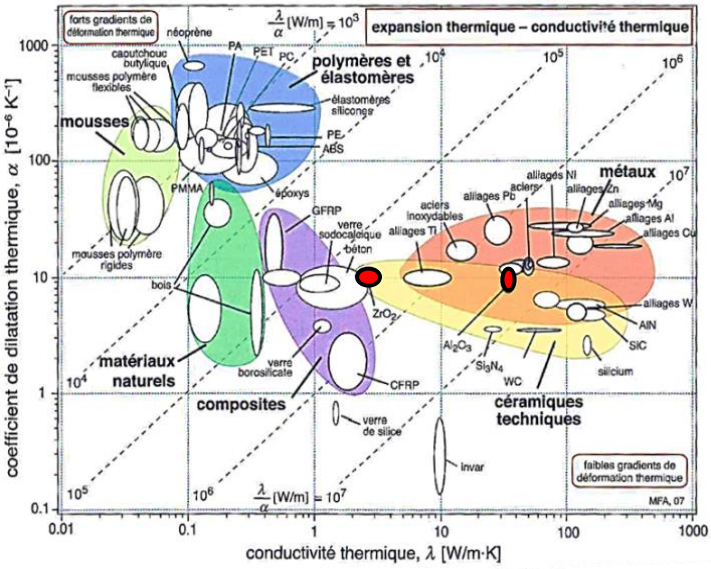


Figure I-25: Expansion thermique et conductivité thermique de différents matériaux, d'après (Ashby, 2013)

La viabilité du procédé LBM pour les céramiques nécessitera une maîtrise fine de sa thermique. Le choix du mode de pré-chauffage (ou post-chauffage) et de la stratégie de balayage permettra de contrôler les gradients thermiques, la vitesse et la forme du front de solidification. Il conditionnera alors les vitesses de refroidissement, le type de microstructures obtenues, et le niveau des contraintes internes accumulées au sein du matériau. Quelques études de la littérature sont en accord avec de tels propos. Dans le domaine du dépôt direct d'énergie (*laser engineered net shaping LENS*), (Niu et al. 2017) obtiennent des petits murs (15x4x12 mm^3) exempts de fissures en utilisant de fortes vitesses de balayage. Selon eux, ces fortes vitesses diminuent les gradients thermiques mais cette affirmation est contraire au modèle thermique de Rosenthal. Néanmoins, ils indiquent que pour des pièces de plus grandes dimensions, en dehors de l'adaptation des paramètres du procédé, d'autres moyens doivent être investigués pour réduire la fissuration. Les machines de fabrication existantes atteignent leur limite et ont besoin de nouveaux systèmes de préchauffage. Pour l'alumine-zircone, (Hagedorn 2013) a mené des études avec différents moyens de préchauffage combinés à un laser avec une distribution top-hat, à savoir : un chauffage par induction ou par laser CO_2 fixe hors axe. Les températures de préchauffage atteintes sont situées juste en dessous du point de fusion de l'eutectique alumine-zircone ; la fissuration est bien réduite mais reste en partie présente. Pour la construction de cubes en zircone, (Q. Liu 2014) utilise comme système de préchauffage, un laser Nd :YAG hors axe fixe et constate une nette réduction de la fissuration. Un préchauffage par laser coaxial au laser principal de fusion pourrait diminuer davantage les gradients thermiques. C'est ce système qui a été mis en place au *Centre Des Matériaux* sur une machine *Concept Laser M2* et qui est en cours de validation. A partir de modèles numériques, (Chen 2018) dans le projet *CÉFALÉ* montre l'effet bénéfique d'un tel système et la différence entre le pré- ou post-chauffages grâce à ce système coaxial de deux lasers Yb:YAG *(§II.4)*.

I.3. Formation et régimes d'interaction des bains de fusion

L'identification des étapes d'amorce de la fusion, de la progression du bain de fusion et des différents régimes d'interaction sont primordiales pour comprendre l'interaction laser-matière ainsi que les phénomènes associés pouvant perturber la stabilité du bain. Aujourd'hui, l'imagerie X et la modélisation par la mécanique des fluides de la fusion des bains et des phénomènes induits (éjections de particules solides ou liquides, dénudation,…) permettent d'en savoir beaucoup plus. La plupart des observations par imagerie X sont issues de travaux sur matériaux métalliques mais aident toutefois à la compréhension des phénomènes similaires se produisant sur les matériaux céramiques.

I.3.1. Régimes d'interaction laser-matière

L'énergie absorbée par le matériau (poudre solide et bain liquide) au cours de l'interaction laser-matière est convertie en chaleur par la dégradation de la première énergie d'excitation ordonnée et localisée. Les ordres de grandeur habituels des temps d'énergie de relaxation sont de l'ordre de 10^{-13} s pour les métaux et entre 10^{-12} et 10^{-6} s pour les non-métalliques. La conversion de l'énergie lumineuse en chaleur et sa conduction dans le matériau crée une distribution de température dans le matériau. La combinaison des intensités laser $\left(I = \frac{4P}{\pi\Phi_L^2}\right)$ avec les temps d'interaction $\left(t_{int} = \frac{\Phi_L}{V}\right)$ produit différentes élévations de la température et donc différents effets comme la chauffe, la fusion et la vaporisation du matériau. De plus, l'ionisation de la vapeur au cours de l'irradiation laser peut générer un plasma *(Figure I-26)* (Dahotre et Harimkar 2008).

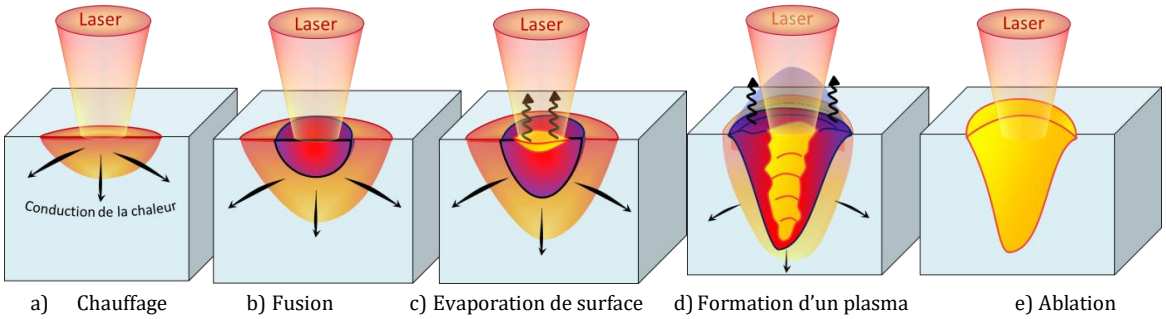


Figure I-26 : Différents effets de l'interaction laser-matière adapté de (Dahotre et Harimkar 2008)

Par analogie avec le soudage laser, on distingue, pour le LBM deux régimes d'interaction laser-matière. Aux intensités laser faibles et modérées, le matériau est localement fondu sans vaporisation significative. Le transport de chaleur se fait par **conduction** et convection au sein du bain liquide. Les profondeurs de pénétration du rayonnement laser sont faibles et la fusion est limitée par la diffusion thermique. Dans ce cas, le dépôt de puissance est surfacique et la zone refondue est plus large que profonde. Aux fortes intensités laser, l'énergie est suffisamment importante pour vaporiser voire parfois ioniser le matériau. Un capillaire de vapeur (**keyhole** ou trou de serrure - *Figure I-27*) est formé au point d'impact du faisceau laser sur la surface du liquide et forme une zone de dépression. Il se trouve en équilibre sous l'effet de plusieurs forces qui résultent de la pression de vapeur, à savoir des forces de tension de surface, de friction, de gravité et de la pression hydrostatique. Cet équilibre dynamique dépend fortement des paramètres de fabrication notamment de la vitesse de balayage. Les profondeurs de pénétration sont alors importantes. Le faisceau laser incident pénètre profondément au sein du capillaire gazeux et est fortement absorbé par un effet de multi-réflexion du rayonnement sur les parois du capillaire. A la surface libre du capillaire, un plasma d'ions métalliques peut être engendré, lequel absorbe en partie le faisceau laser. L'énergie absorbée par le plasma est alors retransmise au milieu environnant et constitue une autre

source de chaleur pour le bain liquide. Le plasma d'ions est néanmoins moins absorbant pour un faisceau Yb:YAG qu'un laser CO_2 et échauffe ce dernier de manière plus modérée. Le keyhole agit, quant à lui, comme un « piège à lumière », ou un corps noir indépendamment des longueurs d'onde, ce qui mène à des bains à forts rapports d'élancement ($r_e^{bain} = H_{bain}/e_{app}$ compris entre 5 et 20). Ce capillaire, dans le domaine du soudage à haute densité d'énergie, a un rôle très important car il permet un transfert d'énergie directement au cœur du matériau par la multi-réflexion du faisceau laser sur les parois du capillaire liquide (Postma 2003). A l'inverse du mode keyhole, le mode conduction est stable et permet un meilleur contrôle de la chaleur fournie à la pièce, il limite l'introduction de pores, de fissures et d'éjections.

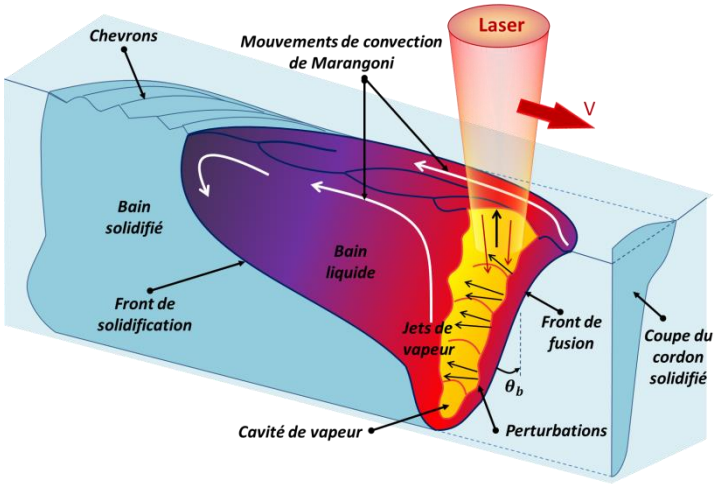
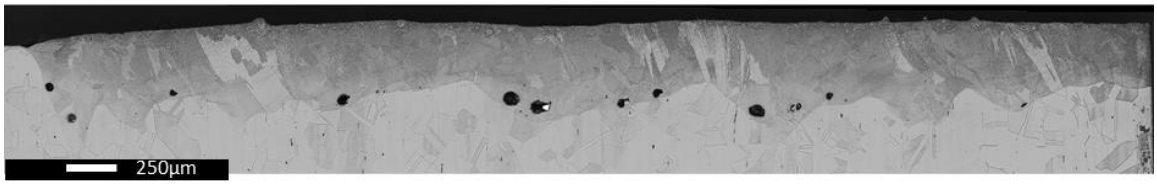
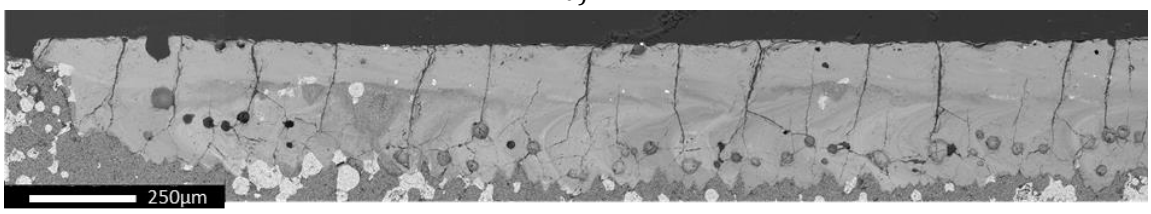


Figure I-27 : Vue d'une coupe d'un bain de fusion en régime keyhole avec θ_b l'angle d'avancée du bain, adapté de (Fabbro 2013)

La *Figure I-28* montre l'emprisonnement de la porosité le long de l'isotherme de fusion dans le cas d'un métal (acier 316L) et de la céramique de notre étude (Al_2O_3-ZrO_2). Cependant, pour le cas de matériaux très réfléchissants (Cu, Al, Au, Ag, Pt,…), le mode conduction ne permet qu'une faible absorption du rayonnement, contrairement au mode keyhole qui permet une forte absorption et une forte productivité. La transition entre les deux modes n'est pas explicite, il est toutefois possible de définir une zone de transition mixte en fonction de la densité de puissance comme présenté en *Figure I-29* dans le cas du soudage (Quintino et Assunção 2013).



a)



b)

Figure I-28 : Sections longitudinales d'un cordon de fusion a) de 316L à $E_l = 1{,}95\ J.mm^{-1}$ d'après (Wayne E. King et al. 2014) b) de l'Al_2O_3-ZrO_2 à $E_l = 0{,}42\ J.mm^{-1}$ dans cette étude

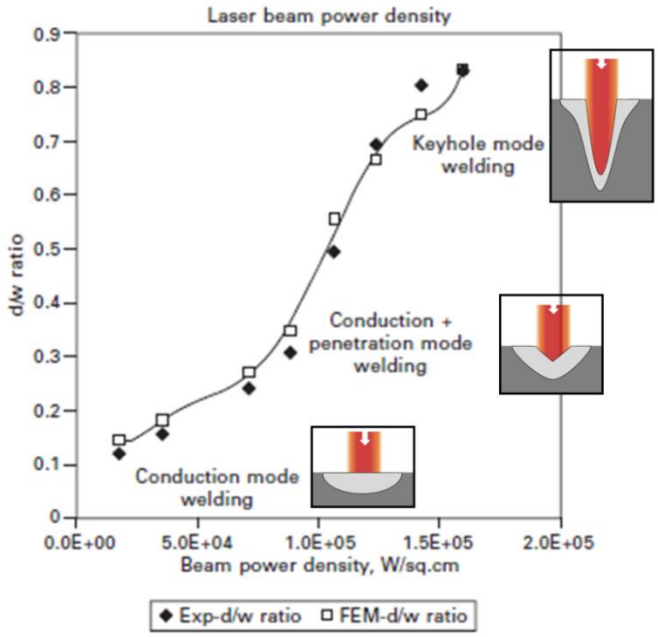


Figure I-29 : Identification de trois régimes de soudage à partir de l'évolution du rapport d'élancement du bain (profondeur/largeur) fonction de la densité de puissance (W.cm^{-2}) d'après (Quintino et Assunção 2013)

La pression de vapeur [Pa] induite par l'évaporation dépasse la tension de surface maximale γ_{LV} (N.m^{-1}). Elle est donc responsable de la perte de matière par évaporation, et par expulsion de liquide en dehors de la zone de fusion vers les bords du faisceau laser *(Figure I-30)*. Il a été montré que l'expulsion de liquide est le phénomène dominant aux plus faibles puissances, tandis qu'aux fortes puissances c'est l'évaporation qui est responsable de la perte de matière. On note que l'épaisseur de liquide restante diminue avec l'augmentation de la puissance (Dahotre et Harimkar 2008) .

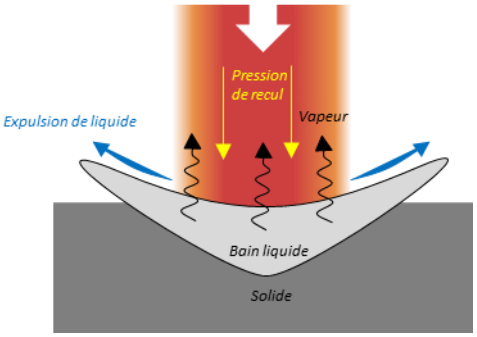
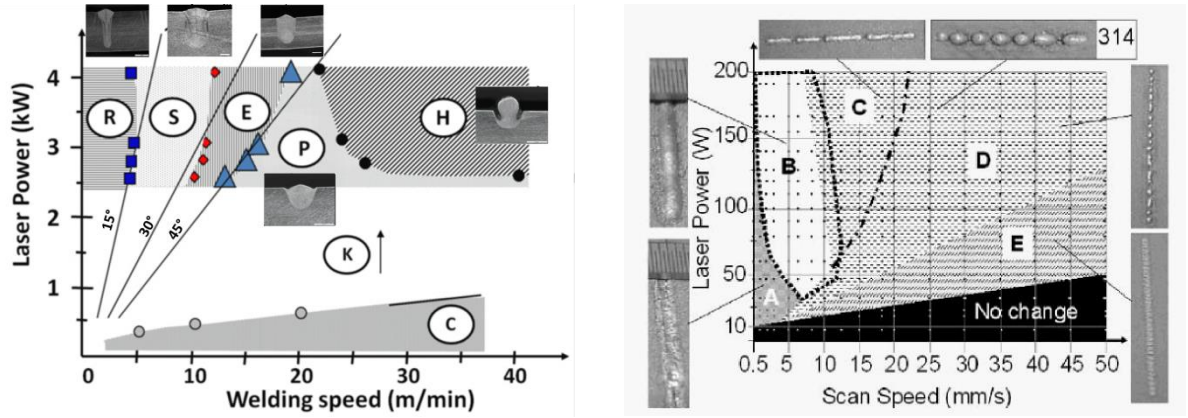


Figure I-30 : Schématisation de l'évaporation de surface et l'expulsion du liquide du bain

Pour le cas des matériaux métalliques, il est courant en soudage classique ou en LBM de définir une carte des domaines d'interaction laser-matière définie suivant la morphologie ou section des cordons par les paramètres du procédé *(Figure I-31)*. On peut identifier les domaines morphologiques des cordons par ordre croissant de l'énergie linéique :

- non fondus
- partiellement fondus
- discontinus à morphologie sphérique (*balling*)
- discontinus à morphologie allongée
- continus mais avec des perturbations de hauteur et de largeur, *i.e* des creux suivis de bosses – absence de rectitude
- continus sans instabilités, à section apparente bombée (assimilée à un arc de cercle), cordons dits stables
- continus à section apparente plate



a) b)

Figure I-31 : Exemples de cartographies des domaines de stabilité
*a) Soudage – régimes de **conduction C** et de **keyhole K** avec indication de l'angle d'avancée du bain θ_b et parmi lesquels on distingue les domaines dits **R : Rosenthal** ; **S : mono-vague** ; **E : allongé** ; **P : pre-humping** ; **H : humping** - d'après (Fabbro 2013)*
*b) LBM - domaines des cordons dits **A : continu et plat / B : continu et arrondi / C : interrompu/ D : balling / E : partiellement fondu** - d'après (Childs, Hauser, et Badrossamay 2004)*

I.3.2. Cas de l'alumine

(Samant et Dahotre 2009) rapportent que lors du perçage laser de l'alumine au-dessus de 3250 K ($T_{ébullition}$), il y a dissociation en AlO (g), Al(l), Al(g), Al_2O(g) et AlO_2(g). La pression de recul générée sous l'impact du faisceau laser provoque l'expulsion de la phase liquide entre 3250K et 3500K. La perte de matière à la surface du liquide intervient par évaporation. Au-dessus de 5000 K, la dissociation est complète et de la vapeur d'aluminium Al(g) et de dioxygène O_2(g), se forment probablement selon la réaction suivante :

$$Al_2O_3 \;=\; 2\,Al(g) + \frac{3}{2}O_2(g)$$

La découpe ou perçage laser de l'alumine par laser résulte alors d'une combinaison d'expulsion de liquide, d'une dissociation et évaporation comme déjà présentée en *Figure I-30*. Le seuil d'énergie linéique nécessaire pour percer l'alumine est d'environ 0,25 à 0,42 $J.mm^{-1}$ pour $\Phi_L = 70\mu m$ (soit une énergie surfacique de 455 à 764 $J.cm^{-2}$). Il est tout à fait envisageable d'atteindre cette gamme d'énergie lors de la fabrication par LBM, ce qui pourrait engendrer les mêmes phénomènes lors de la fabrication.

L'histoire thermique est importante pour la prédiction de la profondeur de fusion suivant la distribution de température au sein du matériau ainsi que la déformation du liquide par la pression de recul induite par l'évaporation. (Harimkar, Samant, et Dahotre 2007) calculent, pour un lit de poudre d'alumine frittée (40% de porosité avec une taille moyenne de particules de 220µm), la température de surface en fonction du temps à partir d'un modèle numérique 3D, pour différentes fluences laser en $J.cm^{-2}$ *(Figure I-32.a)*. Dans tous les cas, la température de surface augmente rapidement avec le temps et atteint un maximum. Une fois le laser éteint, la température diminue jusqu'à la température ambiante. De ces calculs, il est déduit que la température maximale de surface augmente avec la fluence *(Figure I-32.b)*. Enfin, les calculs montrent que la température diminue graduellement en dessous de la surface et tend vers la température ambiante au bout d'environ 2,5 mm, quelle que soit la fluence laser *(Figure I-32.c)*.

Ces mêmes auteurs calculent les valeurs des pressions de recul *(Figure I-33)*. Ils observent comme pour la température, une pression maximale avant coupure du laser. A 0,25 $J.mm^{-1}$, T_{pic}=4200 K et P_{recul}=1,1.10^5 Pa et à 0,42 $J.mm^{-1}$, T_{pic}= 6200 K et P_{recul}=1,9.10^5 Pa. Ces pressions supérieures à la pression atmosphérique amènent le liquide formé à pénétrer davantage en profondeur le matériau poreux à l'état fritté et à augmenter la profondeur de pénétration par rapport aux valeurs estimées en considérant

uniquement le champ thermique. Un modèle plus complet prenant en compte la profondeur de fusion due à la thermique et la contribution de la pression de recul à la profondeur de pénétration est alors choisi. On note que les vitesses de refroidissement de l'alumine sont plus faibles que celles des métaux à cause de sa plus faible conductivité thermique.

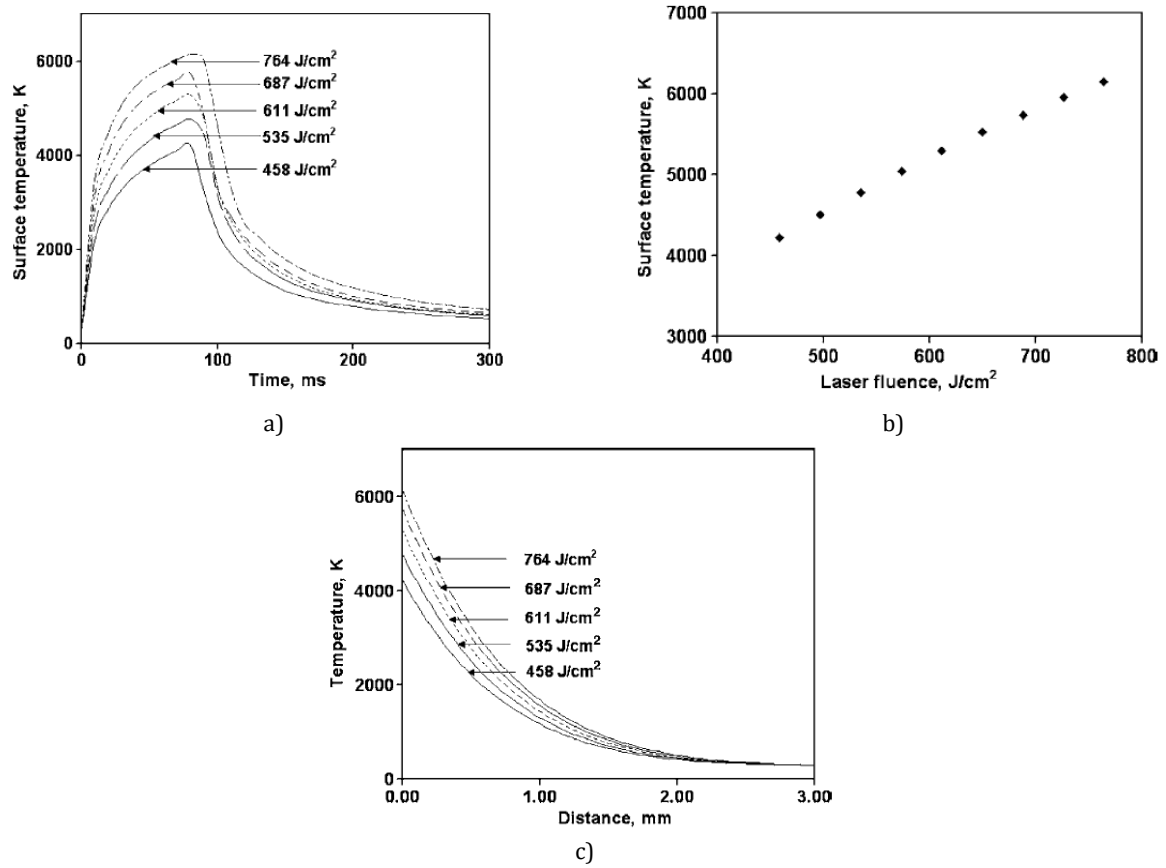


Figure I-32 : a) Température de surface pour différentes fluences laser en fonction du temps b) variation de la température pic en fonction de la fluence c) variation de la température en fonction de la profondeur pour différentes fluences laser (Harimkar, Samant, et Dahotre 2007)

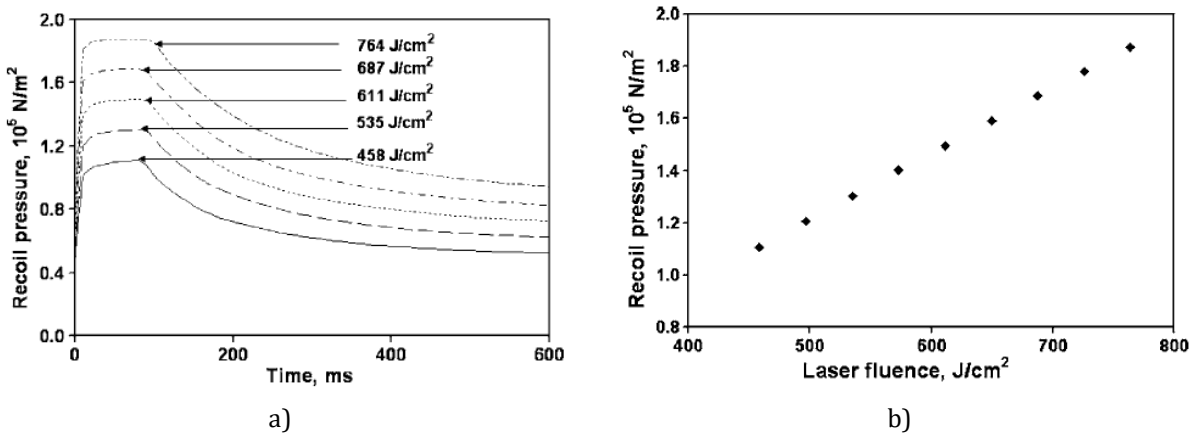


Figure I-33 : Pression de recul en surface pour différentes fluences laser a) variation en fonction du temps b) variation de la pression maximale en fonction de la fluence (Harimkar, Samant, et Dahotre 2007)

Comme discuté au *§V.I.3.3*, la forme du bain est affectée dans certaines conditions par les effets de tensions de surface en plus de la pression de recul. La viscosité cinématique de l'alumine au point de fusion (2323 K) vaut approximativement 0,15 $cm^2.s^{-1}$, ce qui est très négligeable (0,049 $cm^2.s^{-1}$ pour ZrO_2 – *Annexe*

A). Ainsi, les auteurs négligent dans leur calcul l'effet de la tension de surface pour les conditions opératoires choisies. La seule prise en compte de la pression de recul dans le calcul numérique permet de mieux approcher les profondeurs de fusion expérimentales.

I.3.3. Etapes de formation d'un bain : interaction laser-matière et phénomènes associés

(Khairallah et al. 2016) ont modélisé la formation de l'isotherme de fusion d'un monocordon (forme du bain) en prenant en compte la convection de Marangoni, la tension de surface et la pression de recul pour l'acier 316L avec un dépôt de particules (de diamètre moyen 27 µm) sur un substrat dense *(Figure I-34)*. Les auteurs divisent la dynamique du bain en trois domaines : la **région de dépression** localisée sous le faisceau laser, la **queue du bain** de fusion et entre les deux, une **région de transition**. Dans la région de dépression c'est la pression de recul qui domine, il s'agit de la partie la plus chaude du bain. En queue du bain, c'est la tension de surface qui prédomine au refroidissement. Les gradients thermiques sont les plus élevés près de la région d'impact du faisceau laser *(Figure I-34)*, ce qui indique que la convection de Marangoni est plus importante dans cette région. Il est important de noter que lorsque la pression de recul est ajoutée au modèle numérique, la profondeur de pénétration augmente avec l'apparition de la dépression, ce qui aide au refroidissement du bain par évaporation et radiation en surface du capillaire liquide. La température pic du bain diminue alors de 5000 K à 2700-3000 K environ (point d'ébullition de l'acier étudié).

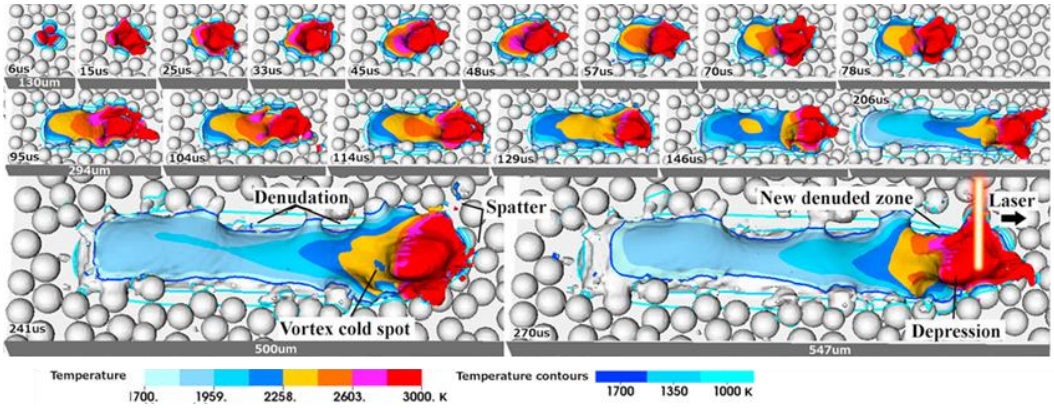


Figure I-34 : Etapes d'amorce et de propagation du bain de fusion d'après (Khairallah et al. 2016)

(Khairallah et al. 2016) mettent en avant avec cette modélisation les mécanismes de formation et d'écroulement du capillaire liquide, la formation de la dépression ainsi que celle des pores, des éjectas liquides et de la dénudation. Le suivi d'un point fixe balayé par le faisceau laser au cours du temps permet de bien comprendre comment sont créés ces phénomènes *(Figure I-35)*. Initialement, le liquide provenant du bain (qui se déplace à la vitesse de balayage) entre en contact avec les particules non fondues du lit de poudre, lesquelles commencent à fondre en avant du laser. Les particules les plus petites fondent intégralement et augmentent la zone de contact thermique. Le liquide est alors animé d'un rapide flux latéral dirigé à partir du point chaud. Lorsque le centre du laser atteint le point fixe (76 µs), la température de la surface liquide surpasse le point d'ébullition (ligne noire à 3500 K). Une pression de recul liée à la détente du flux de vapeur métallique applique une force croissante normale à la surface du liquide, l'expulsant en dehors du bain. Il se crée alors une dépression au fond du bain contenant une fine couche de liquide. La pression de recul creuse le bain, en repoussant le liquide latéralement et verticalement vers le haut du bain, ce qui contribue à l'éjection de gouttelettes (éjectas).
Une fois que le centre du faisceau a dépassé le point fixe, la température du bain diminue ainsi que la pression de recul. Ceci étant, la tension de surface γ_{LV} augmente et prend le pas sur les autres mécanismes. Les vecteurs vitesses d'écoulement du liquide se réorientent vers l'intérieur du bain et

forcent le liquide des parois latérales à s'effondrer. A ce moment-là, des poches de gaz peuvent être emprisonnées et former des pores à la solidification. Puis, le liquide remplit le bain et atténue la dépression. Un flux latéral est observé dû à l'asymétrie de refroidissement du bain causée par les particules adjacentes partiellement fondues. Ce flux latéral de liquide peut déborder et absorber les particules adjacentes au bain de fusion et créer une zone dénudée. La tension de surface ramène alors le liquide en surface du bain vers le point froid (convection de Marangoni). Le liquide qui se développe en amont du centre du laser est oscillant comme la houle et peut déborder en avant sur le lit de poudre et provoquer des éjectas qui se sphéroïdiseront.

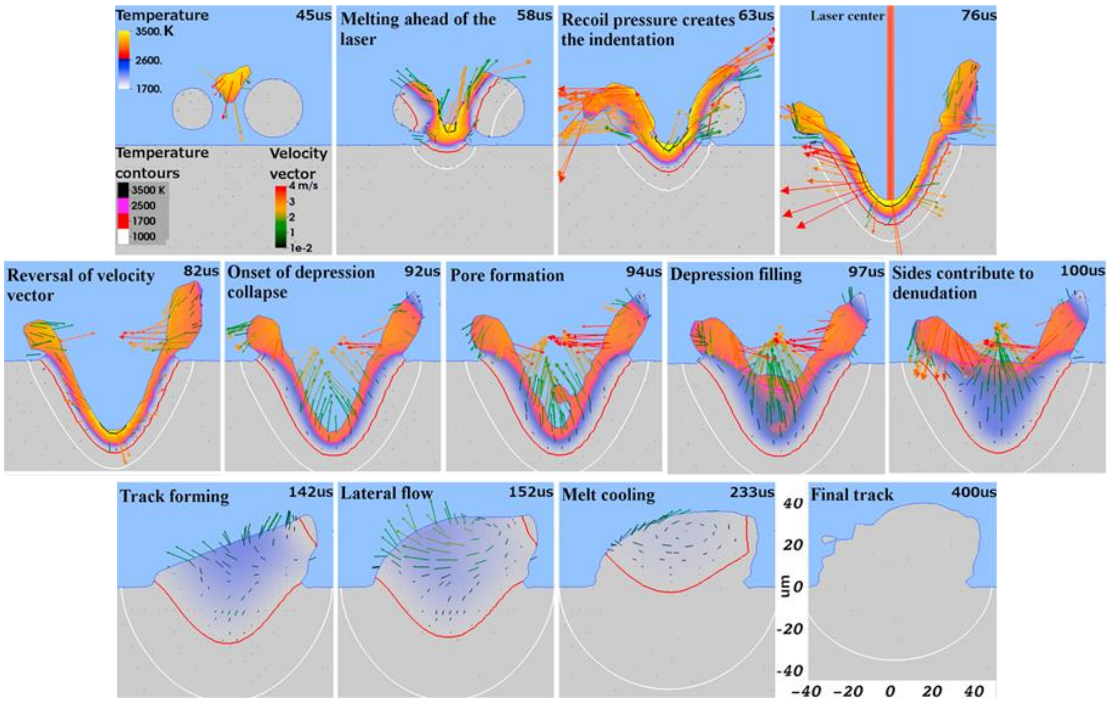


Figure I-35 : Suivi en un point fixe au cours du temps des coupes transversales de l'amorce et propagation du bain de fusion d'après (Khairallah et al. 2016)

La vue longitudinale de la *Figure I-36* met en avant les phénomènes identifiés précédemment : l'éjection de gouttelettes à partir du bain liquide (1). La pression de recul est responsable de la pénétration en profondeur du bain liquide dans la zone de dépression (2). La convection de Marangoni pousse la surface du bain liquide loin du spot laser (3) mais la courbure en surface du liquide ramène fortement le liquide à nouveau dans la zone de dépression (creux du bain) formée par le faisceau laser (4).

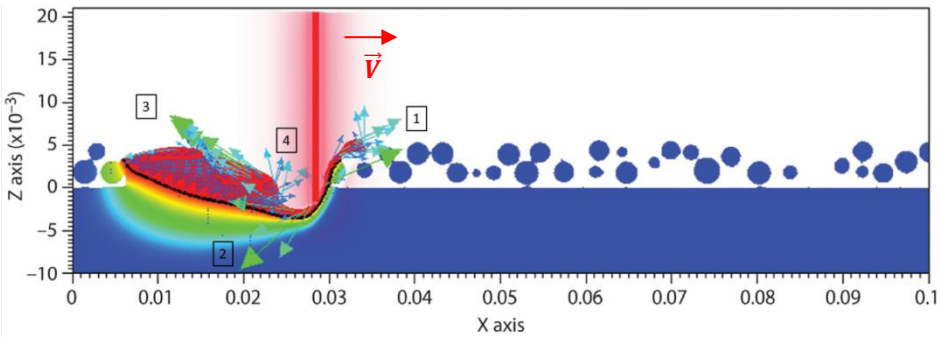


Figure I-36 : Coupe longitudinale du bain de fusion d'après (W. E. King et al. 2015)

(Scipioni Bertoli et al. 2017) ont simulé la variation de température au cours du temps d'un point fixe du lit de poudre (LDP) de 316L irradié par le passage du laser *(Figure I-37)*. La température de ce point fixe augmente rapidement puis diminue après le passage du spot laser. Les instabilités lors de la rampe de

chauffe sont probablement dues à la chaleur latente de fusion. Le point de fusion (1623–1673 K) est atteint 40 µs avant que le centre du spot laser atteigne le point fixe. Au centre de ce spot, la température du point fixe dépasse 3000 K (proche de la température d'ébullition du 316L). Les auteurs confirment cette simulation avec des acquisitions par caméra rapide qui suggèrent que la fusion des particules est provoquée par la conduction de chaleur induite par le liquide formé à travers le lit de poudre et non nécessairement par l'interaction laser-matière. Ces observations rejoignent la modélisation de (Khairallah et al. 2016) présentée en *Figure I-35*. Le faisceau laser semble donc interagir principalement avec le bain liquide.

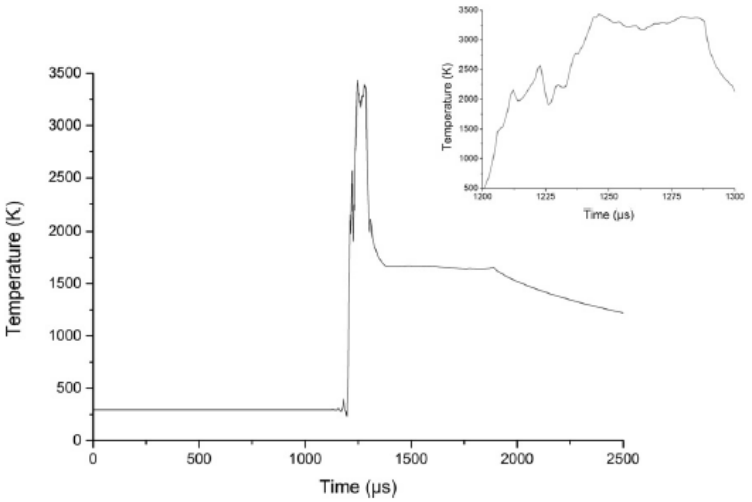


Figure I-37 : Suivi temporel par simulation de la température d'un point fixe au sein d'un lit de poudre de 316L lors du passage du faisceau laser (λ=1070 nm et Φ_L=50µm) pour P150W et V800 mm.s^{-1} selon (Scipioni Bertoli et al. 2017)

L'imagerie X permet de compléter les simulations et observations par caméra rapide. (Guo et al. 2018) ont suivi la fusion au sein du système {LDP+substrat} pour le 316L et l'AlSi10Mg. Ils visualisent en statique (sans déplacement du faisceau laser) à 312 W, la fusion du système au bout de quelques microsecondes puis la vaporisation et la formation d'une dépression au bout d'une dizaine de microsecondes, et enfin la formation d'un flux d'argon au bout de centaines de microsecondes en cas de fabrication sous atmosphère contrôlée. (Martin et al. 2019) ont observé la formation d'une dépression à partir de substrats denses en Al6061 et TA6V pour de fortes densités d'énergies correspondant au régime de keyhole (0,5 J.mm^{-1} par irradiation sous un laser Yb :YAG et $\Phi_L = 50\mu m$). Ils ont conclu que la dépression et l'ablation subséquente contribuent significativement à l'introduction d'instabilités qui conduisent notamment à la solidification de chevrons sur le dessus du cordon. On observe également le piégeage de pores au fond du capillaire. La convection de Marangoni entraine les pores dans le fond du bain liquide et les empêche de remonter à la surface, même pour des faibles profondeurs de bain. L'arrêt du laser permet d'identifier l'effondrement rapide de la dépression avec le remplissage du bain par le liquide qui se solidifie rapidement, piégeant ainsi les pores.

(Guo et al. 2018) visualisent que les éjections des particules dépendent de leur localisation par rapport au spot laser comme indiqué en *Figure I-38*. Les auteurs estiment que les particules situées autour du faisceau laser sont éjectées par la **vaporisation** du matériau (amorcée à faible temps d'interaction) et celles situées à l'arrière du faisceau par le **flux d'argon** (amorcé à fort temps d'interaction). Les vitesses des particules éjectées par le flux de vapeur sont trois fois supérieures à celles déplacées par le flux gazeux d'argon. L'accélération créée par la vaporisation est alors supérieure d'un ordre de grandeur par rapport à celle créée par le flux d'argon. Ces mêmes auteurs (Guo et al. 2018) ont alors observé l'effet combiné du **temps d'interaction** (vaporisation/flux d'argon) et de la **pression ambiante** *(Figure I-39)*. Aux faibles temps d'interaction, le régime de vaporisation provoque l'éjection de particules solides situées sur le trajet du jet de vapeur *(Figure I-39.a-b-c)*. Aux forts temps d'interaction, le flux d'argon lorsque l'atmosphère n'est pas sous vide peut provoquer en plus l'éjection de particules liquides du bain *(Figure*

I-39.d-e). Une forte pression ambiante diminue l'angle de divergence du jet de vapeur (θ_i), c'est-à-dire que la plume de vapeur se rétrécit au profit du flux d'argon environnemental. Dans ce cas, la quantité de particules solides éjectées par la vaporisation diminue tandis que la quantité d'éjectas liquides entraînés par le flux d'argon augmente. En effet, sous vide *(Figure I-39.c)*, la vapeur métallique se dilate librement et éjecte les particules selon un grand angle de divergence. S'il y a de l'argon dans l'environnement, la vapeur qui s'échappe doit s'opposer au confinement crée par la pression de l'environnement. La même conclusion est obtenue pour l'éjection de particules solides par (Matthews et al. 2016).

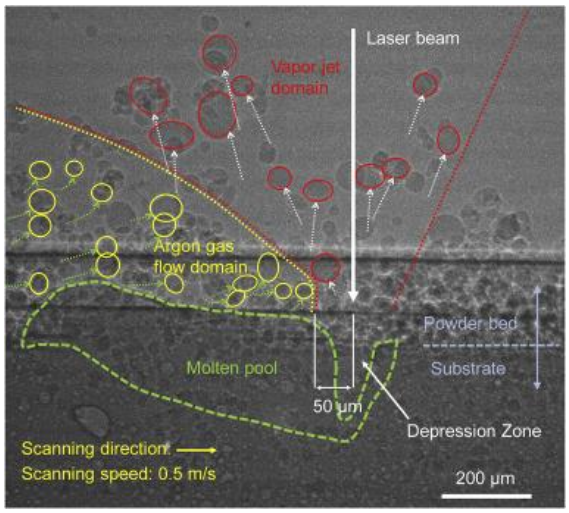


Figure I-38 : Imagerie X d'un bain de fusion en vue longitudinale avec l'identification des différentes zones d'éjections d'après (Guo et al. 2018)

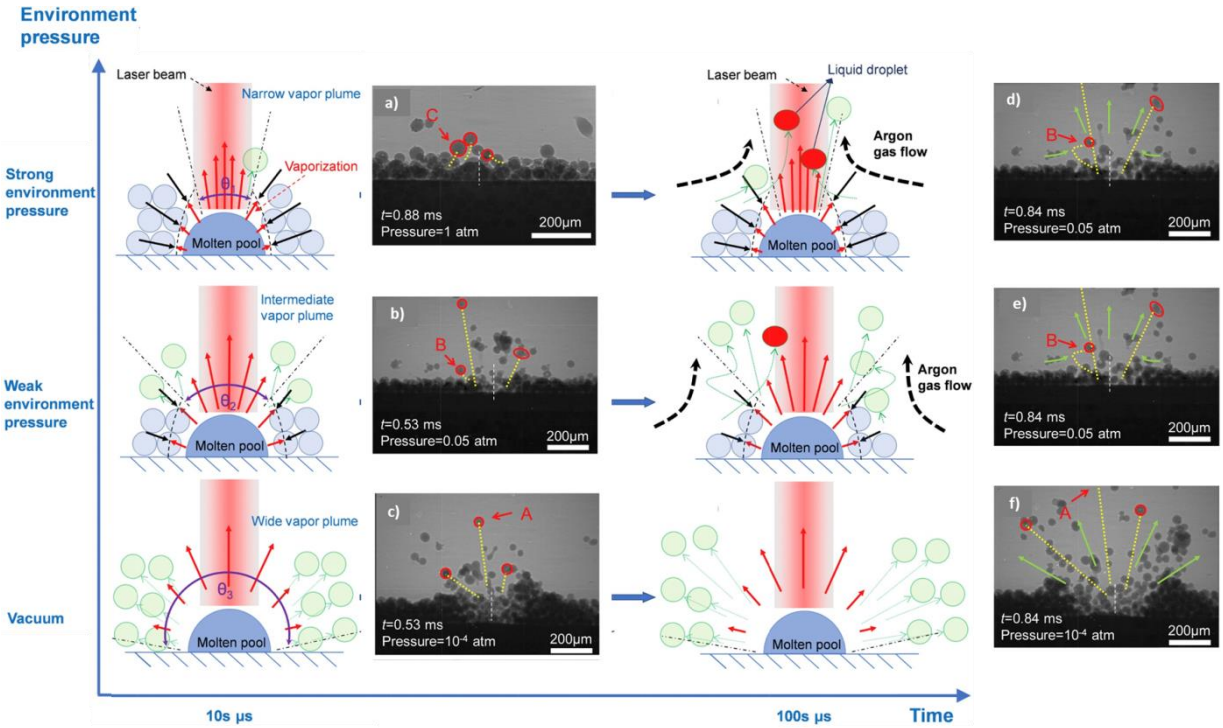
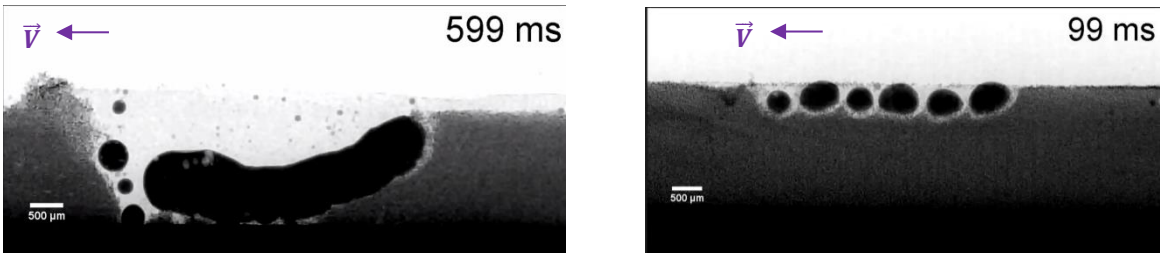


Figure I-39 : Mécanismes du mouvement des particules de poudre (schématisation et visualisation en imagerie X) en fonction de la pression ambiante (axe y) et du temps d'interaction (de la vaporisation à la formation du flux d'argon gazeux -axe x). Sur l'imagerie X, θ_i correspond aux angles de divergence de la plume de vapeur, en pointillés blancs est représentée la position du laser, en rouge le suivi des particules, en jaune les trajectoires des particules et en vert les mouvements des particules ; d'après (Guo et al. 2018)

(Leung, Marussi, Atwood, et al. 2018) ont observé à leur tour, la fusion d'un lit de poudre d'Invar 36 (alliage Fe-Ni) de forte épaisseur sans substrat sous-jacent. Suite à la toute première interaction du faisceau laser avec le lit de poudre, le bain de fusion est amorcé et voit son volume augmenter au cours du temps. Après le déplacement du faisceau laser, un nouveau bain est créé séparément. La coalescence successive de ces bains de fusion peut former un cordon continu si les conditions opératoires le permettent. En effet, il y a compétition entre la vitesse de croissance du bain et la vitesse de déplacement du laser. Lorsque la vitesse de croissance du bain est supérieure à la vitesse de balayage, ce qui est le cas aux fortes puissances et aux faibles vitesses de balayage (donc pour des temps d'interaction élevés et des fortes énergies linéiques) la taille du bain augmente ainsi que sa température maximale. Par conséquent, la tension de surface liquide-vapeur diminue et la mouillabilité augmente, favorisant la coalescence des bains et donc la formation d'un bain et cordon continu *(Figure I-40.a)*. Le même phénomène est observé pour un lit de poudre épais de 316L (Leung, Marussi, Towrie, et al. 2018). Aux faibles énergies linéiques *(Figure I-40.b)* et donc pour des puissances faibles, des vitesses de balayage rapides et des temps d'interaction courts, c'est l'effet inverse qui se produit : la vitesse de croissance du bain est inférieure à la vitesse de déplacement du laser. La tension de surface liquide-vapeur augmente et la mouillabilité diminue, ce qui tend à former un bain discontinu de type « balling ». La question qui se pose alors est de savoir s'il faut différencier le « balling » du lit de poudre suspendu au « balling » du lit de poudre déposé sur substrat. L'énergie linéique minimale pour former par fusion un cordon continu sur le lit de poudre suspendu (sans substrat) est nettement supérieure à celle nécessaire pour former un cordon continu sur un lit de poudre déposé sur substrat car la conductivité thermique effective et la mouillabilité sont plus faibles sur le lit de poudre suspendu. De plus, le substrat réfléchit une partie le rayonnement incident mais en absorbe également une autre partie, ce qui engendre une fusion partielle du substrat qui sert d'accroche.



a) b)

Figure I-40 : Imagerie X de bains de fusion au sein d'un lit de poudre suspendu d'Invar 36 à a) $E_l = 16\ J.mm^{-1}$ et b) $E_l = 1{,}6\ J.mm^{-1}$ d'après (Leung, Marussi, Atwood, et al. 2018)

Aux fortes énergies linéiques, on note également que le lit de poudre en amont se creuse et que le bain tend à s'enfoncer, contrairement aux faibles énergies linéiques. Ce résultat peut s'expliquer par l'éjection des particules de poudre en avant du front de fusion. La *Figure I-41* montre la dynamique de vaporisation du métal à la surface et en avant du bain. Cette vaporisation semble générer une pression de recalescance (réchauffe du bain lors de son refroidissement) qui produit un jet de gaz et une éjection de particules de poudre. Il se peut également que la vapeur métallique et les particules chaudes chauffent l'argon et provoquent son expansion rapide. Ce phénomène montre qu'il est difficile de construire à partir d'un lit de poudre suspendu sur lequel le bain tend à s'enfoncer, et explique les états de surface rugueux des zones de pièces en contre-dépouille.

Des éjections verticales de gouttelettes liquides sont aussi observées suivant le flux de vaporisation en avant du cordon, au niveau des bains nouvellement formés *(Figure I-42)*. Ces gouttelettes liquides peuvent également provenir de la fusion et coalescence des particules de poudre éjectées qui traversent le faisceau laser. Ces particules de poudre éjectées, fondues et coalescées peuvent également contribuer à la formation du cordon.

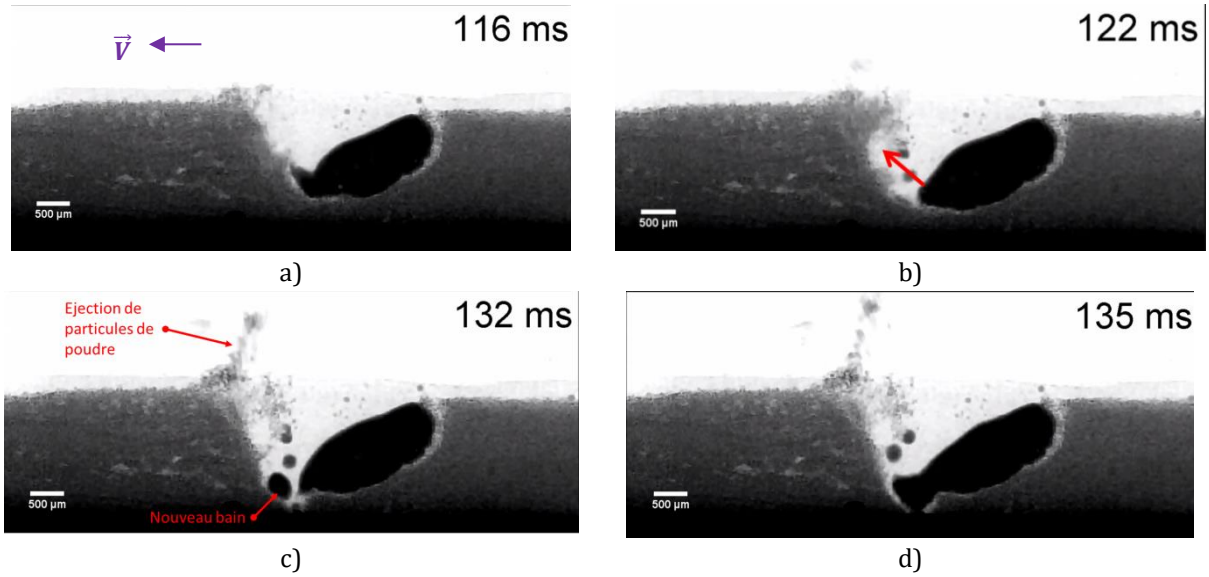


Figure I-41 : Suivi au cours du temps par imagerie X d'un bain de fusion au sein d'un lit de poudre suspendu d'Invar 36 à $E_l = 16\,J.mm^{-1}$: phénomène d'éjection de particules de poudre en avant du bain d'après (Leung, Marussi, Atwood, et al. 2018)

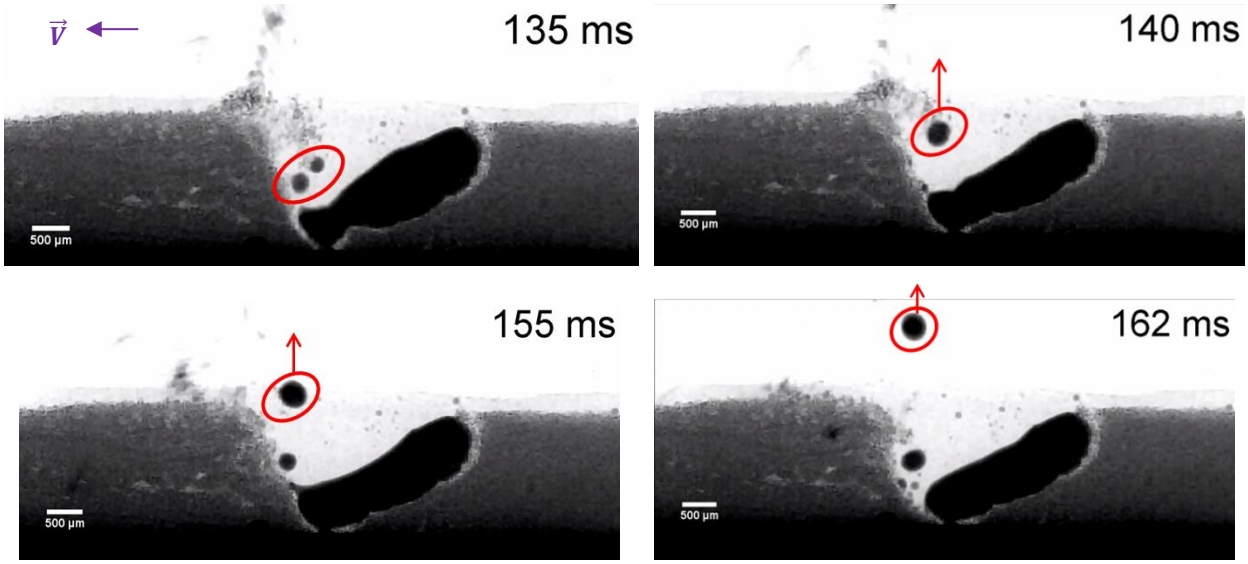


Figure I-42 : Suivi au cours du temps par imagerie X d'un bain de fusion au sein d'un lit de poudre suspendu d'Invar 36 à $E_l = 16\,J.mm^{-1}$: phénomène d'éjection de gouttelettes de liquide d'après (Leung, Marussi, Atwood, et al. 2018)

(Leung, Marussi, Towrie, et al. 2018) comparent la formation d'un bain de 316L avec celle d'un bain de silice. Dans le cas métallique pour une très forte énergie linéique ($E_l = 30\,J.mm^{-1}$), et conformément à ce qui a été décrit précédemment, la coalescence des bains successifs se fait au travers d'une plus grande mouillabilité, des mouvements de Marangoni qui forcent le liquide du bain à se déplacer vers la direction opposée au lasage (effet de la tension de surface), et des éjections de gouttelettes du bain liquide favorisées par la convection de Marangoni. Pour la silice dont la viscosité est bien supérieure à celle du métal, les bains obtenus sont le plus souvent discontinus aux énergies linéiques couramment utilisées pour les métaux. Or, la tension de surface liquide-vapeur varie avec la viscosité dynamique η qui est déterminée par les forces intermoléculaires : $\eta = \frac{16}{15}\sqrt{\frac{M_m}{TR}}\gamma_{LV}$ (Harimkar, Samant, et Dahotre 2007). A plus faible énergie linéique ($E_l = 4\,J.mm^{-1}$) c'est la forte viscosité de la silice et donc la tension de surface élevée qui entraîne le manque de coalescence des bains et qui entrave la convection de Marangoni. Il n'y a

donc pas formation d'un bain continu mais plutôt formation de ponts entre les bains sphériques. Ici, les éjections de gouttelettes liquides sont minimisées.

La formation de pores est aussi observée par (Leung, Marussi, Towrie, et al. 2018). Trois causes sont identifiées : (1) la **dissolution** de vapeurs d'eau dans le liquide suite à l'évaporation de l'humidité résiduelle adsorbée par les particules poudre ou la dissolution du gaz ambiant; (2) le **retrait à la solidification** engendrant des micro-retassures et enfin (3) les **gaz occlus insolubles** dans le solide (par exemple l'hydrogène H_2 dans les alliages d'aluminium). Dans le cas de la silice visqueuse, la migration des pores est ralentie par une convection de Marangoni plus difficile, une décomposition d'éléments volatiles à faible point de fusion, et une plus grande viscosité du liquide. Les pores tendent alors à coalescer voire même à éclater. Par ailleurs, une plus grande taille de pore est observée avec la silice par rapport au 316L.

Le couplage de la modélisation avec les observations in-situ met en évidence l'importance des paramètres procédés et matériaux qui influencent la thermique du bain et donc les mouvements convectifs dans les milieux liquides, gazeux et particulaires. L'instabilité du bain explique l'origine de certains défauts et contribue à la morphologie finale du bain. Le peu d'études menées sur les non-métaux permet de compléter par rapport aux métaux la compréhension des phénomènes qui régissent la dynamique du bain de fusion des céramiques oxydes et notamment l'impact de leur viscosité et de leur tension de surface.

I.4. Conclusion du Chapitre I

Ce premier chapitre permet de situer le LBM au sein de la famille des procédés additifs de matériaux céramiques, encore peu développés aujourd'hui par rapport aux matériaux polymères et métalliques. Il s'agit d'un procédé direct par fusion sur lit de poudre qui ouvre la porte à une série d'applications pour des pièces à forte valeur ajoutée de forme complexe à microstructure orientée. Ce procédé, combiné aux céramiques oxydes va permettre dans un futur proche une réelle rupture technologique dans les domaines aéronautique et spatial.

Cependant, la fabrication additive des céramiques oxydes par la voie liquide est ralentie par deux problématiques : la transparence de ces matériaux aux rayonnements des lasers usuellement utilisés en LBM et leur faible résistance aux chocs thermiques. D'une part, l'absorbance étant fortement liée la pureté du matériau, l'ajout d'absorbants à une poudre dite pure s'est avéré concluant dans les études précédentes. D'autre part, le développement au *Centre Des Matériaux* d'un système de chauffe coaxial par un laser dé-focalisé (ou à grand diamètre de spot) autour d'un laser de fusion (à plus petit diamètre de spot) apparaît prometteur comme voie de minimisation des gradients thermiques.

La revue de la littérature concernant les procédés de soudage, de perçage laser et de LBM avec l'association de calculs numériques multi-physiques et d'observations in-situ rendent compte des divers phénomènes à l'origine d'un bain de fusion stable, dont l'équilibre reste précaire. L'amorce de la fusion et les régimes d'interaction laser-matière (notamment la conduction et le keyhole) ont été en partie étudiés dans les procédés conventionnels pour l'alumine, mais la grande majorité des études d'interaction laser-matière par LBM concernent les matériaux métalliques. L'hydrodynamique du bain LBM ainsi que l'effet de la thermique (en amont et en aval du bain) et des propriétés thermo-physiques du matériau sont désormais mieux connus grâce aux modélisations et à l'imagerie-X. Ces moyens permettent également d'appréhender les mécanismes de formation de certains défauts liés au procédé. Cette première approche servira de guide pour les mesures optiques et pour la compréhension de l'interaction laser-matière au sein de céramiques oxydes denses et granulaires.

Il est établi que le contrôle des paramètres du procédé LBM permet d'établir un transfert de chaleur par conduction ou en mode keyhole. Le mode conduction est stable et permet un meilleur contrôle de la chaleur fournie à la pièce, il limite l'introduction de pores, de fissures et d'éjections de matière solide comme liquide. En régime keyhole, le faisceau laser incident pénètre profondément au sein d'un capillaire gazeux et est fortement absorbé par un effet de multi-réflexion du rayonnement sur les parois du capillaire.

A la fusion, il se forme un bain où les tensions de surface, la gravité et la pression hydrodynamique entrent en compétition avec la pression de recul. Il y a une région centrale située sous le faisceau laser dite de dépression qui est d'autant plus profonde qu'il y a vaporisation du matériau. La dissociation de l'alumine est alors facilement atteignable. La dépression et l'ablation subséquente contribuent significativement à l'introduction d'instabilités du bain suite à l'évaporation et l'expulsion de liquide telles que les éjections de particules solides vers l'arrière du bain. La région en amont voit le liquide entrer en contact avec les particules non fondues du lit de poudre, lesquelles commencent à fondre en avant du faisceau laser. La queue du bain se refroidit et la pression de vapeur n'est plus suffisante pour maintenir la dépression. Des poches de gaz peuvent être emprisonnées au fond du bain liquide et sont empêchées de remonter à la surface, même pour des faibles profondeurs de bain. Un flux latéral de liquide dû à l'asymétrie du refroidissement du bain est causé par les particules adjacentes partiellement fondues. Le liquide du bain peut de plus déborder et absorber les particules adjacentes au bain de fusion et créer ainsi une zone dénudée.

D'autres paramètres comme la viscosité dynamique du liquide et la pression ambiante peuvent modifier l'interaction laser-matière. La viscosité, qui est en générale supérieure pour les matériaux céramiques, joue notamment sur l'équilibre entre tension de surface liquide-vapeur et la pression de vapeur. C'est ce qui explique que pour une même énergie linéique, la fusion de la silice n'entraine pas de bains continus alors que c'est le cas pour les bains de 316L. Une forte pression environnementale mène quant à elle, à une réduction de la plume de vapeur, ce qui provoque une augmentation de la quantité d'éjectas liquide malgré une diminution de particules solides éjectées.

CHAPITRE II

CERAMIQUES OXYDES : PROPRIETES, POUDRES, SOLIDIFICATION EUTECTIQUE ET FISSURATION

Ce chapitre sera tout d'abord consacré aux propriétés cristallographiques, physico-chimiques et mécaniques des céramiques oxydes étudiées. La solidification des céramiques fondues et leurs microstructures associées seront ensuite passées en revue. Dans la mesure où les cycles de fusion et de solidification engendrés par le LBM sont rapides, il s'établit une microstructure particulière et un état de contraintes internes spécifique qu'il convient alors de bien décrire. De plus, le choix des matières premières, à savoir, les poudres et leurs mélanges avec les absorbants, est une étape primordiale pour la réussite de la fabrication des pièces en céramique. Les caractéristiques chimiques, morphologiques, optiques et granulométriques des poudres influenceront la stratégie de fabrication et les propriétés finales du matériau.

Les propriétés particulières des céramiques oxydes seront décrites dans un premier temps, dans un second temps seront présentés la caractérisation des poudres et l'influence des absorbants mélangés aux poudres céramiques de réception. La solidification eutectique classique sera étudiée et comparée à celle engendrée par le procédé LBM. Enfin, la dernière partie abordera brièvement les problèmes de fissurations rencontrées après la solidification des monocordons 1D et les solutions envisagées.

Sommaire du Chapitre II

II. CERAMIQUES OXYDES : PROPRIETES, POUDRES, SOLIDIFICATION EUTECTIQUE ET FISSURATION 60

II.1. MATERIAUX DE L'ETUDE 62

II.1.1. Les propriétés des céramiques oxydes 62

II.1.1.1. Liaisons fortes et directionnelles 62

II.1.1.2. Structure cristallographique complexe 62

II.1.1.3. Résistance mécanique à froid et fluage 63

II.1.2. L'alumine-α 65

II.1.3. La zircone 66

II.1.3.1. Cristallographie 66

II.1.3.2. Renforcement des propriétés mécaniques 67

a) Renforcement par microfissuration de la PSZ 67

b) Renforcement par transformation de phase de la TZP 68

II.1.4. Eutectique alumine-zircone 69

II.2. CARACTERISATION DES POUDRES, LITS DE POUDRE ET SUBSTRATS 69

II.2.1. Poudres céramiques de réception 69

II.2.1.1. Composition chimique 69

II.2.1.2. Morphologies et densités vraies 71

II.2.1.3. Granulométrie 71

II.2.1.4. Cristallographie 73

II.2.1.5. Lits de poudre 73

II.2.1.6. Substrats de fabrication 75

II.2.2. Ajout d'absorbant à la poudre 75

II.2.2.1. Ephémères : carbone et SiC-β 75

II.2.2.2. Mélanges céramique – métal 79

II.3. MICROSTRUCTURES 81

II.3.1. Théorie de la solidification eutectique 81

II.3.1.1. Croissance couplée et influence de la vitesse de solidification et de la composition 81

II.3.1.2. Morphologies et échelles de microstructure 84

II.3.2. Microstructures obtenues par LBM 86

II.3.2.1. Morphologies des grains au sein du monocordon 86

II.3.2.2. Finesse de la microstructure 90

II.3.2.3. Forme du bain liquide 92

II.3.2.4. Structures cristallographiques et orientations des phases 93

II.3.2.5. Relations d'orientation entre phases 97

II.3.3. Réactivité des absorbants 99

II.3.3.1. Carbone et SiC 99

II.3.3.2. Mélanges céramique-métal 102

II.4. FISSURATION 103

II.5. CONCLUSION DU CHAPITRE II 105

II.1. Matériaux de l'étude

II.1.1. Les propriétés des céramiques oxydes

Utilisées, par exemple, pour la mise en forme des matériaux coulés et tissés ainsi que dans l'industrie aéronautique et spatiale, les céramiques oxydes, de la famille des céramiques techniques, présentent un caractère réfractaire exceptionnel avec des températures de fusion très élevées *(Tableau II-1)*. Ces matériaux sont légers, intrinsèquement résistants à l'oxydation et possèdent un coefficient de dilatation thermique plus faible que les métaux. En *Annexe A* sont regroupées quelques données thermo-physiques propres aux matériaux étudiés et nécessaires à cette étude.

Tableau II-1: Propriétés de quelques céramiques et éléments métalliques

	Température de fusion (°C)	Entropie de fusion ($J.mol^{-1}.K^{-1}$)	Masse volumique (g/cm^3)	Coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}.K^{-1}$)	K_{IC} ($MPa.m^{1/2}$)
$\alpha-Al_2O_3$	2050	47,70	3,96	7,2 - 8,8	3,5
$Y_3Al_5O_{12}$(YAG)	1970	122,38	4,55	8,9	7,8-8,2
$M-ZrO_2$	2710	29,50	5,83	7,0	7-12
MgO	2852	25,80	3,60	3,60	13,5
Al	660	11,47	2,70	23,1	20
Cu	1083	9,59	8,96	16,5	
Ni	1455	10,73	8,96	13,4	
Fe	1530	8,86	7,87	11,8	

II.1.1.1. Liaisons fortes et directionnelles

Par définition, les céramiques sont des composés de type $M_iM'_{i'}X_j$ avec X = O, N, C à liaisons iono-covalentes qui sont plus fortes que les liaisons métalliques. Lorsque X=O, il s'agit de céramiques oxydes qui présentent une résistance à l'oxydation intrinsèque.
Les liaisons chimiques de type iono-covalent sont des liaisons fortes qui confèrent une grande énergie de cohésion aux céramiques oxydes. Ces matériaux ont de ce fait un point de fusion élevé, une grande inertie chimique et résistent bien à la corrosion. Ces propriétés leur assurent une durée de vie pratiquement infinie et permettent aussi dans certains cas une utilisation dans des milieux agressifs et à des températures élevées. Par exemple, à des températures supérieures à 1800°C, presque tous les matériaux fondent ou s'oxydent à l'air. Seuls quelques oxydes, comme l'alumine Al_2O_3, la magnésie MgO ou la zircone ZrO_2, peuvent alors être utilisés.

II.1.1.2. Structure cristallographique complexe

Ces matériaux possèdent des structures cristallographiques complexes induisant un ordre à longue distance. Le grenat d'oxydes, tel que le YAG, possède par exemple plus de 120 atomes par maille.
Dans les cristaux covalents, les liaisons sont très fortement directionnelles et le glissement des dislocations, qui nécessite la rupture de ces liaisons fortes est rendu très difficile. Dans le cas des cristaux ioniques, ce sont à la fois des considérations géométriques et de forces électrostatiques qui imposent les systèmes de glissement. Les dimensions des cellules unitaires étant grandes, les vecteurs de Burgers des dislocations parfaites ont une grande longueur. Ces dislocations peu mobiles, ont une énergie élevée et tendent à se dissocier en dislocations partielles afin de réduire leurs longueurs. Cependant, les déplacements de ces dislocations partielles, perturbant l'équilibre des charges dans le cristal, se trouvent freinés par des répulsions coulombiennes. L'existence de plusieurs sous réseaux identifiés en *Figure II-1* (cationique et anionique) conduit à une très grande variété de configurations de dissociations et de fautes

d'empilement qui compliquent d'autant plus le mouvement des dislocations dans ces structures cristallographiques.

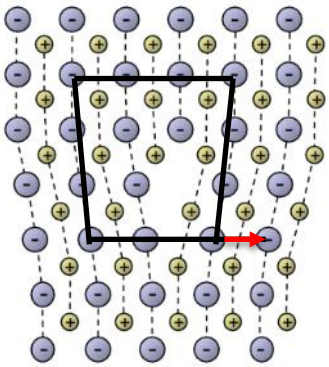


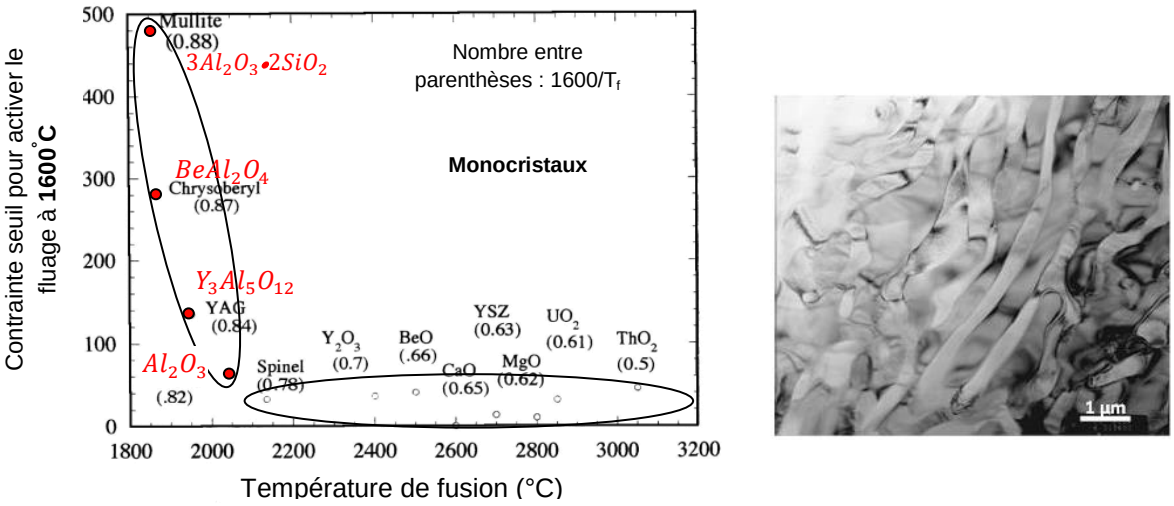
Figure II-1 : Structure complexe et vecteur de Burgers dans une céramique oxyde

II.1.1.3. Résistance mécanique à froid et fluage

En raison de la robustesse des liaisons chimiques, les céramiques possèdent une grande rigidité (module d'Young) et dureté. Sous forme polycristalline, elles présentent presque toujours des déformations à rupture très faibles (<0,1%). En contrepartie, ces matériaux sont fragiles car il est difficile de déformer la structure d'un composé dont les liaisons chimiques sont fortes et dirigées. Le glissement des dislocations est difficile et les vitesses de fluage sont faibles. En conséquence, à température ambiante, les céramiques ne possèdent pratiquement aucune plasticité et cassent avant de pouvoir se déformer. Leur mode de rupture est radicalement différent de celui d'un métal ductile. Cette fragilité peut alors entraîner une rupture brutale sous une contrainte ou lors d'un choc. En effet, la contrainte présente en fond de fissure reste toujours très élevée alors que dans un métal des zones de déformation plastique se forment en avant d'une fissure et s'opposent à sa propagation. Cette absence de relaxation de la contrainte en front de fissure indique donc qu'un défaut de taille critique peut provoquer la rupture catastrophique du matériau. Le comportement fragile des céramiques, est donc une limitation à leur emploi. Cependant, des progrès considérables ont été effectués au cours des dernières années pour augmenter la ténacité de ces matériaux, grâce notamment au soin apporté lors de leurs élaborations pour obtenir des microstructures exemptes de défauts.

Les céramiques oxydes possèdent une bonne résistance au fluage par leur haute température de fusion ainsi qu'une forte énergie d'activation pour la diffusion. Dans le cas des métaux, en général, le début du fluage s'observe à partir de $0,5\,T_{fusion}$. Dans le cas des céramiques, comme le met en évidence la *Figure II-2.a*, on ne peut plus définir la température de début de fluage en fonction de la température de fusion. Malgré des températures de fusion élevées, les structures simples de type fluorine (ThO_2, UO_2) ou halite (MgO, CaO) ont en effet les plus faibles résistances au fluage (contraintes seuils les moins élevées). A l'opposé les quatre oxydes les plus résistants au fluage (contraintes seuils les plus élevées), α–Al_2O_3, $Y_3Al_5O_{12}$, $BeAl_2O_4$ et $Al_6Si_2O_{13}$, ont les plus faibles températures de fusion. Ces oxydes possèdent une structure cristallographique complexe induisant un ordre à grande distance (Berger 2011). L'observation après fluage d'une structure eutectique constituée de deux de ces oxydes indique une très faible densité de dislocations *(Figure II-2.b)*.
Avec l'augmentation de la température, on constate la présence possible de glissements secondaires. Cette évolution est liée à la diminution des forces électrostatiques ou du caractère ionique des liaisons. Ce comportement spécifique s'explique par le nombre limité de systèmes de glissement indépendants disponibles dans les cristaux ioniques ou covalents. Pour qu'un polycristal se déforme plastiquement par glissement de dislocations, il faut que chaque grain soit capable de subir un changement de forme. Dans le cas contraire, un fluage diffusionnel est également possible par les joints sans dislocation intra-granulaire et sans déformation de grain possible. Toutefois, il peut également y avoir un fluage non accommodé par

la formation de cavités ou de fissures aux joints de grains qui bien souvent conduisent à la rupture du matériau.



a) b)

Figure II-2 : a) Contrainte seuil nécessaire pour activer le fluage à 1600°C en fonction de la température de fusion T_f des céramiques oxydes. Les structures cristallines étant anisotropes, les valeurs des contraintes indiquées correspondent aux maxima obtenus parmi les différents axes de sollicitation b) Structure lamellaire d'un eutectique Al_2O_3-YAG conservée après fluage à1500°C à 300MPa sous air d'après (Berger 2011)

Pour augmenter la résistance à la rupture à froid de ces céramiques oxydes, il convient de diminuer la taille des défauts, ce qui revient à diminuer la taille des joints de grains et des grains eux-mêmes (vers l'ordre du micron). Un autre moyen permettant de diminuer la fragilité est de concevoir des matériaux avec des microstructures semblables à celles de composites à matrice céramique renforcée par des fibres céramiques, dans lesquelles la propagation des fissures peut être bloquée ou retardée.

Une alumine polycristalline à petits grains de diamètre d possède effectivement une contrainte à la rupture à froid élevée ($\sigma_R = \frac{K_{Ic}}{Y\sqrt{\pi d}}$). A haute température la multiplication des interfaces facilite alors la diffusion et le mouvement des dislocations, ce qui induit une superplasticité (pour d < 1µm) par glissement aux joints de grains. Cette superplasticité provoque alors une diminution de la résistance au fluage (vitesse de fluage $\dot{\varepsilon} \approx \frac{\sigma^n}{d^m}$). A l'inverse, une structure à gros grains (dizaines de microns) permet donc d'améliorer la résistance au fluage par la limitation du nombre de joints de grains. La résistance à froid et la résistance au fluage apparaissent donc comme deux propriétés antagonistes. Il faut alors trouver un compromis de manière à définir une taille de grains qui permette d'augmenter la contrainte à la rupture et de réduire la taille des défauts critiques sans perdre en résistance au fluage.

Une première solution est la texturation morphologique avec un allongement des grains selon l'axe c *(Figure II-3)*. D'une part, la contrainte à la rupture et la ténacité sont maintenues élevées grâce à une taille des grains faibles perpendiculairement à la contrainte (contrôle de la taille des défauts critique) et une déflection des fissures. D'autre part les vitesses de fluage sont diminuées par l'allongement des chemins de diffusion suivant l'allongement des grains. Il n'y a alors pas ou peu de mouvements de dislocations inter-granulaires car il y a épinglement aux joints de grains et peu de mobilité intra-granulaire lié à la structure cristallographique complexe du matériau (Deleglise 2000). La deuxième solution est la texturation morphologique biphasée. Les chemins de diffusion sont allongés, les dislocations intra-granulaires peuvent être alors épinglées par les interfaces qui sont cohérentes et empêchent aussi le glissement des dislocations inter-granulaires.

Dans cette étude, nous nous intéressons au système biphasé eutectique Al_2O_3-ZrO_2 élaboré par fusion laser sélective. Ce système est constitué de l'alumine à structure complexe et devrait présenter une microstructure fine et orientée liée au procédé, ainsi que des interfaces cohérentes et donc une bonne tenue au fluage et une contrainte à la rupture importante.

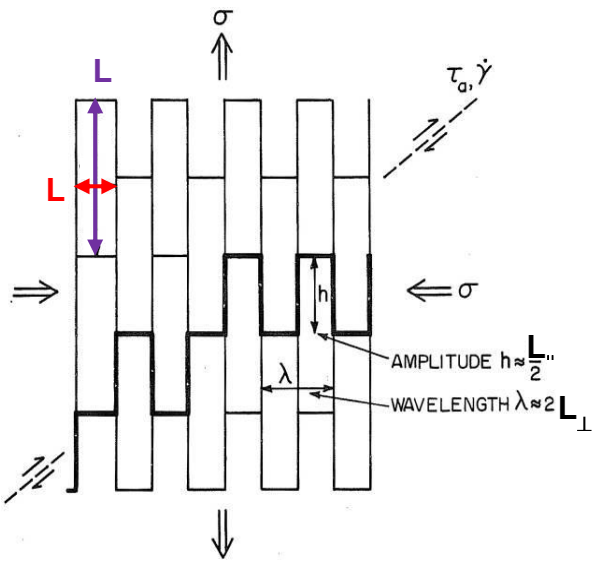


Figure II-3 : Polycristal à grains allongés sous l'application d'une contrainte de traction suivant l'axe c d'après (Raj et Ashby 1971)

II.1.2. L'alumine-α

L'alumine existe sous différents polymorphes cristallins. L'alumine α est la phase stable, elle est nommée corindon dans le cas polycristallin, et saphir dans sa version monocristalline. Elle est utilisée dans de nombreuses applications comme réfractaire, isolant ou encore abrasif. La phase α cristallise selon une structure rhomboédrique dont le groupe spatial correspondant est $R\bar{3}c$ (Rabache 2013). Le sous réseau d'oxygène décrit une structure hexagonale compacte avec un empilement séquencé ABAB *(Figure II-4)*. Les cations n'occupent alors que deux tiers des sites octaédriques, ce qui entraîne une légère distorsion de la maille hexagonale. La structure cristalline est caractérisée par les paramètres suivants : a = 4,7589 Å, c= 12,951 Å, α = β = 90° et γ = 120°.

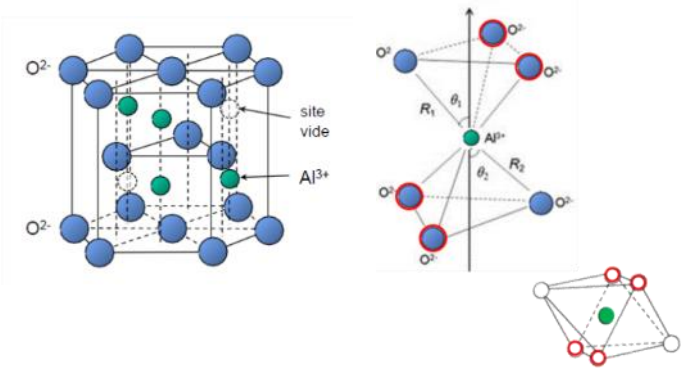


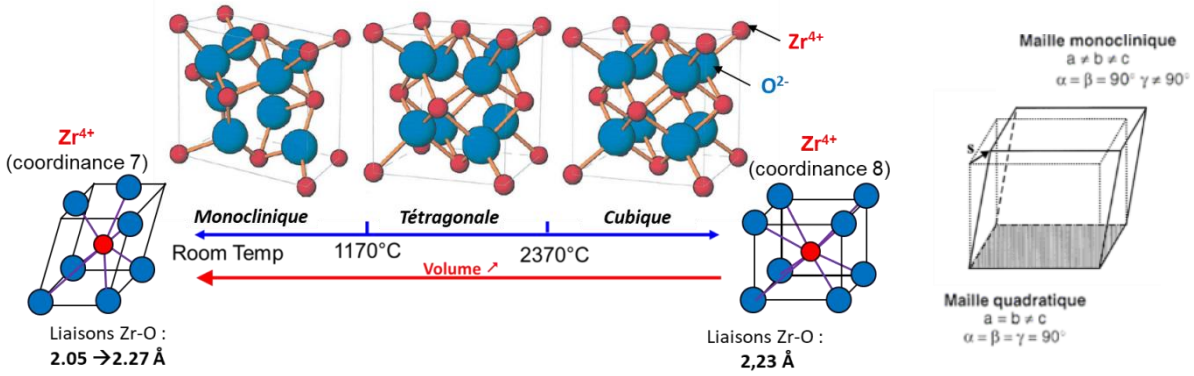
Figure II-4 : Maille primitive de la structure cristalline de l'alumine-α

Les alumines de transition possèdent des structures partiellement désordonnées, similaires à une structure spinelle déficitaire en ion aluminium pour les phases γ, θ, δ. Elles se distinguent par le mode d'arrangement des lacunes cationiques dans les sites tétraédriques et octaédriques, l'empilement compact ABCABC du sous réseau d'atomes d'oxygène évoluant peu. La phase métastable κ repose quant à elle sur un empilement d'anions d'oxygène ABACABAC (Lee et Rainforth 1994). La transition vers la phase stable se fait par un cisaillement du sous réseau oxygène.
La structure cristalline de l'alumine est fortement dépendante des conditions de température et pression. Quelle que soit la structure, une fois recuite à haute température (>1000°C) ; l'alumine évoluera définitivement vers une structure α.

II.1.3. La zircone

II.1.3.1. Cristallographie

La zircone existe sous forme de trois structures cristallographiques stabilisées en fonction de la température *(Figure II-5.a)*. A température ambiante, la zircone possède une structure cristalline monoclinique M, il s'agit de sa forme naturelle, stable jusqu'à 1170 °C. Le zirconium est alors coordonné par sept anions O^{2-}. La structure de la zircone pure est dérivée de la structure fluorine CaF_2, qui est une structure cubique C dans laquelle les ions Ca^{2+} sont coordonnés par huit ions F^- *(Figure II-5.b)*. Cependant, la faible valeur du rapport du rayon atomique des ions Zr^{4+} sur celui des ions O^{2-} fait que la structure fluorine est déformée avec un abaissement du nombre de coordination pour pouvoir être stable à température ambiante. Ceci explique pourquoi les valeurs des paramètres cristallins a, b et c de la zircone monoclinique sont relativement proches les unes des autres *(Tableau II-2)*.



a) b)

Figure II-5 : Structures cristallographiques de la zircone selon la température

Tableau II-2 : Paramètres de maille de la zircone selon la structure cristalline d'après (Moulin, Favergeon, et Béranger 2008)

	Orthorhombique	Monoclinique M	Tétragonale T	Cubique C
Paramètres de maille	a = 5,042 Å b = 5,092 Å c = 5,257 Å	a = 5,156 Å b = 5,191 Å c = 5,304 Å β=98,9°	a = b = 5,094 Å c = 5,177 Å α=β=γ=90°	a = 5,124 Å
Densité (g.cm^{-3})	6,064	5,830	6,100	6,090

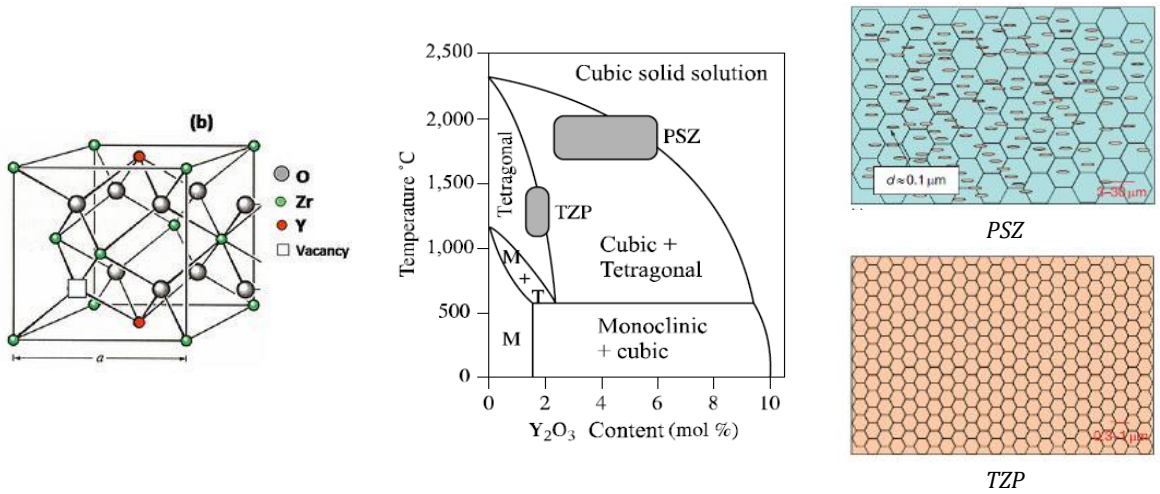
Avec la montée en température qui entraîne la dilatation thermique, la structure se relaxe partiellement et la zircone devient quadratique (T – tétragonale ou quadratique). A cette transformation de phase M→T est associée à la chauffe une contraction volumique d'environ 4,5%. La phase tétragonale est en effet plus dense que la phase monoclinique, se rapprochant ainsi de la structure fluorine CaF_2 puisque les ions Zr^{4+} se trouvent coordonnés par huit ions O^{2-}. Cependant, les positions des anions sont légèrement décalées par rapport à ce qu'elles devraient être dans une structure fluorine idéale. Au refroidissement, la transformation de phase T→M est de type martensitique sans diffusion et est accommodée par la formation de macles.
Il n'existe pas de température de transition exacte entre la forme tétragonale et cubique, elle se situe vers 2370°C. L'augmentation de volume est d'environ 6% au refroidissement entre la phase cubique et monoclinique.

L'interaction cation-anion est plus faible que dans l'alumine, ce qui réduit le module élastique par deux. Sa structure cristalline dérivée de la fluorine n'est pas complexe et elle admet des variations de stœchiométrie. Selon les techniques d'élaboration ou les dopages utilisés, de nombreux paramètres de

maille différents sont rapportés dans la littérature. Les paramètres de maille approchés des trois principales phases sont résumés dans le *Tableau II-2*. D'autres phases cristallines de la zircone peuvent également être observées dans des conditions particulières de température et pression, comme la phase orthorhombique ou la phase rhomboédrique.

Les phases tétragonale et cubique peuvent être stabilisées à température ambiante par l'ajout de dopants de type CaO, MgO, Y_2O_3, CeO et TiO_2. Ces stabilisants en solution solide peuvent agir sous forme interstitielle pour les petits ions (Mg^{2+}) ou sous forme substitutionnelle pour les ions plus volumineux (Y^{3+} ou Ce^{2+}) - *Figure II-6.a*. Des lacunes d'oxygène sont alors créées afin de respecter l'électro-neutralité de la maille, ce qui entraîne généralement une augmentation du volume de la maille du matériau puisque les répulsions interatomiques augmentent. Les compositions habituellement choisies pour le renforcement par transformation de phase et par stabilisation de la phase tétragonale avec l'oxyde d'yttrium sont *(Figure II-6.b)* :

- **PSZ (*Partially Stabilized Zirconia*) *ou 8%mol. Y_2O_3 :*** une matrice cubique stabilisée par l'addition de Y, Ca ou Mg, contenant des précipités nanométriques (de diamètre environ d=0,1 µm) de phase tétragonale ou monoclinique
- **TZP (Tetragonal Zirconia Polycristal) *ou 3%mol. Y_2O_3*** : généralement un monolithe tétragonal stabilisé par l'ajout de Y.



a) b)

Figure II-6 : a) Maille de ZrO_2 stabilisée par l'Yttrium b) Diagramme d'équilibre ZrO_2-Y_2O_3, d'après (Fornabaio 2014; Boch et Nièpce 2007)

II.1.3.2. Renforcement des propriétés mécaniques

Les mécanismes abordés dans les paragraphes suivants sont responsables des valeurs élevées de ténacité inhabituelles pour des céramiques oxydes.

a) Renforcement par microfissuration de la PSZ

Le renforcement par microfissuration opère lorsqu'une partie de la zircone présentant des grains quadratiques (ou tétragonaux) dans une matrice cubique (PSZ) subit la transformation T→M durant le refroidissement. Une microfissuration se produit alors, entourant les particules transformées. Cet état provoquera la dissipation d'énergie lorsqu'une macro-fissure importante se propagera dans le matériau, provoquée par la rupture sous contrainte de l'échantillon.
Ce phénomène est dépendant de la taille des grains et du pourcentage de stabilisant dans la zircone. Si les grains sont trop petits, la transformation T→M ne se produira pas. À l'inverse, si la taille de grain est trop

élevée, la transformation T→M se produira spontanément, ce qui n'est pas souhaitable. Aussi, pour une taille de grains intermédiaire de la zircone, l'application d'une contrainte trop élevée entrainera une transformation T→M au passage de la macro-fissure. De la même manière, si le taux d'oxyde d'yttrium est trop élevé, le renforcement par transformation de phase de la zircone sera moins efficace. La zircone présentera donc des propriétés mécaniques plus faibles que pour un taux d'Y_2O_3 moins élevé.
De plus, ce mécanisme est efficace seulement dans le cas de faibles proportions de zircone transformée de façon à ce que la transformation T→M une fois initiée ne se propage pas de grain en grain. Si la quantité de microfissures après frittage est trop importante, cela cause une diminution des propriétés mécaniques et parfois une rupture spontanée de l'échantillon.

b) Renforcement par transformation de phase de la TZP

Pour une phase tétragonale stabilisée, la transformation T→M peut être déclenchée par un apport d'énergie *(Figure II-7)*. Sous l'effet d'une contrainte appliquée, une fissure se propageant dans la zircone va engendrer en fond de fissure une concentration de contraintes. Celle-ci va provoquer la transformation T→M et, par augmentation de volume, la zircone transformée exercera des contraintes de compression qui lutteront contre la propagation de la fissure.
Ce renforcement est généralement utilisé dans le composite alumine-zircone (ZTA : Zirconia Toughened Alumina) où la zircone en proportion minoritaire est dispersée sous forme d'inclusions dans l'alumine. En effet, la zircone est classiquement ajoutée à hauteur de 5 à 20 % en masse (de préférence en dessous du seuil de percolation) dans les alumines massives. Ceci a pour but d'augmenter leur ténacité (renfort par transformation de phase, microfissuration ou déviation de fissures) et leur résistance au fluage (épinglage des dislocations aux interphases, diffusion de Zr^{4+} aux joints de grains alumine-alumine). La zircone est alors stabilisée sous forme quadratique par ajout d'yttrium. Lorsque la macro-fissure se propage profondément dans un tel composite alumine-zircone, elle est ralentie sous l'effet des contraintes de compression induites par le changement de phase T→M. La macro-fissure est alors arrêtée par les microfissures de la zircone transformée où a lieu le changement de phase. Or, le comportement de ces deux matériaux micro-fissurés en fluage sera lié : à l'absence de contraintes résiduelles pour le composite alumine-zircone et pour la zircone stabilisée, à la présence de contraintes résiduelles non attribuées au coefficient de dilatation mais à la chute brutale de la température.

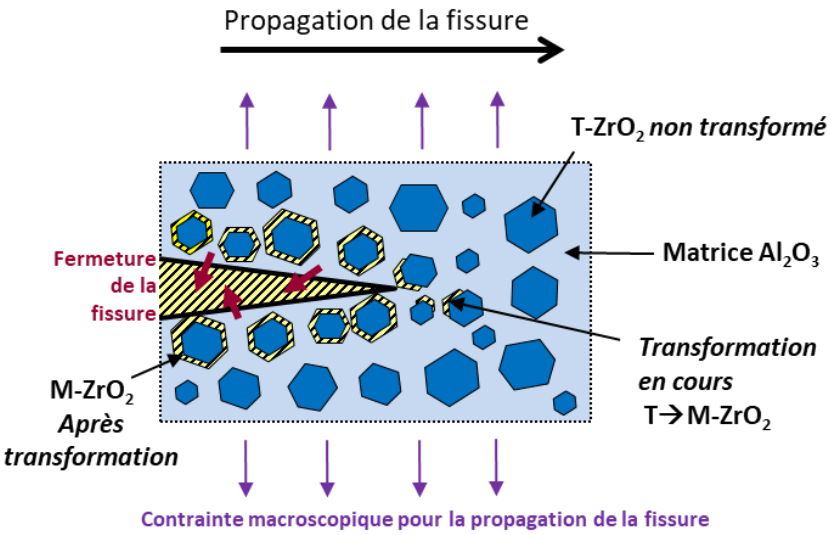


Figure II-7 : Mécanisme de renforcement du composite ZTA par transformation de phase de la zircone

II.1.4. Eutectique alumine-zircone

L'eutectique Al_2O_3-ZrO_2, largement étudié en solidification dirigée conventionnelle est obtenu à partir d'un bain liquide de composition d'environ 60% en masse d'alumine et 40% en masse de zircone (resp. 62% - 38% en mole). La solidification en ce point invariant du diagramme de phase produit une croissance coopérative des deux phases qui sont alors intimement mêlées avec des formes caractéristiques (lamelles, fibres,…) dont les largeurs sont fixées par les vitesses de solidification. Ce point est abordé plus précisément dans les paragraphes suivants.
Le diagramme binaire *(Figure II-8)* indique que l'eutectique alumine-zircone solidifie à 1860°C, température bien inférieure aux points de fusion de la zircone (2710°C) et de l'alumine (2050°C) pures. Cette diminution du point de fusion permet de limiter les gradients thermiques engendrés par le procédé LBM.

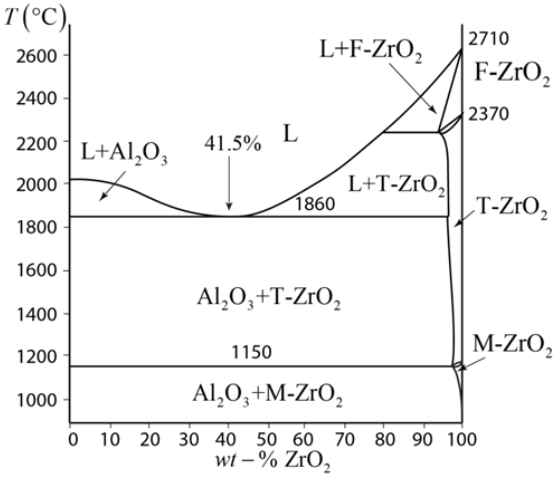


Figure II-8: Diagramme d'équilibre binaire alumine-zircone. Nomenclature : L liquide ; F- de type fluorine (cubique) ; T- tétragonale ; M-monoclinique

II.2. Caractérisation des poudres, lits de poudre et substrats

Les poudres constituent la matière première du procédé. Leur échauffement va amorcer la fusion, entretenir le bain et influencer les propriétés de la pièce finale. La taille, la morphologie, la chimie, la structure et l'empilement des particules de poudre influencent l'interaction laser-matière et les retraits lors de la consolidation. Il est alors impératif de procéder à la caractérisation initiale de ces propriétés. Par ailleurs, il est important de suivre l'impact sur ces propriétés lors de l'ajout des absorbants (carbone, SiC-β et Inconel 625). Les différentes poudres sélectionnées pour l'étude ont été caractérisées suivant leur morphologie, composition, granulométrie, densité vraie et structure cristallographique. Les caractéristiques des lits de poudre ont aussi été identifiées : densités versée, tapée et densité réelle obtenue lors de la mise en couche sur la machine de fabrication additive. Par la suite, les mélanges des poudres céramiques avec les absorbants ont été étudiés et une comparaison a été effectuée sur les différents substrats de fabrication.

II.2.1. Poudres céramiques de réception

II.2.1.1. Composition chimique

L'étude s'est reposée sur différents lots de poudres à compositions, tailles et morphologies différentes *(Tableau II-3)*. On distingue les poudres « monophasées » d'alumine et de zircone yttriée (*HC.Starck*),

l'eutectique alumine-zircone (*HC.Starck*), les poudres ATZ (*Alumina Toughened Zirconia*) et ZTA (*Zirconia Toughened Alumina*) qui sont des mélanges d'alumine et de zircone de composition non eutectique, et enfin le mélange « ZTA-25-BA+ATZ-BA » constitué de l'alumine-zircone de composition eutectique. Il s'agit d'un mélange de 72,7% de ZTA-25-BA et 27,3% de ATZ-2,5YSZ-BA (YSZ : zircone stabilisée à l'yttrine).

Tableau II-3: Composition chimique (pourcentage massique) des différents lots de poudres (données fournisseur)

Lots de poudres		Al_2O_3	ZrO_2	Y_2O_3	HfO_2	Autres (ppm)
HC.Starck – Broyées	Al_2O_3	>99,55				SiO_2, Fe_2O_3, Na_2O
	Al_2O_3-ZrO_2 *eutectique*	>36,75-40,75	38-42			SiO_2, Fe_2O_3, TiO_2
	ZrO_2 Yttriée	<0,6	93	6-8	0,2-2,5	SiO_2, Fe_2O_3, TiO_2
Nanoe - Granules	ATZ-2,5YSZ	20	73 ,11	4,09	2,73	MgO, Na_2O, SiO_2, K_2O, CaO, Fe_2O_3
	ATZ-2,5YSZ-BA	Idem dont 2% liant (acide carbonique)				
	ZTA-25-3Y *2 granulométries différentes*	74,9	22,8	1,27	0,85	MgO, Na_2O, SiO_2, K_2O, CaO, Fe_2O_3
	ZTA-25-BA	Idem dont 2% liant (acide carbonique)				
	ZTA+ATZ *(mélange eutectique)*	59,91	36,52	2,04	2,22	MgO, Na_2O, SiO_2, K_2O, CaO, Fe_2O_3

L'analyse ICP (*Inductively Coupled Plasma* - *Tableau II-4*) permet de mettre en évidence la présence d'éléments additionnels particulièrement dans les mélanges de composition eutectique. Pour l'eutectique *HC. Starck*, on relève des teneurs non négligeables en Hf, Fe et C (environ 0,1% mass.), et également un peu de Nb, Si et Ca. Effectivement, le prélèvement d'impuretés (de couleur noire) dans le mélange céramique (blanc) et l'observation au MEB (*microscope électronique à balayage*) couplé à une analyse EDS (*energy dispersive spectroscopy*) indiquent qu'il s'agit de grains de carbone *(Figure II-9)*. Pour l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2 de *Nanoe*, le taux de carbone est relativement élevé (environ 1,6% mass.) et les teneurs en Hf et Ca sont non négligeables. Ce taux de carbone élevé est lié à la présence d'acide carbonique dans le mélange *Nanoe*.

Tableau II-4 : Composition chimique (pourcentage massique) analysée par ICP

Lots de poudres	Y	C	Hf	Si	Fe	Autres	
Al_2O_3 *HC. Starck*	-	< 0,005	-	0,066 Hétérogène (0,026-0,091)	0,052 Hétérogène (0,043-0,1)	**Na : 0,085**	
Al_2O_3-ZrO_2 *HC. Starck*	< 0,005	**0,11**	**0,45**	**0,092**	**0,12** Hétérogène (0,089-0,16)	**Nb : 0,096** **Ca : 0,095** Na : 0,029	Cr : 0,027 Mg : 0,042
ATZ/ZTA Al_2O_3-ZrO_2 *Nanoe*	< 0,005	**1,6**	**0,48**	0,024	0,037 Hétérogène (0,029-0,051)	**Mg : 0,13** Na < 0,005 Nb < 0,005	Ca < 0,005 Cr < 0,005

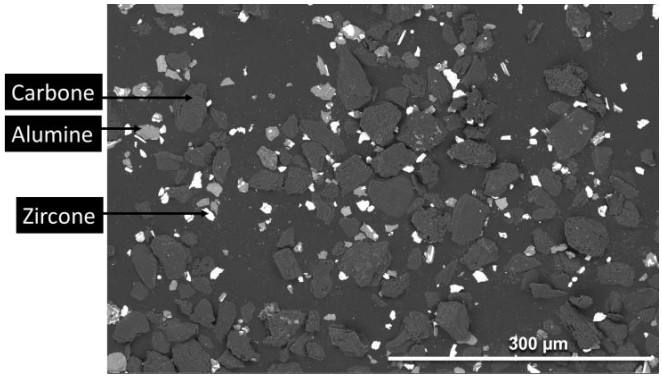


Figure II-9 : Impuretés prélevées dans la poudre Al_2O_3-ZrO_2 HC. Starck (contraste chimique)

II.2.1.2. Morphologies et densités vraies

On distingue d'une part les poudres fournies par *HC.Starck*, broyées et utilisées principalement pour former les lits de poudre et d'autre part les poudres de *Nanoe*, sous forme de granules réservées majoritairement à la fabrication de substrats dans le cas de cette thèse *(Figure II-10)*.

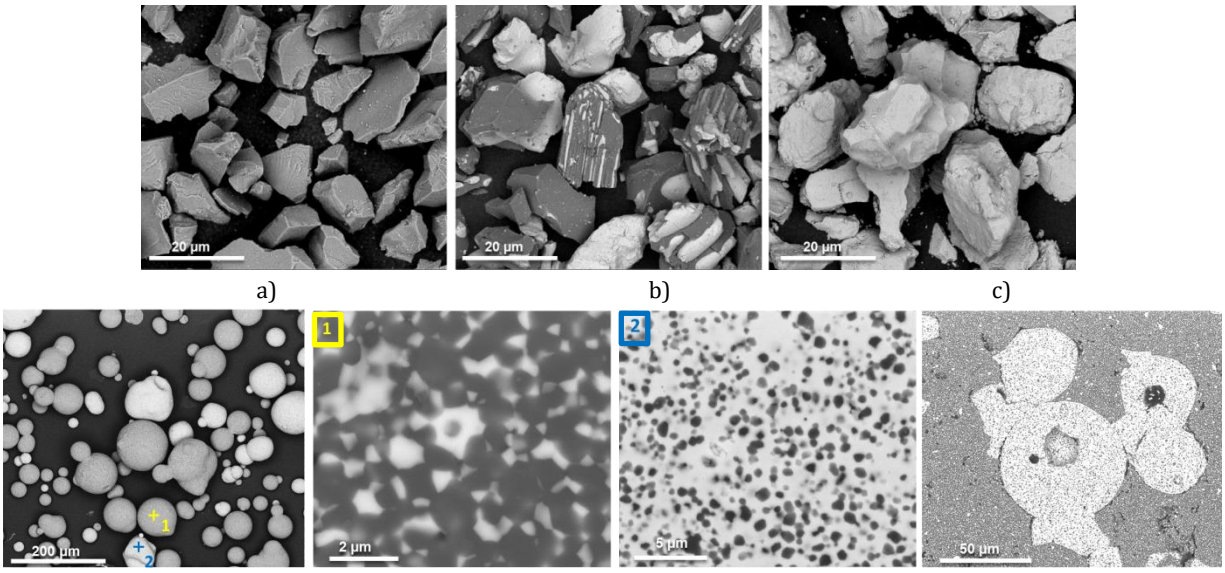


Figure II-10 : Morphologies des différents lots de poudres HC.Starck a) Al_2O_3 b) 60/40 Al_2O_3-ZrO_2 c) ZrO_2 ; Nanoe d) 60/40 Al_2O_3-ZrO_2 (mélange ATZ+ZTA) e) grandissement de la ZTA f) grandissement de l'ATZ g) coupe du substrat dense d'Al_2O_3-ZrO_2 eutectique

Les poudres broyées sont anguleuses *(Figure II-10.a-c)* et, dans le cas du mélange eutectique, nous retrouvons des grains de poudres biphasées mais également des grains monophasés, ce qui pourra engendrer *a posteriori* des hétérogénéités chimiques lors de la fusion. Le cas idéalement homogène réside dans la fusion de grains à composition eutectique plutôt que dans la fusion d'un mélange grossier de particules monophasées. Les poudres atomisées présentent des défauts (satellites, agglomérats, …) et lors de l'analyse en coupe leur porosité intra-particulaire est mise en évidence *(Figure II-10.g)*. En effet, les mesures de densité vraie au pycnomètre à hélium montrent que les poudres broyées ont une porosité intra-particulaire très faible (<1%) tandis que les granules, obtenues par atomisation-séchage présenteront une porosité supérieure *(Tableau II-5)*.

Tableau II-5 : Densités théoriques calculées et densités vraies mesurées au pycnomètre à hélium

	Al_2O_3	Al_2O_3- ZrO_2	ZrO_2-Y_2O_3	ATZ	ATZ-BA	ZTA	ZTA-BA	ZTA-BA+ATZ-BA
Densité théorique	3,96	4,55	5,92	5,45	<5,45	4,34	<4,28	3,50 < –< 4,42
Densité vraie	3,93 ±0,03	4,55 ±0,04	5,90 ±0,04	4,86 ±0,09	4,52 ±0,05	4,10 ±0,08	3,73 ±0,07	3,94 ±0,07
Porosité intra-particulaire (%)	0,81	≈0	0,32	10,93	<19,66	5,52	<14,82	< 12,85

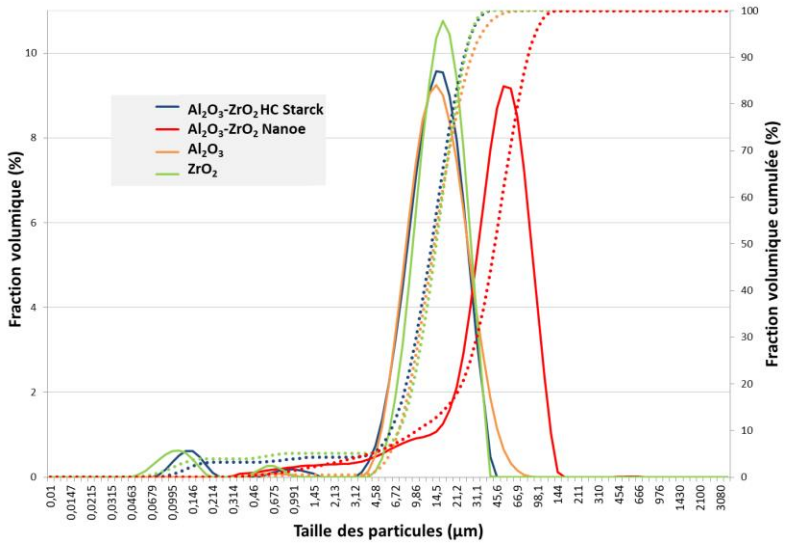
II.2.1.3. Granulométrie

Le procédé LBM requiert une utilisation de poudres fines, de diamètre compris entre 5 et 30 µm habituellement, ce qui permet de construire des épaisseurs de couche fines de l'ordre de 30–50 µm. Si cette hauteur est trop grande comparée à la hauteur de couche consolidée (Δz_{piston}), la refusion peut-être partielle ou inexistante, ce qui entraine un mauvais ancrage de la couche sur le substrat.

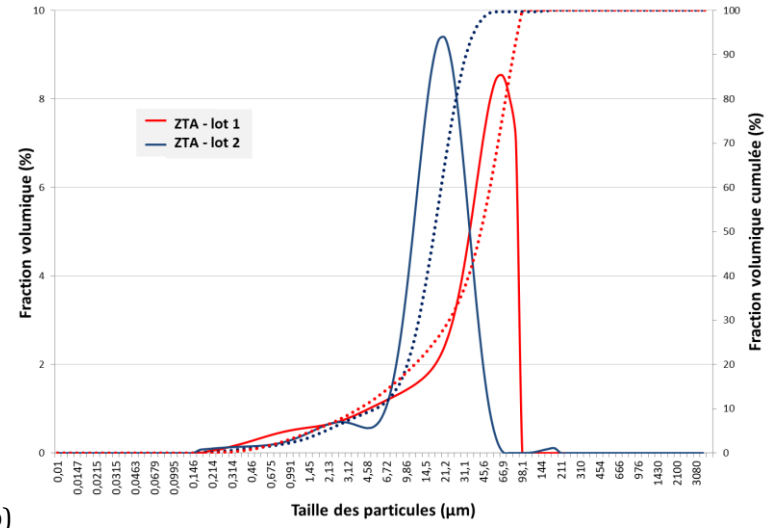
On définit communément trois valeurs pour quantifier une distribution en taille de particules, à savoir d_{10}, d_{50} et d_{90}, correspondant aux diamètres équivalents pour lesquels respectivement 10 %, 50 % et 90 % en volume cumulé de particules analysées présentent un diamètre inférieur à d_{10}, d_{50} et d_{90}. D'après les analyses granulométriques *(Tableau II-6)*, les poudres broyées possèdent une granulométrie fine, adaptée à la fabrication par LBM avec un diamètre moyen d'environ 15 µm. Les poudres *Nanoe* ont une taille moyenne nettement supérieure aux poudres *HC.Starck*. Elles ont été choisies pour l'élaboration des substrats et non pour la mise en couche. On note que les distributions granulométriques présentent quelques grains de faible taille, ce qui peut être bénéfique pour diminuer la porosité au sein du lit de poudre (LDP) car ces petits grains peuvent s'insérer entre les gros grains. Au sein des poudres, les tailles évoluent de manière croissante entre l'alumine, l'eutectique et la zircone. Ceci est parfaitement vérifié sur les clichés MEB en *Figure II-10*.

Tableau II-6 : Résultats de l'analyse granulométrique sur Malvern Mastersizer 3000

	Al_2O_3	Al_2O_3- ZrO_2	ZrO_2	ZTA-BA+ATZ-BA	ZTA lot 1	ZTA lot 2
Dv10 (µm)	8,09	7,88	8,10	11,40	6,14	3,90
Dv50(µm)	**15,8**	**15,5**	**16,4**	**49,8**	**19,47**	**43,05**
Dv90 (µm)	32,0	27,8	28,3	92,8	36,7	82,4
Span (largeur de distribution)	1,52	1,28	1,23	1,63	1,57	1,82



a)



b)

Figure II-11 : Répartition granulométriques des poudres a) de nature différente b) ZTA de taille moyenne différente

Les poudres ZTA lot 1 (*ZTA50*) et lot 2 (*ZTA20*) de composition similaire mais de taille différente (Figure II-11) seront utilisées pour mettre en évidence l'effet de la taille des particules sur l'interaction laser-matière *(Chapitre V)*.

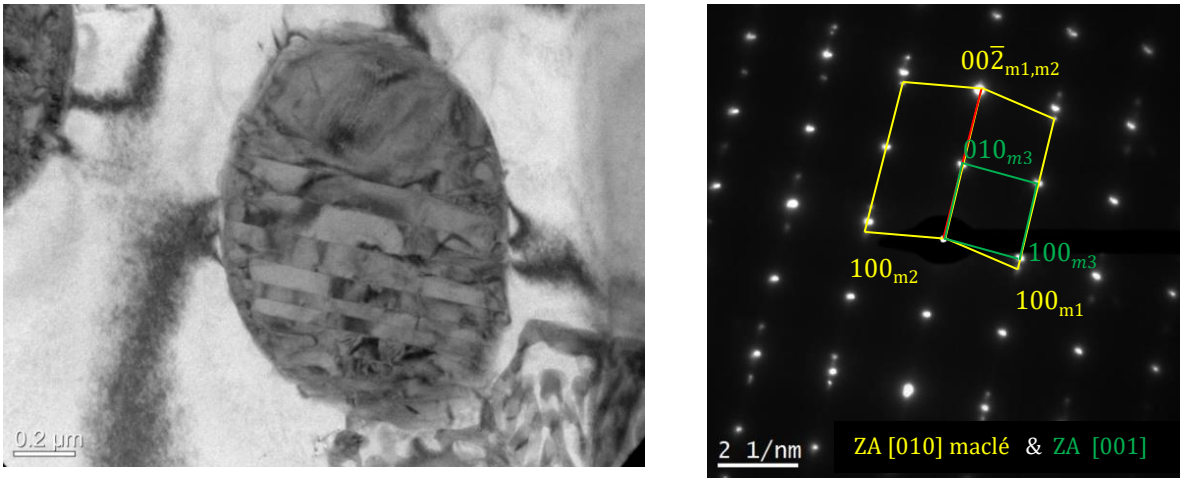
II.2.1.4. Cristallographie

Des analyses par diffraction des rayons X (DRX) ont été réalisées sur les poudres eutectiques Al_2O_3-ZrO_2 *HC.Starck* et *Nanoe* *(Tableau II-7)*. Le lot *HC.Starck* ne contient pas de stabilisants d'une part et d'autre part, il ne présente pas une trempe suffisamment élevée des particules, ce qui ne permet pas en principe la stabilisation de la zircone tétragonale T-ZrO_2. Les poudres *Nanoe* présentent une faible proportion de zircone tétragonale, ce qui semble cohérent avec la composition chimique annoncée par le fournisseur puisque le lot {ZTA+ATZ} contient environ 2% en masse d'oxyde d'yttrium *(Tableau II-3)*. Toutefois, ces résultats sont en désaccord avec les analyses ICP qui n'ont pratiquement pas révélé d'yttrium, ce qui indique la très faible quantité de ce dernier *(Tableau II-4)*.

Tableau II-7 : Résultats de l'analyse DRX (anticathode de Cuivre) sur les poudres à composition eutectique

%m.	α- Al_2O_3	M- ZrO_2	Y-TZP (T-ZrO_2)
Al_2O_3-ZrO_2 HC.Starck	60	40	-
Al_2O_3-ZrO_2 Nanoe	58	38	4

La présence de zircone monoclinique est confirmée par l'observation au MET (*Microscope Electronique en Transmission*) d'une particule de poudre eutectique – *Figure II-12*. Les macles observables sont le résultat de l'accommodation de la variation de volume lors de la trempe T→M.



a) b)

Figure II-12 : Observation MET d'une fibre de zircone a) contraste de diffraction champ clair b) cliché de diffraction avec les indications des plans et axes de zones ZA

II.2.1.5. Lits de poudre

Pour les procédés mettant en jeu un lit de poudre, la densité relative de ce dernier doit être connue pour estimer le retrait après fusion. La densité relative $d_{relative}$ est reliée au taux de porosité Pt du lit de poudre :

$$(1 - Pt) = d_{relative} = \frac{d_{apparente}}{d_{thérorique}}$$

Habituellement, un lit de poudre est caractérisé par sa densité relative qui est encadrée par les valeurs des densités versée et tapée mesurées selon la norme *ASTM B703-10* et *ASTM B527-06.* Dans le cas de poudres broyées, il ne suffit pas d'encadrer cette valeur, une évaluation de la densité du lit de poudre sur machine est nécessaire. Les mesures de la densité réelle du lit de poudre sur machine montrent qu'elle est plus proche de la valeur de la densité versée *(Figure II-13 et Figure II-14)* et ceci, quel que soit le nombre de couches déposées. Les poudres broyées de *HC.Starck* destinées à être utilisées pour les lits de poudre présentent une densité relative de 45% pour l'Al_2O_3-ZrO_2 et de 40% pour l'Al_2O_3. Ces faibles densités relatives du lit de poudre seront responsables d'un retrait conséquent lors de leur consolidation *(Chapitre VI)*.

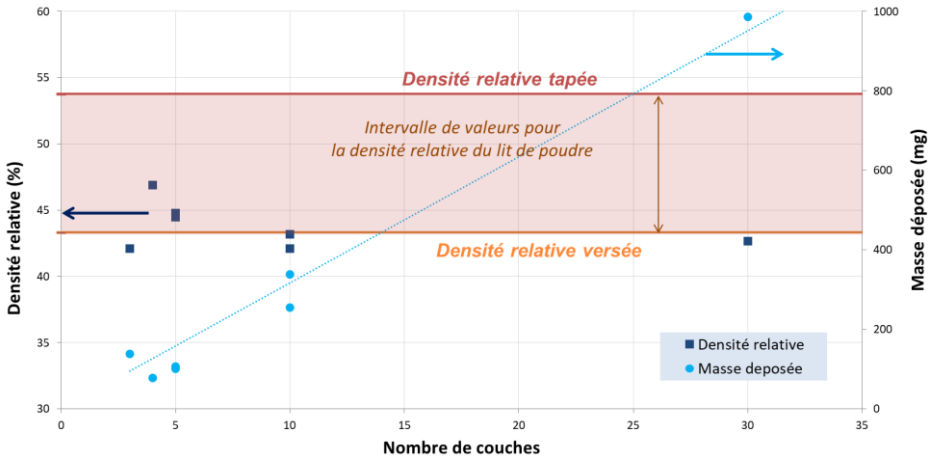


Figure II-13: Densité relative et masse réelles du lit de poudre déposée par la machine de fabrication PM100T pour différents nombres de couches d'Al_2O_3-ZrO_2

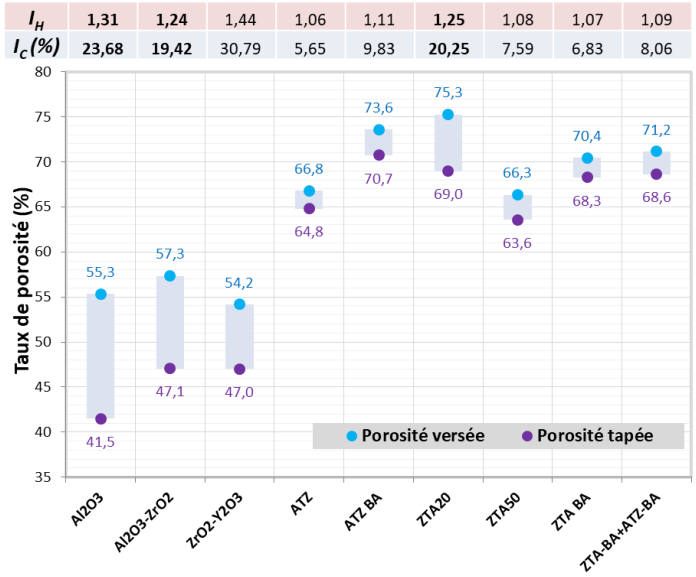


Figure II-14 : Résultats des mesures des taux de porosité tapée et versée

Dans le cas des poudres *Nanoe*, les densités tapées et versées sont inférieures (et donc les taux de porosité supérieurs) aux valeurs des poudres *HC.Starck (Figure II-14)*. Cela s'explique par la différence de morphologie et de distribution granulométrique. En effet, les poudres de *HC.Starck* sont issues de la voie coulée puis broyée alors que les poudres de *Nanoe* sont issues d'une granulation par atomisation à basse température d'une barbotine (spray-drying). Ces dernières se caractérisent par une morphologie sphérique et une porosité intra-particulaire importante. Deux indices, celui d'Hausner (I_H) et de Carr (I_c) quantifient la capacité d'une poudre à se densifier par tassement et rendent alors compte de l'état de friction entre les particules. On définit :

$$I_H = \frac{d_{tapée}}{d_{versée}} \quad \text{et} \quad I_c = 100.(1 - \frac{1}{I_H})$$

Pour un étalement correct du lit de poudre, la poudre doit s'étaler sans pour autant glisser. L'indice de Carr I_c doit alors être compris entre 18 et 22% - voire entre 15 et 25% (soit 1,18< I_H<1,33 : la poudre est alors cohésive et compressible ; en deçà, la poudre est peu compressible et peu cohésive). En dessous de ces valeurs, la poudre glisse facilement à la manière du sable et au-dessus, elle reste sous forme d'amas et s'écoule difficilement, comme la farine. Les poudres broyées de l'étude sont donc celles qui présentent la meilleure coulabilité adaptée au procédé.

II.2.1.6. Substrats de fabrication

Le substrat dense d'alumine est fourni par la *Société des Céramiques Technique* (*SCT*) est possède une pureté supérieure à 99,7% *(Figure II-15.a)*. Le substrat dense alumine-zircone (AZ) est mis en forme par pressage isostatique à chaud, à partir du lot de poudre de composition eutectique de *Nanoe* ATZ-BA+ZTA-BA. Ces substrats présentent une microstructure relativement hétérogène vis-à-vis du rayonnement laser dont le diamètre est de 70 µm *(Figure II-15.b)*. Les compacts de poudre sont réalisés par pressage uniaxial (entre 500 et 800 MPa) à partir de poudres *HC.Starck*. Bien que poreux, ces compacts pressés ont une microstructure relativement homogène comparée à la taille de la zone d'interaction laser-matière *(Figure II-15.c)*. Enfin, la microstructure des compacts frittés 24h à 1700°C sous air à partir des compacts pressés, représente un cas intermédiaire au niveau de l'homogénéité chimique mais présente une porosité moindre comparée à celle du compact pressé *(Figure II-15.d)*.

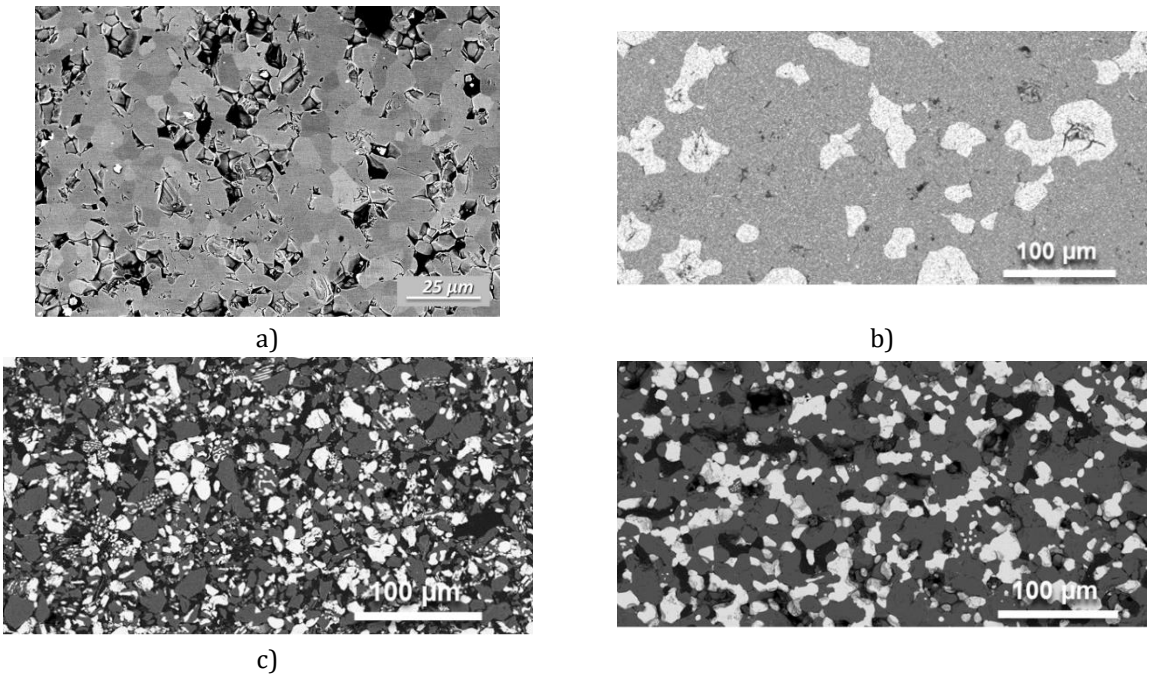


Figure II-15 : Clichés MEB des différents supports de fabrication a)alumine dense b) AZ dense c) compact pressé (sous 640 MPa) c) compact fritté (24h-1700°C sous air)

II.2.2. Ajout d'absorbant à la poudre

II.2.2.1. Ephémères : carbone et SiC-β

La machine de fabrication utilisée pour l'étude (*Phenix Systems PM100T*) est équipée d'un laser Yb:YAG et comme mentionné précédemment, les céramiques oxydes sont quasi-transparentes à ce rayonnement. Le

choix a été fait d'additionner en faible quantité un absorbant à la poudre céramique de manière à ce que ce dernier absorbe le rayonnement laser et le transmette idéalement par conduction et rayonnement à la poudre céramique. Les absorbants sélectionnés sont le carbone et le SiC-β pour leur forte absorption et leur quasi-disparition après passage du faisceau laser dans une atmosphère de travail oxydante. L'efficacité de ces absorbants est en partie liée à leur capacité à retransmettre l'énergie reçue par rayonnement sous forme de chaleur, à la manière d'un corps noir. L'effet bénéfique du carbone en faible teneur ayant déjà été mis en évidence dans la thèse de (Shaker 2017), nous choisissons des teneurs en absorbant ne dépassant pas 2% en masse.

Le carbone possède l'avantage de brûler au moins partiellement sous air sous l'impact du rayonnement laser. La fabrication pouvant être aussi réalisée sous argon, la combustion du carbone devrait être alors limitée. Toutefois, les impuretés présentes dans les poudres industrielles exacerbent leur absorbance tout en impactant les propriétés mécaniques du matériau consolidé par la formation de phases indésirables. A ce propos, le SiC-β devrait persister partiellement malgré l'impact du laser sous air. Il conviendra alors d'investiguer son effet sur la microstructure et les propriétés mécaniques.
Les absorbants éphémères choisis sont de taille nettement inférieure à celle des poudres afin de maximiser l'homogénéité du mélange. Le SiC-β provient de chez *HC.Starck* avec un $d_{50} \approx 0{,}5\ \mu m$. Le mélange poudre-absorbant est réalisé par voie liquide. Les particules céramiques sont dispersées dans une encre préparée au préalable (dispersions du noir de carbone et du SiC-β nanométrique dans l'eau avec ajout de dispersants) puis le mélange est chauffé et l'eau évaporée. Le protocole complet est décrit dans la thèse de (Shaker 2017). Les poudres sont ensuite étuvées pour un séchage complet et enfin tamisées à travers un tamis de 32 µm (taille de la maille passante) afin de détruire et/ou filtrer les agglomérats.

L'alumine monophasée, de bonne pureté permettra l'étude précise de la nature et teneur en absorbant (carbone/SiC) comme décrit en *Tableau II-8*. L'alumine-zircone, contenant des contaminations absorbantes montrera un effet négatif à l'ajout supplémentaire d'absorbant *(Chapitre VI)* et sera principalement utilisée brute de réception *i.e.,* sans ajout supplémentaire d'absorbant pour l'étude optique *(Chapitre IV)* et la construction 3D *(Chapitre VI)*. D'autres mélanges {alumine + carbone} fournis par l'Ecole des Mines de Saint-Etienne (*EMSE*) seront investigués : il s'agit de poudres contenant intrinsèquement du carbone en faible quantité. Ce carbone est issu du déliantage d'un polymère avec la dégradation des fonctions alcools sur les chaines carbonées. Deux lots de poudres seront étudiés à 2 et 4 % massique de liant. Cette technique d'élaboration permet de distribuer la carbone de manière plus homogène.

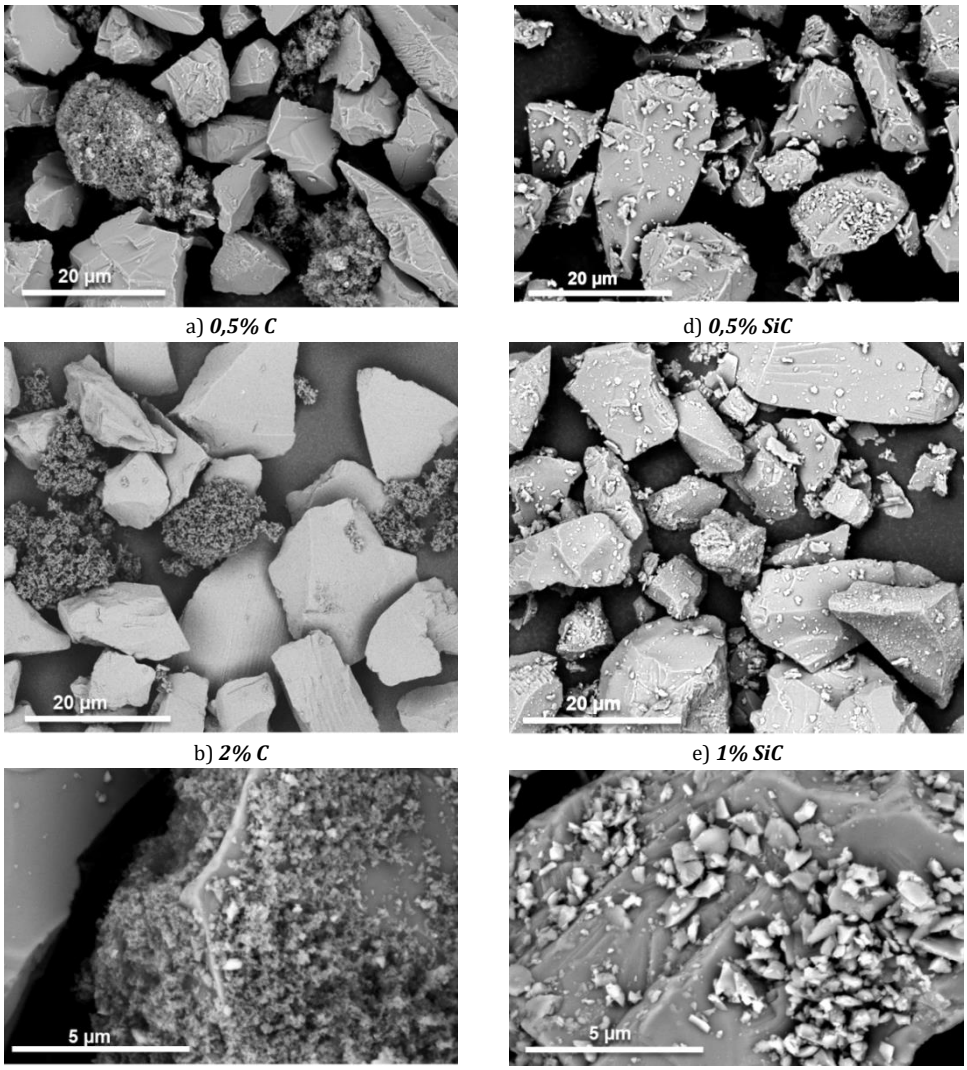
Tableau II-8 : Liste des mélanges céramique + absorbant éphémère (% massique)

	Carbone (Alfa Aesar)				SiC-β (HC.Starck)		
Al_2O_3	0,1	0,5	1	2	0,1	0,5	1
Al_2O_3 EMSE	2 % liant	4% liant	-	-	-	-	-
Al_2O_3-ZrO_2	-	0,5	1	2	-	-	-

Les observations des mélanges poudres-absorbants au MEB et leur analyse par granulométrie optique indiquent que le mélange avec le carbone est hétérogène. On observe des particules d'alumine entièrement recouvertes de carbone, d'autres partiellement recouvertes et d'autres dénudées d'absorbant *(Figure II-16.a-c)*, ainsi que des agrégats de carbone isolés. La conséquence de ce mélange hétérogène est un élargissement du span, c'est-à-dire de la largeur de la distribution granulométrique *(Figure II-18)* avec l'augmentation de la teneur en carbone.

Une solution d'homogénéisation du mélange consiste à faire varier le pH de la solution *(Figure II-17)* : il semblerait qu'un pH acide permette une meilleure adsorption du carbone à la surface de l'alumine (toutes les particules sont partiellement recouvertes) par rapport au pH neutre utilisé habituellement. Une étude plus précise visant à améliorer le processus de mélange par voie liquide devra donc prendre en compte les

charges de surface et le point de charge nulle. Une autre solution pour rendre l'interaction laser-matière plus homogène, serait l'enrobage des particules. (Faure, 2004) montre en effet qu'un enrobage des particules d'alumine par de l'hydroxyde de fer FeOOH permet une meilleure répartition de l'énergie absorbée car chaque grain a un indice d'extinction identique, contrairement au mélange de particules d'alumine et d'oxyde de fer Fe_2O_3.



a) ***0,5% C*** d) ***0,5% SiC***

b) ***2% C*** e) ***1% SiC***

c) f)

Figure II-16 : Clichés MEB du mélange poudre-absorbant pour différentes teneurs (% massique) en absorbant a- c) alumine + carbone d-f) alumine + SiC

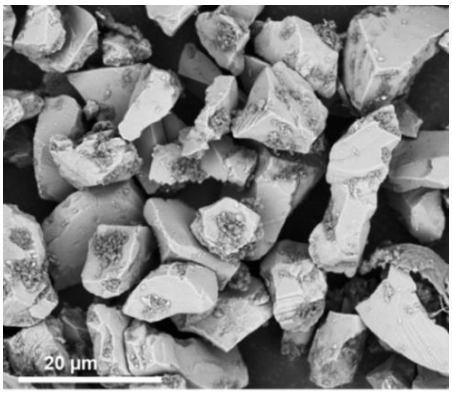
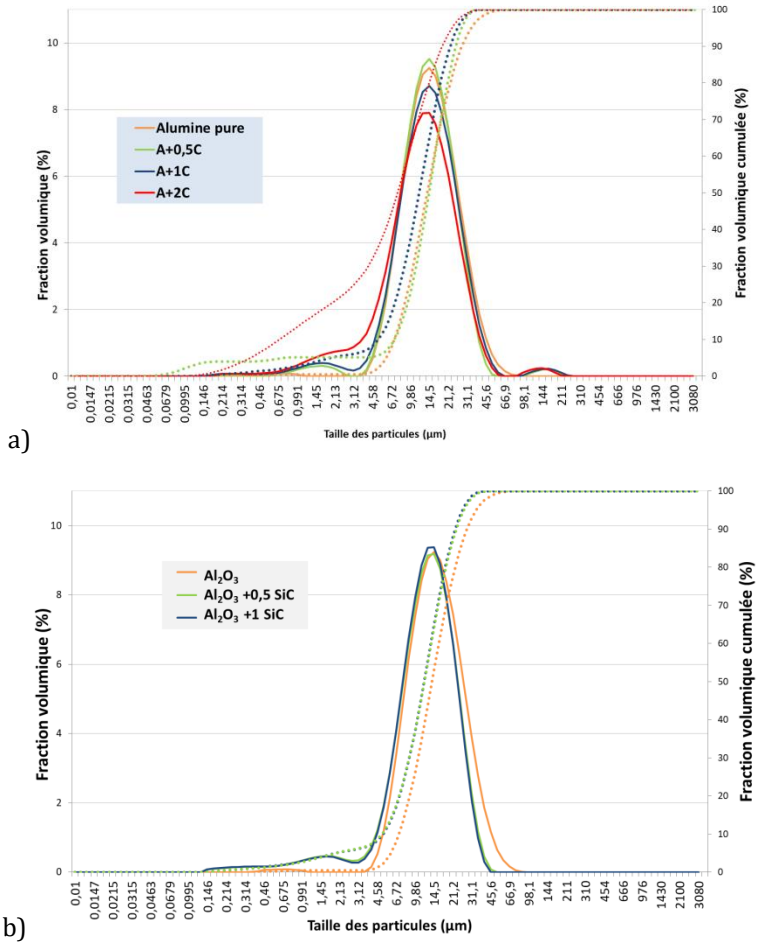


Figure II-17 : Mélange alumine + carbone pour un pH acide (1%C)

Le SiC semble quant à lui, être mieux réparti que le carbone pour un mélange à pH neutre *(Figure II-16.d-f)* et la distribution granulométrique ne varie pas significativement *(Figure II-18)*.



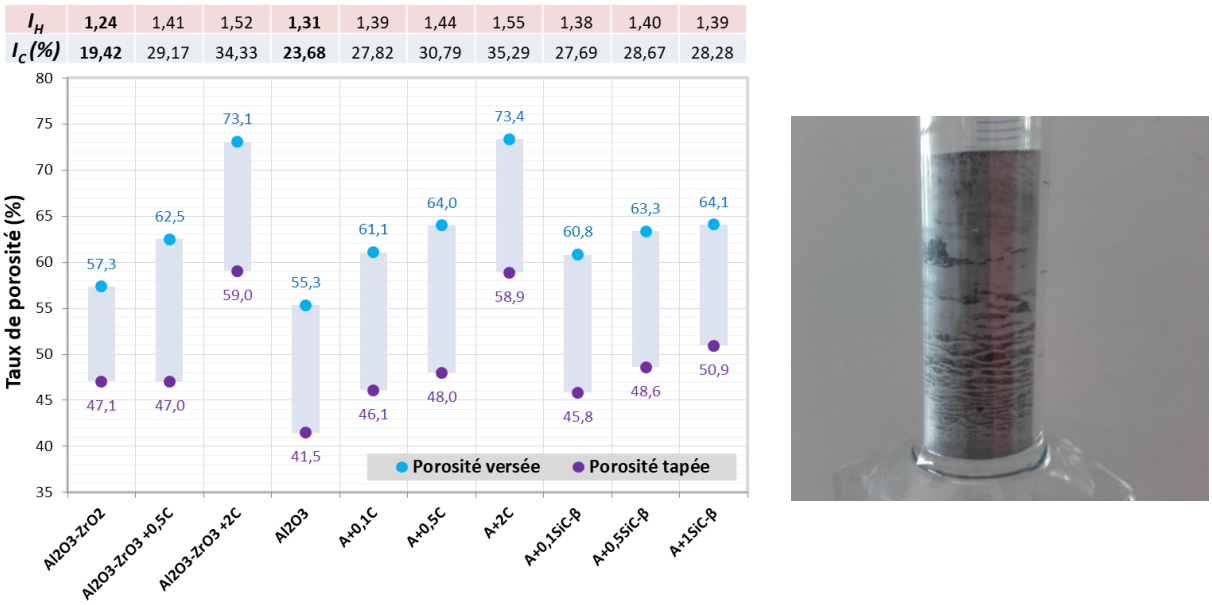
	A	A+0,5C	A+1C	A+2C	A+0,5SiC	A+1SiC	A+EMSE2	A+EMSE4		AZ	AZ+0,5C	AZ+2C
Dv (10)	8,1	7,6	6,8	4,6	5,7	5,9	0,8	0,7		7,9	7,5	5,2
Dv (50)	15,8	15,1	15,1	13,5	13,5	13,4	8,7	9,6		15,5	15,9	14,8
Dv (90)	32,0	29,1	31,1	29,3	25,8	25,3	21,5	28,3		27,8	29,2	34,3
Span	1,5	1,4	1,6	1,8	1,5	1,4	2,4	2,9		1,3	1,4	2,0

c)

Figure II-18 : Comparaison des analyses granulométriques des mélanges poudre-absorbant avec les poudres céramiques de réception a-b) distributions granulométriques c) ensemble des grandeurs granulométriques

Les mesures de densités relatives tapées et versées montrent pour l'alumine, que l'ajout de SiC-β ou de C induit une augmentation de la porosité du lit de poudre qui est d'autant plus accentuée que l'augmentation de la teneur en absorbant est importante *(Figure II-19.a)*. On note néanmoins que le SiC-β a un impact plus limité que le carbone. Les indices de coulabilité (I_H *et* I_C) indiquent de plus que les mélanges présentent une mauvaise coulabilité et donc rendent difficile l'étalement de la poudre pour

former une épaisseur contrôlée et uniforme Δz_{poudre} sur le substrat pour la fabrication. C'est en effet ce qui est observé expérimentalement : il est difficile de déposer une épaisseur homogène de poudre et particulièrement lors de la première couche. Après tassement du mélange {A+1C}, on remarque la forte hétérogénéité du mélange : les zones riches en carbone se séparent du reste de la poudre *(Figure II-19.b)*.



a) b)

Figure II-19 : a) Résultats des mesures de densités relatives tapées et versées pour les poudres mélangées avec des absorbants
b) Mélange de poudre {A+1C} tassé

II.2.2.2. Mélanges céramique – métal

L'étude s'est portée également sur des absorbants permanents, qui induisent un transfert de chaleur différent des absorbants carbonés et éphémères. Dans ce cas, l'absorption est continue et persiste lors des refusions des couches de fabrication successives. L'alumine est mélangée à l'Inconel 625, un alliage riche en Nickel *(Tableau II-9)*, un élément qui présente une des meilleures mouillabilités avec l'alumine (Béranger et Mazille 2005). Il a été retenu trois mélanges en plus des poudres « pures » d'alumine et d'Inconel 625 :

- Majoritaire en céramique : 90%vol. (ou 84%m.) Al_2O_3 + 10% vol. Inconel 625 (A+INCO 9010)
- Intermédiaire : 68% vol. (ou 50%m.) Al_2O_3 + 32% vol. Inconel 625 (A+INCO 6832)
- Majoritaire en métal : 35% vol. (ou 30%m.) Al_2O_3 + 65% vol. Inconel 625 (A+INCO 3565)

Tableau II-9 : Composition chimique (massique) indicative des poudres métalliques de l'étude

	Ni	Cr	Fe	Mo	Nb	Co	Mn	Al	Ti	Si	C	S	P	W	La	Bo
Inconel 625	58,0 min.	20,0-23,0	5,0 max	8,0-10,0	3,15-4,15	1,0 max	0,50 max	0,40 max	0,40 max	0,50 max	0,10 max	0,015 max	0,015 max			
Haynes 188	22	22	3 max			39	1.25 max			0.35	0.10			14	0.03	0.015 max.

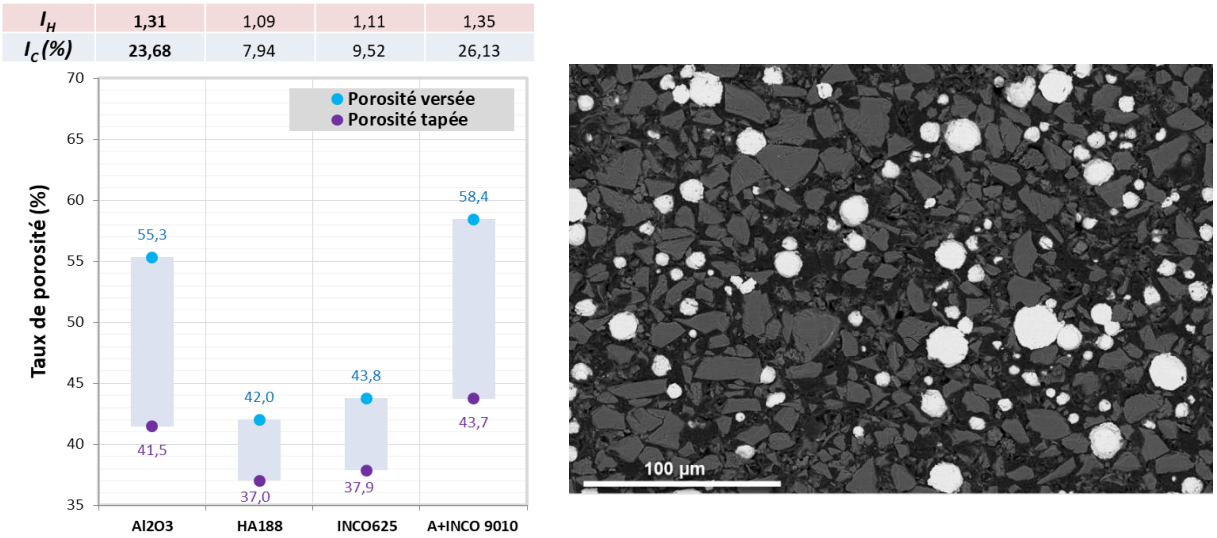
La poudre d'Inconel 625 ainsi qu'un lot de Haynes 188 (*Co-Cr-Ni* - *Tableau II-9*) ont permis une comparaison du LBM céramique avec le LBM métallique tout au long de cette étude. La différence des propriétés optiques et notamment d'absorption à la longueur d'onde du laser de ces deux matériaux *(Chapitre IV)* est mise en lien avec la différence de stabilité de fabrication *(Chapitre VI)*.

Globalement les poudre d'alumine et d'Inconel 625 présentent des distributions granulométriques proches, seul le span de la poudre métallique est plus étroit avec un d_{v90} inférieure à celui de l'alumine *(Tableau II-10)*. Le mélange des deux poudres présente des valeurs intermédiaires à celles des poudres « pures ». Les diamètres équivalents de la distribution du Haynes 188 sont légèrement supérieurs.

Tableau II-10 : Résultats de l'analyse granulométrique sur céramique, métaux et mélange céramique-métal 9010

	Al_2O_3	A+INCO 9010	Inconel 625	Haynes 188
d_{v10} (µm)	8,09	8,13	7,88	9,55
d_{v50}(µm)	15,8	15,3	14,0	24,4
d_{v90} (µm)	32,0	29,9	23,8	46,1
Span (largeur de distribution)	1,52	1,42	1,14	1,49

Les métaux possèdent un taux de porosité du lit de poudre nettement inférieur à celui des céramiques et une très bonne coulabilité *(Figure II-20.a)*. Cet effet est probablement lié en partie à la géométrie sphérique des particules métalliques. Le mélange céramique-métal 9010, alors constitué de particules broyées et sphériques *(Figure II-20.b)* voit ses taux de porosité versée et tapée augmenter par rapport aux poudres « pures ». Sa compressibilité est donc meilleure. Toutefois, sa coulabilité est dégradée, ce qui est favorable à sa mise en couche.



a) b)

Figure II-20 : a) Résultats des mesures de densités relatives tapées et versées pour les poudres mélangées b) cliché MEB mélange {A+INCO 9010}

II.3. Microstructures

II.3.1. Théorie de la solidification eutectique

II.3.1.1. Croissance couplée et influence de la vitesse de solidification et de la composition

Contrairement à ce que montre un diagramme d'équilibre eutectique, il est possible d'obtenir des structures entièrement eutectiques en dehors de la composition eutectique exacte C_E pour des conditions particulières de solidification, hors équilibre, et notamment lorsque le gradient thermique est positif (G>0). Par définition, la zone de croissance couplée est la région pour laquelle les eutectiques croissent plus rapidement (à plus faible surfusion) que les dendrites. Autour de la composition C_E, dans une certaine limite de composition, si la croissance compétitive est en faveur de la croissance couplée, un eutectique pourra alors se former bien qu'en dehors de la composition eutectique exacte *(Figure II-21)*. Si la croissance compétitive est en faveur de la croissance dendritique, on observe des **dendrites monophasées** au sein d'un eutectique interdendritique. L'eutectique se trouve alors entre deux dendrites en croissance unidirectionnelle perpendiculaire à l'interface solide/liquide.

En calculant les courbes de croissance des différentes phases (Al_2O_3 ou ZrO_2), pour une composition C_1 donnée, et pour chaque vitesse de solidification V_s, la phase qui proposera la surfusion constitutionnelle[1] (ΔT_C) la plus faible se solidifiera la plus rapidement *(Figure II-21)* en lien avec la couche de diffusion à l'interface solide/liquide. Ainsi, pour une vitesse de solidification donnée, la première phase à se solidifier est celle dont la courbe de croissance se trouve « au-dessus » des autres.

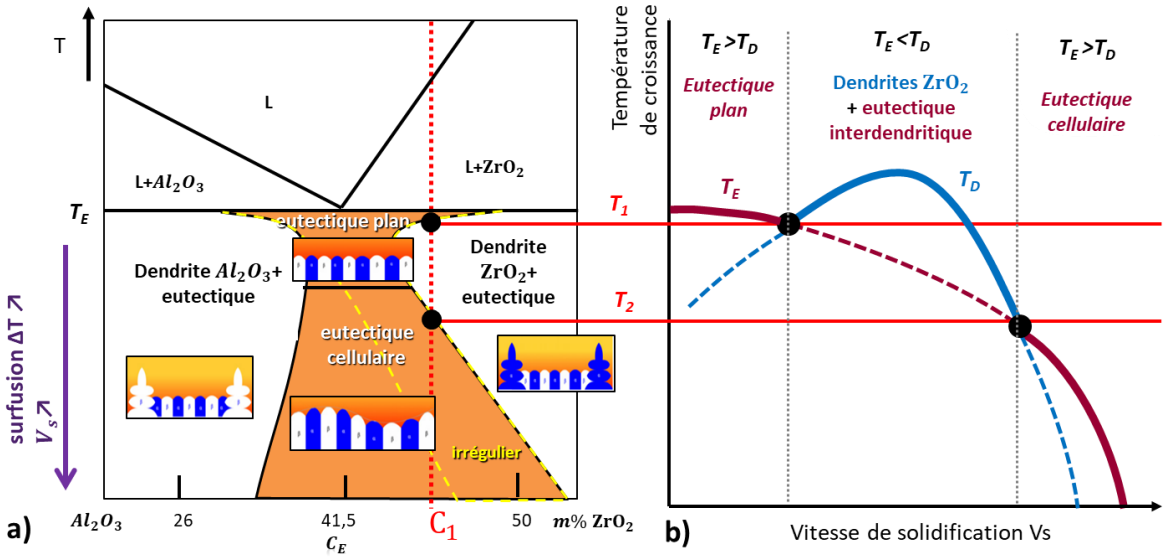


Figure II-21 : Diagramme de la zone eutectique couplée alumine- zircone et effet de la vitesse de solidification, adapté de (Llorca et Orera 2006; Orera et al. 2012)

A une vitesse de solidification V_s très lente, la phase eutectique couplée croît plus vite que les dendrites, un **eutectique plan** est alors formé. Lorsque la vitesse V_s augmente, la croissance dendritique est favorisée puis aux fortes vitesses V_s, c'est à nouveau la phase eutectique qui se forme mais plutôt sous la forme cellulaire. A ces vitesses élevées, la croissance compétitive donne lieu à des **colonies eutectiques biphasées** : l'interface plane de solidification est perturbée à partir d'une vitesse critique. La présence

[1] La surfusion constitutionnelle est l'écart de température entre le liquidus théorique et la température de solidification expérimentale. Cet écart de température est lié à la diffusion limitée des éléments chimiques dans le liquide devant l'interface solide/liquide.

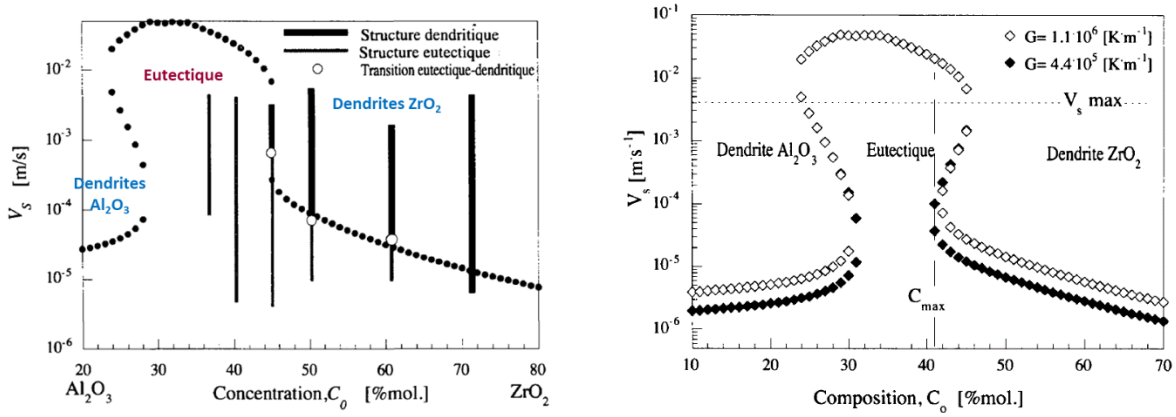
d'une impureté peut constituer un troisième élément qui serait rejeté par les deux phases solides de manière similaire. La courbure de la colonie augmente alors avec le gradient de concentration chimique. En périphérie des cellules eutectiques biphasées, les phases tendent à s'incliner et à grossir, il s'agit d'un mécanisme de réajustement entre l'effet capillaire et la surfusion constitutionnelle.

En augmentant encore la vitesse de solidification, on pourrait observer des eutectiques dendritiques ou encore un eutectique équiaxe. La solidification équiaxe a lieu par germination dans un liquide en surfusion avec un gradient thermique négatif (G<0) à l'interface solide/liquide. La transition colonnaire-équiaxe est contrôlée par le nombre de sites de germination, la surfusion de germination, le gradient thermique ainsi que par la surfusion de croissance dendritique.

En calculant les courbes de croissance des différentes structures pour toutes les compositions et en reportant les différentes vitesses de transition, il est possible d'établir la carte des microstructures. La théorie complète et le développement des modèles complets de la solidification eutectique sont détaillés par (Kurz et Fisher 1992).

Dans le cas d'eutectiques irréguliers, c'est-à-dire, si l'une des faces d'une des deux phases est facettée, la zone de croissance couplée est asymétrique. Aux fortes vitesses de solidification, la croissance compétitive pourrait favoriser la solidification de dendrites de la phase ZrO_2 même si l'alliage est plus riche en phase Al_2O_3 *(Figure II-21)*.

(Stèwes Bourban 1998) montre lors de la refusion par laser CO_2, que la variation de la composition Al_2O_3-ZrO_2 et de la vitesse de solidification engendre une variation entre les structures eutectique et dendritique. De plus, il montre un bon accord entre ses relevées expérimentaux et son calcul de la limite de la zone couplée *(Figure II-22.a)*. Par ailleurs, il a également regardé l'influence du préchauffage (soit un plus faible gradient thermique) qui décale la limite de concentration C_{max} en zircone pour maintenir une croissance couplée : elle passe de 44%mol pour G=1,1.10^6 K.m^{-1} à 41%mol pour G= 4,4.10^5 K.m^{-1}.



a) b)

Figure II-22 : Variation des microstructures en fonction de la concentration et de la vitesse de solidification (zones couplée et dendritique) pour le mélange Al_2O_3-ZrO_2 fondu par laser CO_2
a) valeurs calculées à G=5.10^6 K.m^{-1} (ronds pleins) et mesurées expérimentalement (segments) b) pour deux valeurs de G dont un (losanges pleins) correspond à un préchauffage de 1000°C, d'après (Stèwes Bourban 1998)

Au sein des structures planes et des colonies, différentes microstructures sont obtenues lors de la solidification d'alliages eutectiques suivant la nature facettée ou non de l'interface solide/liquide *(Figure II-23)*. Pour les systèmes biphasés, on distingue :

- **Structures régulières (interface rugueuse)**
  - **Lamellaire** : arrangement spatial régulier de lamelles sur de longues distances mais qui contient des défauts.

- **Fibreuse** : phase de forme cylindrique contenue dans une matrice continue d'une seconde phase.
- **Globulaire** : particules d'une phase contenues dans une matrice d'une seconde phase.

- **Structures irrégulières (cas facetté)**
  - **Irrégulière** : arrangement spatial irrégulier sur de longues distances.
  - **Lamellaire « rompue »** : arrangement quasi-régulier de lamelles interrompues.
  - **Geometrical Pattern** : ensemble régulier de plaques ou fibres sur une zone locale.
  - **Structure 3D complexe (TDI - three dimensional interpenetrating)** : ensemble discret, finement branché de plaques de la phase mineure (facettée ou non) dans la matrice (facettée ou non). L'absence de grains ou d'irrégularités à grande échelle en plus d'un lien fort entre les phases donne à cette structure de très bonnes propriétés mécaniques. Dans le cas des deux phases facettées, on se réfère au terme « Chinese Script ».
  - **Quasi-régulière** : ensemble de fibres ou plaques de la phase mineure non facettée dans une phase à haute entropie.

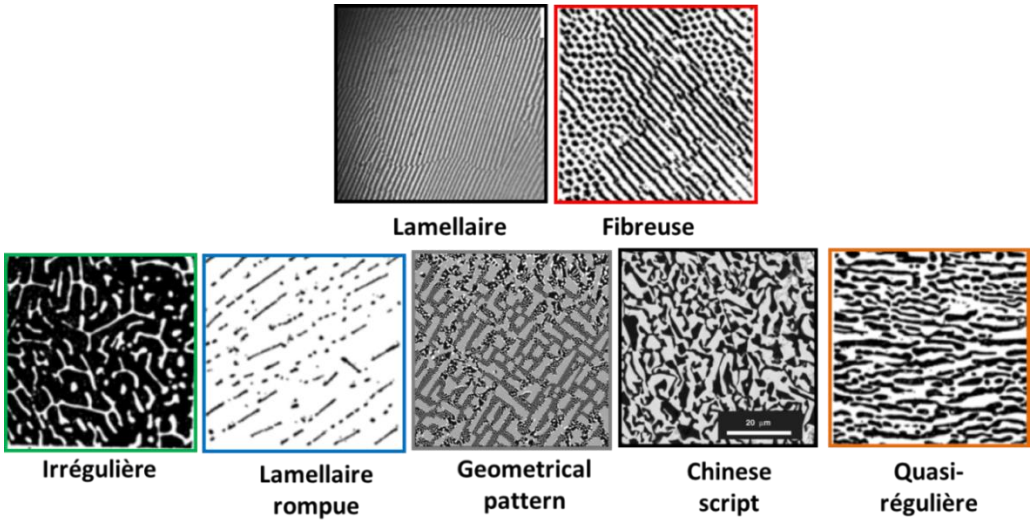


Figure II-23 : Différentes microstructures eutectiques, adaptées de (Cherif 2016; Llorca et Orera 2006)

Les structures irrégulières dépendent fortement de la fraction volumique de la phase facettée et de la vitesse de croissance *(Figure II-24)*.

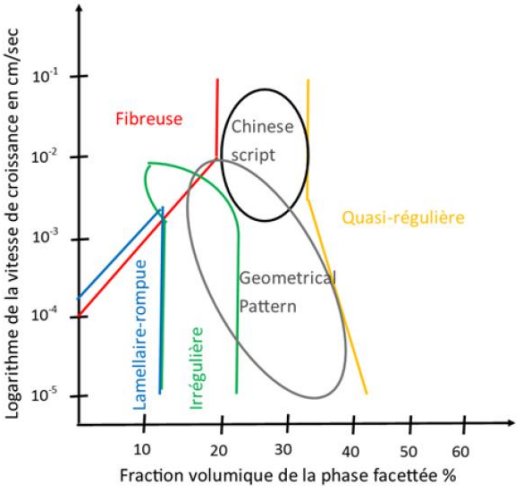


Figure II-24 : Morphologies des eutectiques irréguliers en fonction de la vitesse de croissance et de la fraction volumique de la phase facettée, d'après (Cherif 2016)

Expérimentalement, l'effet de la vitesse de solidification par LFZ (*laser floating zone*) sur les morphologies de l'eutectique Al_2O_3-YSZ (ZrO_2 stabilisée à l'yttrine) a été démontrée par (Pena et al. 2002). La *Figure II-25* présente l'évolution de l'eutectique plan, pour des faibles vitesses de solidification vers un eutectique cellulaire pour de plus fortes vitesses de solidification avec une transition de la structure YSZ lamellaire à fibreuse. On remarque que l'évolution de la vitesse de solidification engendre également une variation de la finesse de la microstructure.

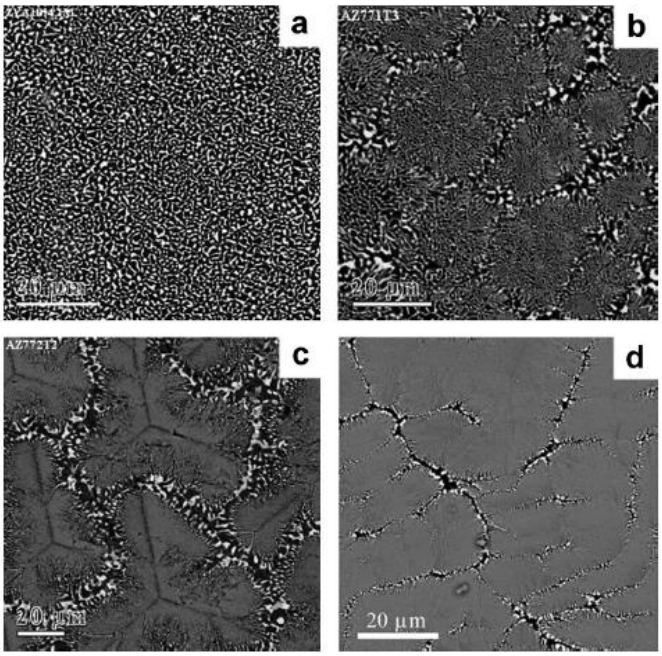


Figure II-25 : Micrographies des eutectiques Al_2O_3-YSZ solidifiés à a)10 b) 100 c)300 et d) 1500 mm.h^{-1} (d'après (Peña et al, 2002))

II.3.1.2. Morphologies et échelles de microstructure

Il est établi que les gradients thermiques G et les vitesses de solidification V_s sont les principales grandeurs qui déterminent la forme et la finesse des microstructures *(Figure II-26)*. D'une part, le produit $\mathbf{G.V_S}$ qui est équivalent à la vitesse de refroidissement $\dot{T}$ contrôle la taille de la microstructure et le quotient $\mathbf{G/V_S}$ contrôle sa morphologie.

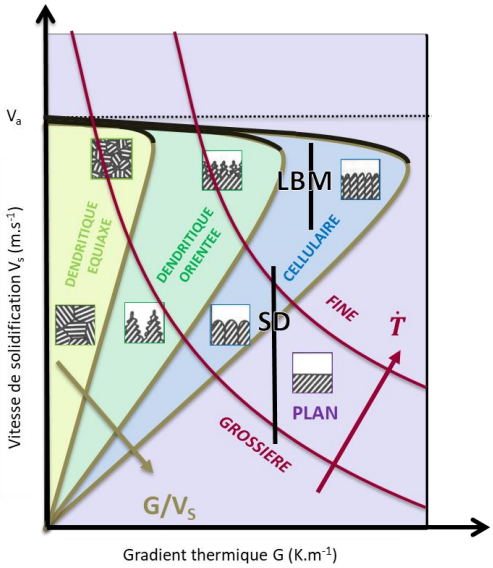
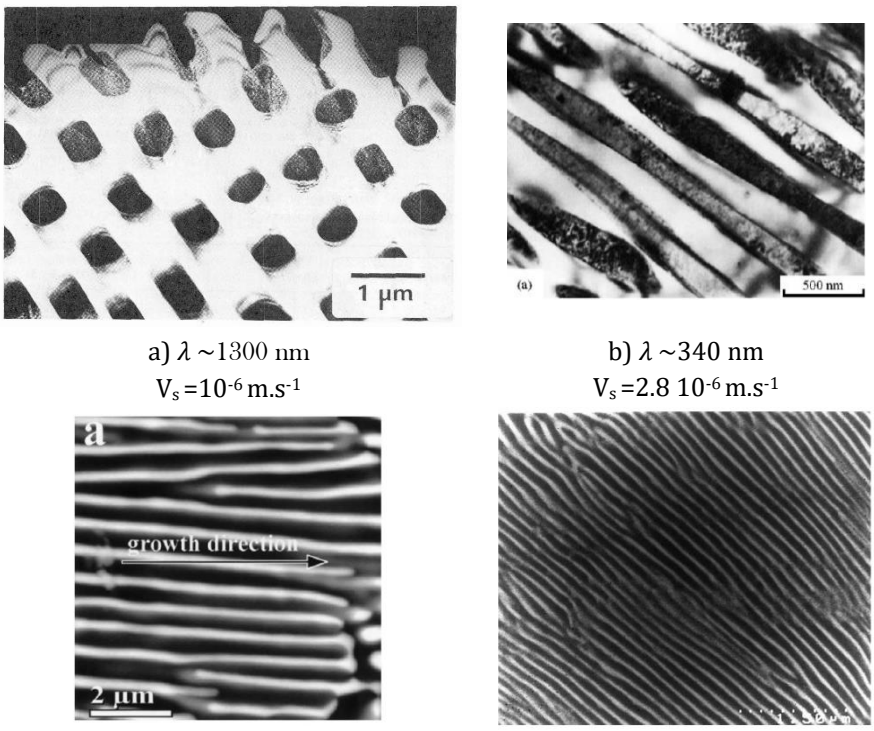


Figure II-26 : Variations des tailles et morphologies pour une solidification monophasée et identification des domaines de solidification des procédés de solidification dirigée SD et LBM

En raison des propriétés attractives et le potentiel d'utilisation de l'eutectique alumine-zircone, sa solidification a été fortement étudiée, principalement dans le cas de la solidification dirigée (SD) de type Bridgman. Ces procédés de SD sont caractérisés par une vitesse de solidification lente (V_s<50 µm.s^{-1}) et un faible gradient thermique (G<2.10^4 K.m^{-1}), soit une vitesse de refroidissement $\dot{T} = V_S.G = 1\ K.s^{-1}$. Les valeurs atteintes par ce procédé peuvent correspondre à une microstructure plane ou à des colonies avec dans la plupart des cas des fibres de ZrO_2 dans une matrice Al_2O_3 *(Figure II-27.a-b)*. Les espacements intra-lamellaires λ ne descendent pas en dessous de la centaine de nm.

Les vitesses de refroidissement $\dot{T}$ du procédé LBM sont bien supérieures à celles pratiquées en SD. Elles sont de l'ordre de 10^4-10^5°C.s^{-1} avec de forts gradients et fortes vitesses de solidification. Dans notre cas, les observations montrent que ce sont des colonies qui sont solidifiées à microstructure très fine *(§II.3.2)*.



a) λ ~1300 nm
V_s =10^{-6} m.s^{-1}

b) λ ~340 nm
V_s =2.8 10^{-6} m.s^{-1}

c) λ ~750 nm
V_b =2.10^{-5} m.s^{-1}

d) λ ~160 nm
V_s >10^{-3} m.s^{-1} ($\dot{T} > 1\ K/S$)

Figure II-27 : Microstructures eutectiques obtenues par LFZ a) MET fond noir sur une réflexion de l'alumine-b) MET contraste de diffraction en fond clair
c-d) MEB contraste chimique, d'après (Echigoya 2005; Larrea et al. 2002; L. Mazerolles, Michel, et Portier 1986)

(Jackson et Hunt 1966) établissent la relation entre l'espacement inter-lamellaire λ et la vitesse de solidification : $\boldsymbol{\lambda^2.V_s}$ **=cste**. Ils indiquent que lorsque la vitesse de solidification augmente, l'espacement inter-lamellaire diminue indépendamment du gradient thermique G *(Figure II-28)*. Dans le cas de la croissance par solidification dirigée ($V_s < 10^{-4}\ m.s^{-1}$), (Schmid et Viechnicki 1970; Stubican et Bradt 1981) montrent que la relation se vérifie pour les valeurs de λ obtenues, supérieures à 400 nm. La constante de l'équation est calculée par (S. Bourban et al. 1997) lors d'essais de refusion de céramiques oxydes par laser CO_2. Il retombe sur la valeur **10^{-17} m^3.s^{-1}** estimée par SD dans le cas de la refusion de l'eutectique alumine-zircone, à condition de corriger le coefficient de diffusion dans le liquide ($a_L = 5.10^{-10}\ m^2.s^{-1}$). L'auteur montre de plus que cette équation est limitée aux vitesses de solidification V_S < 10^{-3} m.s^{-1}. On notera que G reste plus important pour un laser Nd :YAG que pour un laser CO_2.

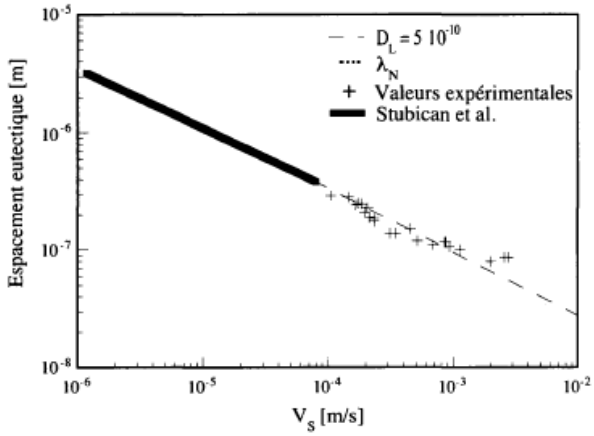


Figure II-28 : Variation de l'espacement inter-lamellaire établi pour l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2 d'après (S. Bourban et al. 1997)

Il est important de préciser que dans les procédés laser, à la différence de la SD (où l'interface solide/liquide est essentiellement plane), on ne contrôle pas directement la vitesse de solidification mais la vitesse de balayage du faisceau laser V. La relation entre les deux peut s'avérer complexe car elle varie au sein d'un même cordon et dépend de la forme de l'isotherme de fusion. Pour simplifier, si on considère la coupe médiane du bain, V_s est normale à l'isotherme de fusion et il est alors possible d'exprimer pour un état stationnaire (hors keyhole) la vitesse de solidification en fonction de la vitesse de balayage :

$$\mathbf{V_s = V.\cos\theta} \qquad \text{(II-1)}$$

θ étant l'angle entre la direction de balayage laser et la direction de croissance des grains perpendiculaire à l'isotherme de fusion. Sur la ligne de fusion de cette coupe médiane, en « queue » de cordon (point C), V_s prend une valeur positive et maximale alors qu'en fond de cordon (point B), $\theta = 90°$ et $V_s = 0$ *(Figure II-29)*. En avant du bain (point A), $\theta = 180°$et $V_s = -V$. La mesure des espacements inter-lamellaires est facilitée par les refusions du substrat avec la solidification du « dernier bain » fondu.

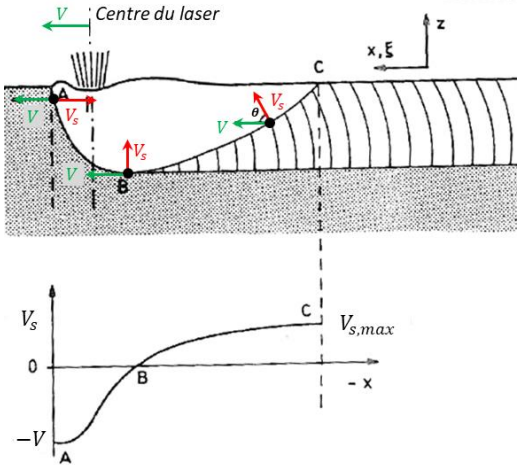


Figure II-29 : Lien entre vitesse de balayage du faisceau laser V et vitesse de solidification V_s tout au long de l'isotherme de fusion sur le plan médian du bain (Rappaz et al. 1987)

II.3.2. Microstructures obtenues par LBM

II.3.2.1. Morphologies des grains au sein du monocordon

Au sein d'un même bain de fusion, on observe une variation de V_s et de G. La forme et l'orientation des colonies évoluent donc entre le bas et le haut de la zone fondue *(Figure II-30)*. Au bas de la zone fondue, où se produit le début de la solidification, la présence d'un gradient thermique élevé et d'une vitesse de solidification V_s faible induit une solidification dirigée dans des directions proches de celles de G et de V_s,

en sens inverse du flux de chaleur. Qui plus est, les grains prennent une morphologie colonnaire. En haut de la zone fondue, la solidification prend fin et le gradient thermique G devient faible et la vitesse de solidification V_s devient grande, engendrant une structure équiaxe.

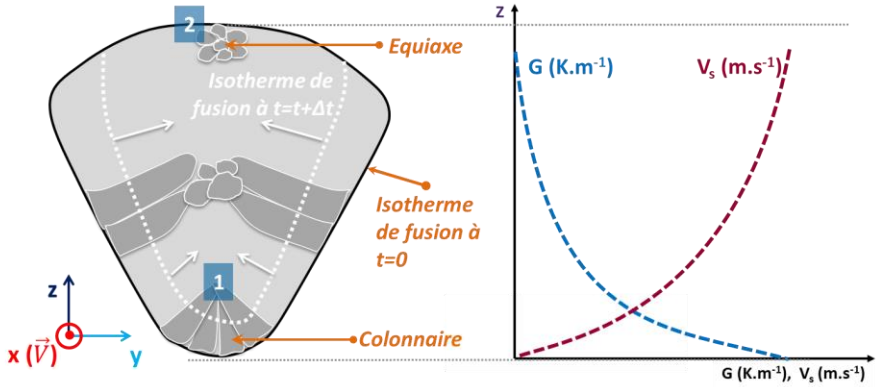
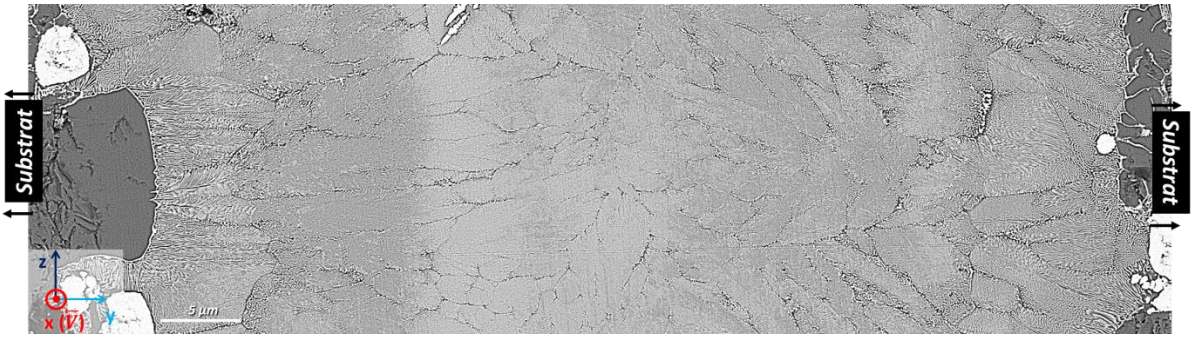
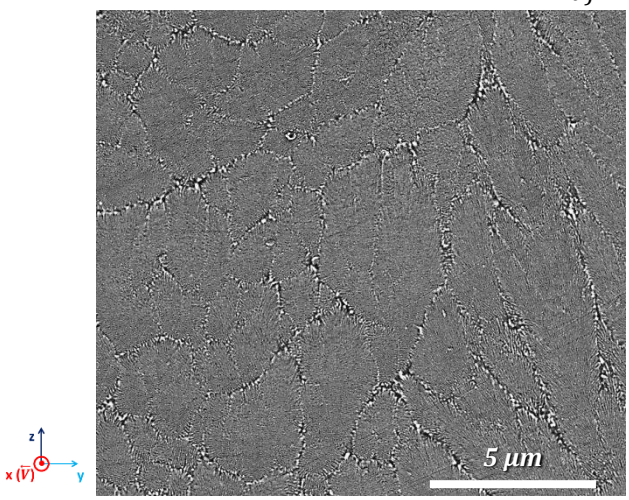


Figure II-30 : Morphologies des grains solidifiés selon leur position dans la zone fondue

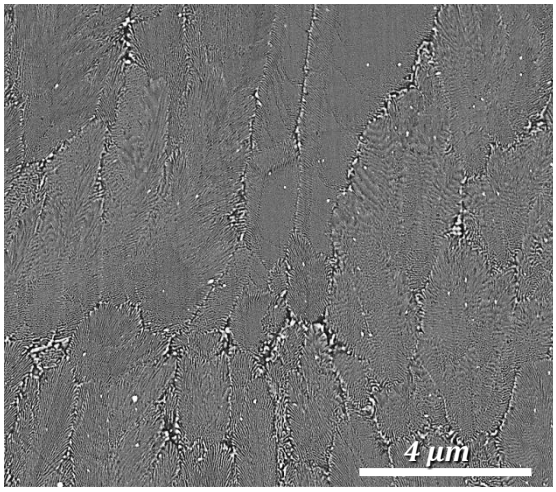
L'observation d'une coupe de cordon LBM (fusion d'un lit de poudre déposé sur un substrat poreux de même nature) met en évidence les variations de microstructure de l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2 : le bas, les bords latéraux et inférieurs proches du substrat sont à structure colonnaire orientée perpendiculairement à l'isotherme de fusion ; et le haut est à structure équiaxe *(Figure II-31)*. Les grains équiaxes se formant à la fin de la solidification peuvent se présenter sous forme de dendrites monophasées dans un eutectique inter-dendritique *(Figure II-32)*. Or, cette région formée à la fin de la solidification peut contenir des impuretés et des écarts à la composition eutectique de départ, suite à l'évaporation engendrée par le procédé, provoquant l'éloignement de la croissance couplée de l'eutectique.



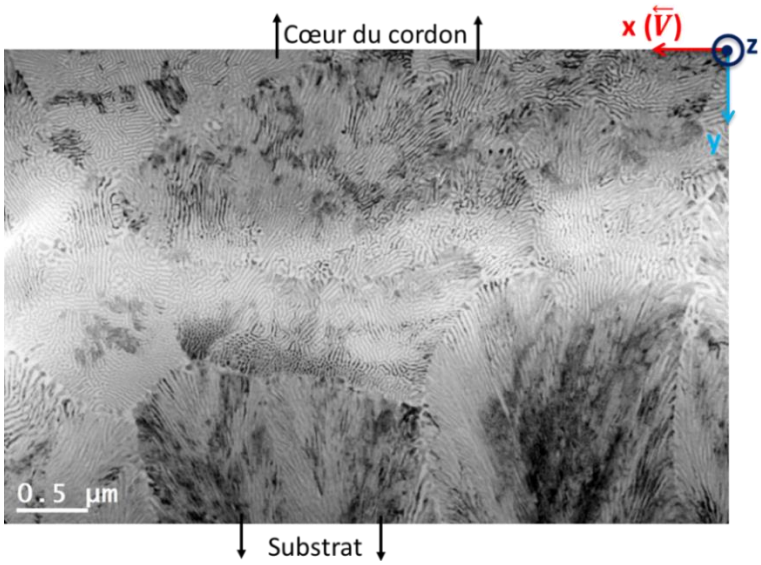
a)



b)



c)



d)

Figure II-31 : Clichés MEB où X est la direction de balayage laser a) milieu du cordon –coupe verticale b) colonies équiaxes en milieu de cordon c) colonies allongées en bas de la zone fondue d) observation fine au MET (contraste de diffraction) sur lame FIB (focus ion beam) prélevée à cœur d'un monocordon dans le plan de balayage

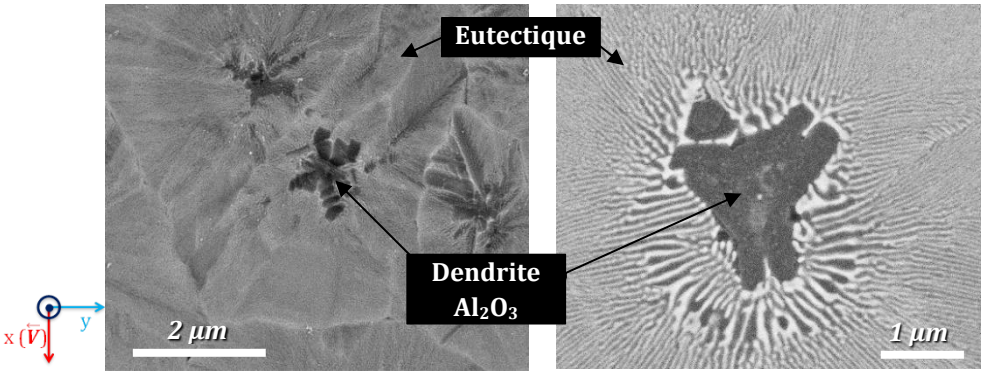
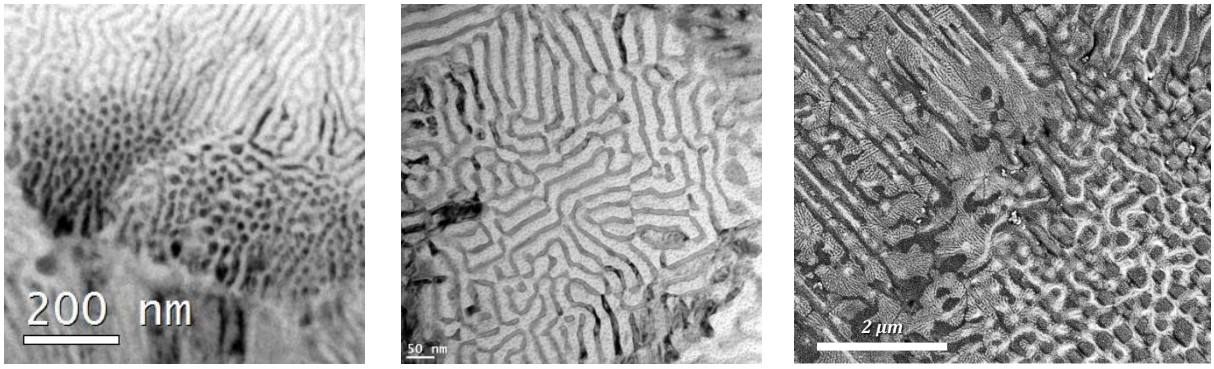


Figure II-32 : Clichés MEB des grains équiaxes en haut de la zone fondue (vue du dessus)

On note qu'au sein des colonies, l'eutectique est majoritairement lamellaire ou fibreux *(Figure II-33.a)* mais peut également être sous forme de structures 3D complexes (TDI dit labyrinthe- *Figure II-33.b*). Ponctuellement, des structures relativement différentes peuvent être observées correspondant à un eutectique irrégulier. Elles doivent être attribuées à des phénomènes thermiques extrêmes ou à des écarts locaux à la composition nominale non représentatifs de l'ensemble du bain *(Figure II-33.c)*.

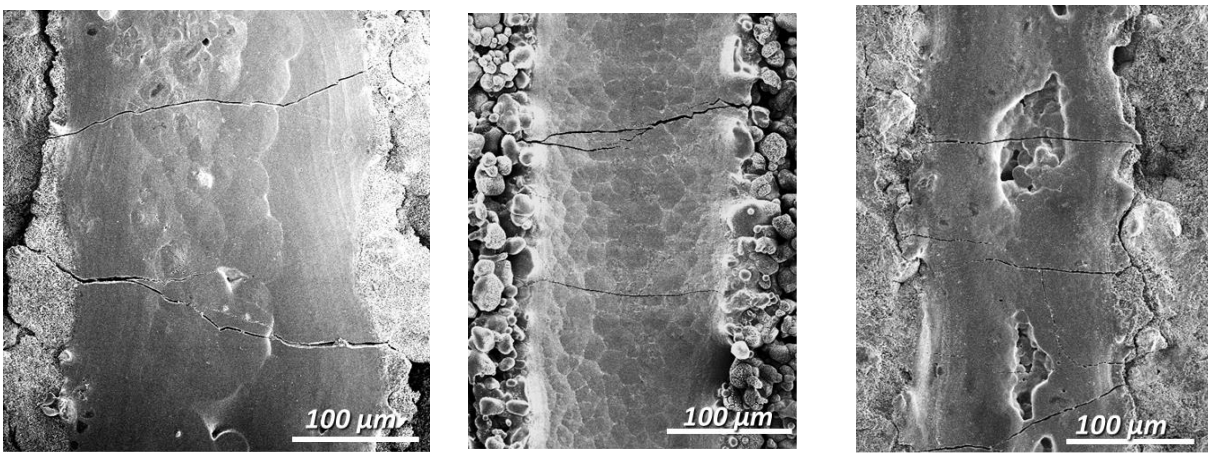


a) b) c)

Figure II-33 : Microstructures au sein d'un monocordon a) fibreuse b) TDI c) irrégulière

La zone équiaxe en surface supérieure du cordon est plus ou moins étendue en fonction des conditions de G et de V_s influencées par les paramètres du procédé *(Figure II-34)*. Ce nombre de grains équiaxes peut provoquer une faiblesse dans la tenue mécanique s'ils persistent lors de fabrication 3D d'une pièce. Dans certaines conditions, notamment avec la présence d'absorbants, il est même possible d'observer un alignement de pores *(Figure II-34.c,f)*. La nature des substrats et notamment la taille et le nombre de leurs grains influencent la germination (grains plus fins au sein du compact de poudre - *Figure II-34.a-b*). Ces observations sont également valables pour l'alumine qui présente des grains dendritiques équiaxes multi-facettés en haut des cordons au milieu d'une structure dendritique colonnaire *(Figure II-34.d-e et Figure II-35)*.

Al_2O_3-ZrO_2

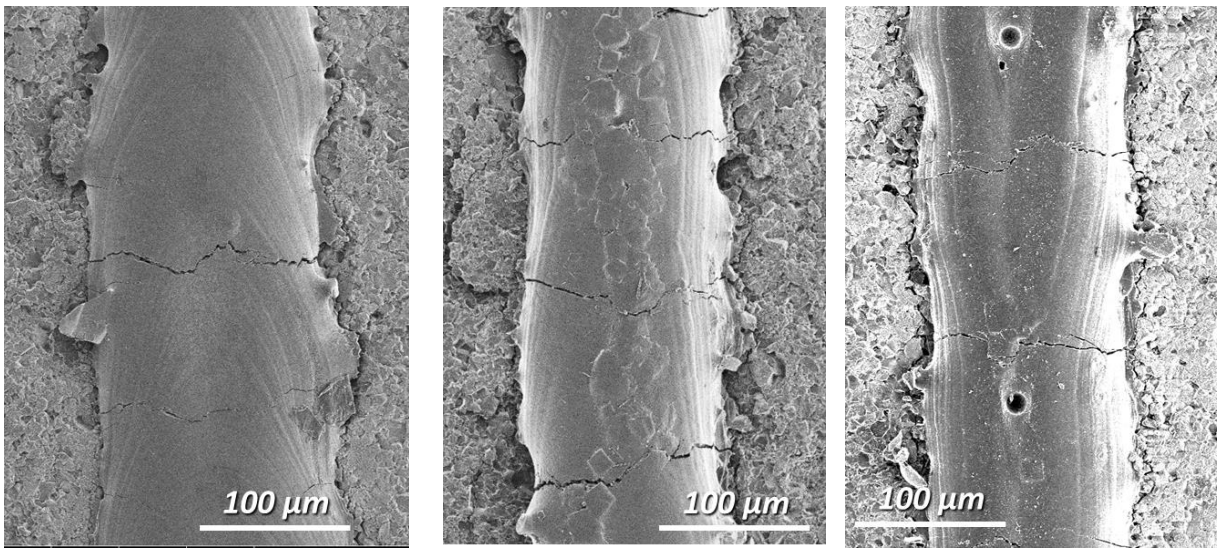


a) P42V50
Dépôt de poudre sur substrat dense (PAZ_SAZ)

b) P42V50
Refusion de substrat fritté (CAZ)

c) P126V340
Dépôt de poudre mélangée au carbone sur substrat dense (PAZ+2C_SAZ)

Al_2O_3



d) P42V50
Dépôt de poudre sur substrat dense pur (PA_SA)

e) P84V100
Dépôt de poudre sur substrat dense pur (PA_SA)

f) P84V100
Dépôt de poudre mélangée au carbone sur substrat dense (PA+0,1C_SA)

Figure II-34 : Cordons de fusion vus du dessus pour différents paramètres du procédé et différentes natures de LDP et de substrats

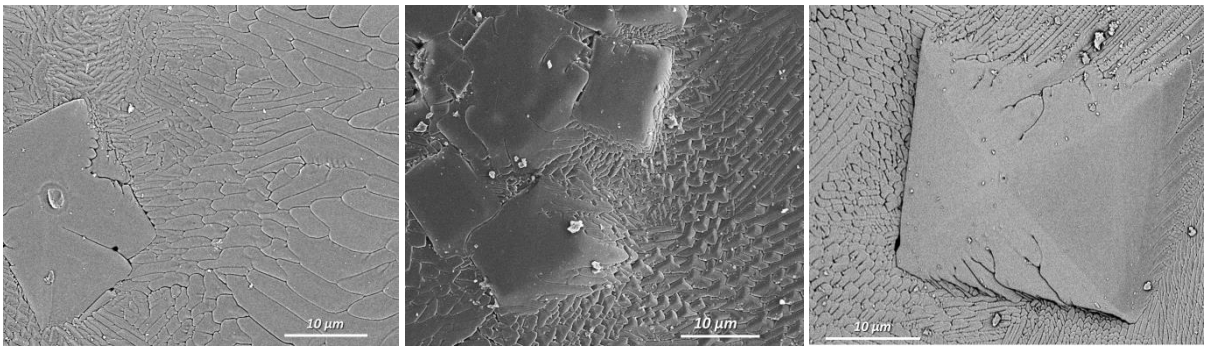


Figure II-35 : Microstructures solidifiées de cordons en Al_2O_3 vus de dessus

Par ailleurs, il est observé une solidification dirigée des grains dans la zone refondue pour le cas de l'alumine *(Figure II-36)*.

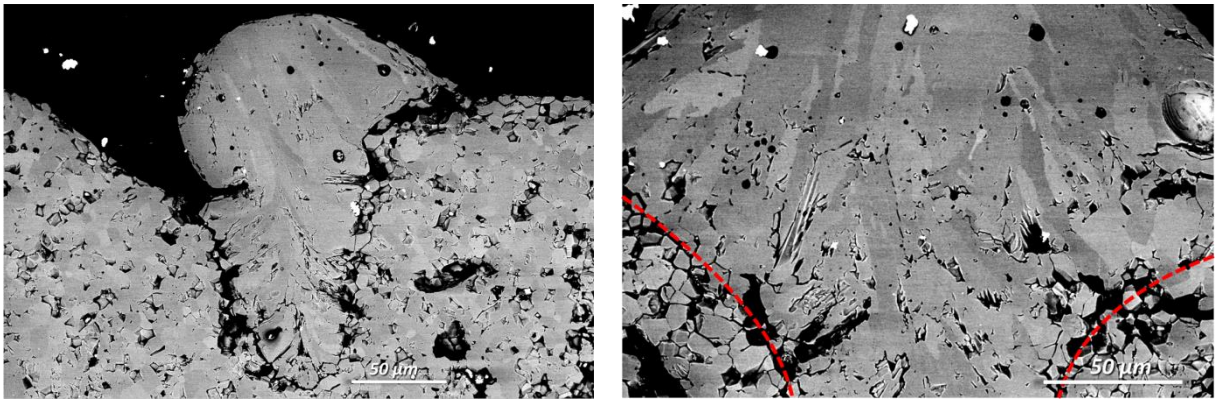


Figure II-36 : Monocordon d'Al_2O_3 vu en coupe – en rouge sont représentées les limites de la zone refondue

II.3.2.2. Finesse de la microstructure

Les microstructures lamellaires ou fibreuses obtenues par LBM possèdent un espacement inter-lamellaire nettement inférieur à celui de la SD classique. La différence de microstructure entre les particules de poudre du substrat avant fusion et la zone fondue est flagrante *(Figure II-37)*. L'espacement inter-lamellaire de la zone fondue pour les conditions de fabrication {P=126W ;V=400 mm.s^{-1}} est de 30 nm environ pour les grains équiaxes et de 40 nm pour les grains colonnaires *(Figure II-38)*.

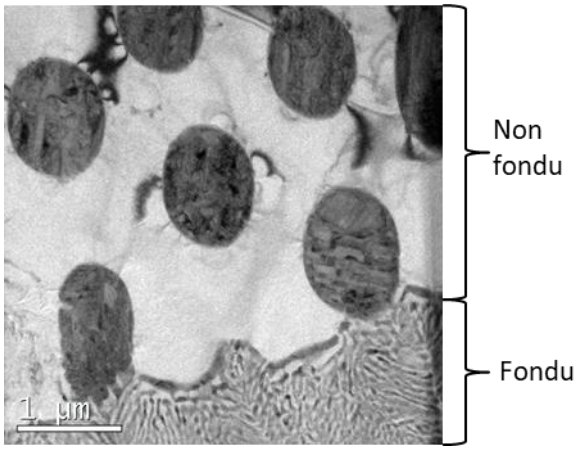


Figure II-37 : Observation MET en contraste de diffraction (fond clair) d'une particule de poudre d'Al_2O_3-ZrO_2 non fondue et d'une partie du bain fondu de même nature

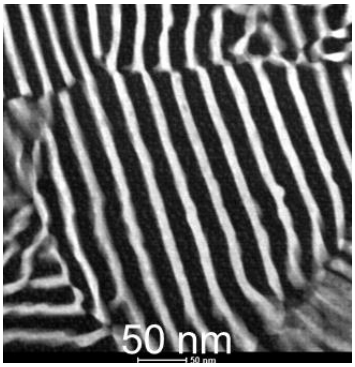


Figure II-38 : Espacement inter-lamellaire d'une cellule eutectique équiaxe d'Al_2O_3-ZrO_2 (STEM en contraste chimique)

Un relevé rapide des espacements inter-lamellaires pour une position fixe (milieu des cellules eutectiques proche de l'isotherme de fusion) dans le monocordon montre d'ores et déjà que la finesse de la microstructure augmente avec la vitesse de balayage laser *(Figure II-39 et Figure II-40)*. Des mesures plus précises sur la coupe médiane et en queue de cordon pourront permettre la validation ou non de la loi de Jackson-Hunt au-delà de $V_s = 10^{-2} m.s^{-1}$ *(Figure II-28)* qui relie l'espacement inter-lamellaire à la vitesse de solidification indépendamment du gradient thermique.

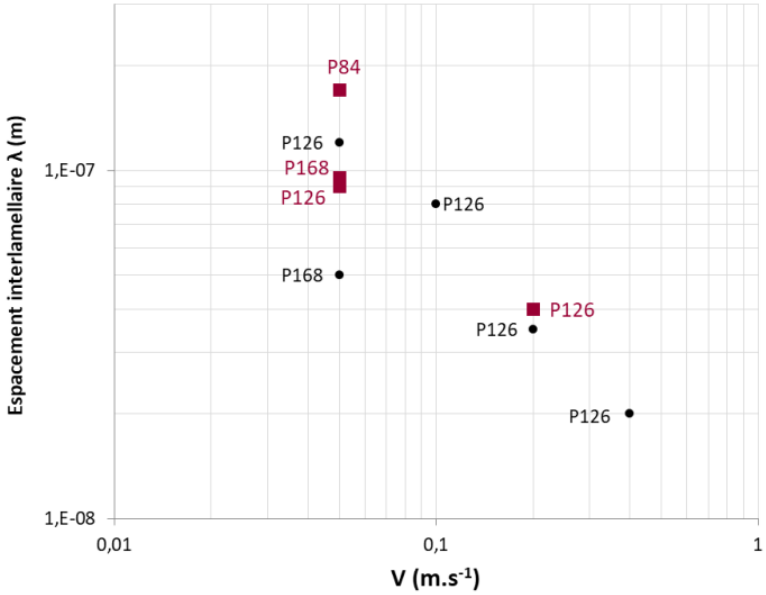


Figure II-39 : Évolution de l'espacement inter-lamellaire pour l'alumine-zircone de composition eutectique réalisé par LBM en fonction des paramètres (P, V)

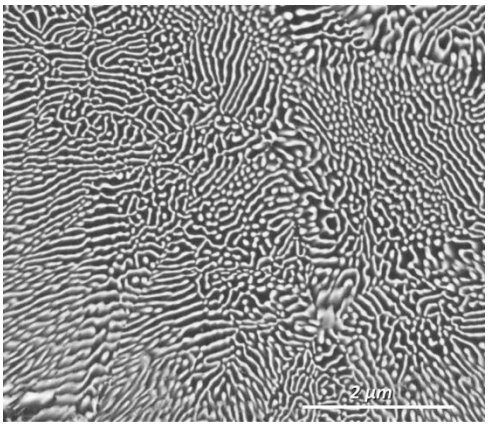
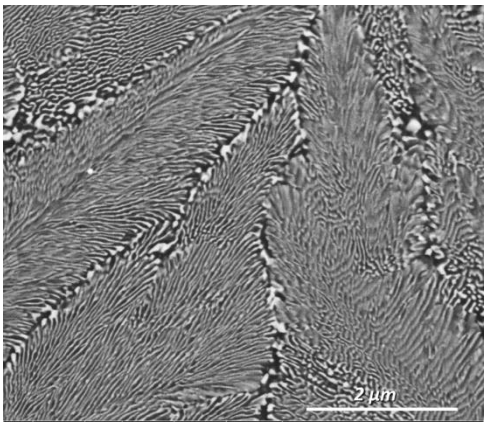
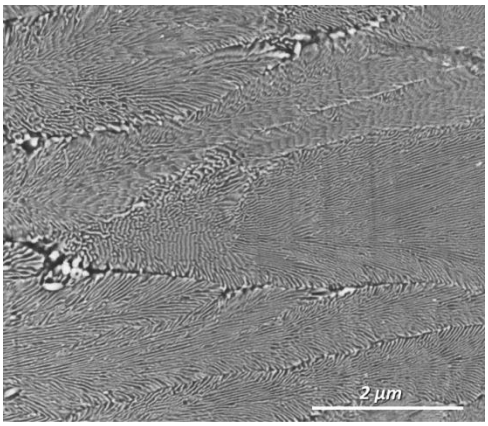
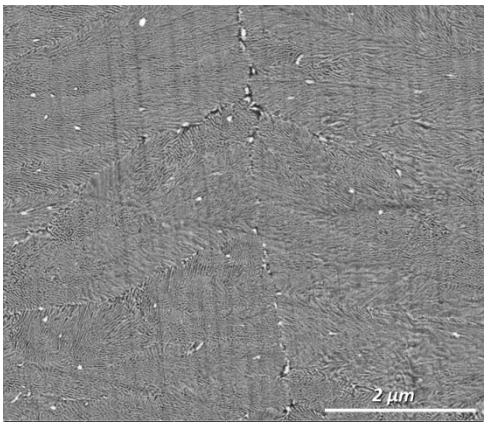
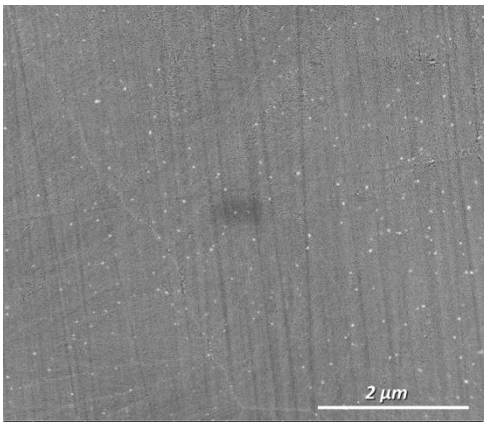
	Bord	Cœur
P168 *V50* *E_l 3,36*		
P126 *V200* *E_l 0,63*		
P168 *V800* *E_l 0,21*		

Figure II-40 : Microstructures de l'alumine-zircone eutectique à cœur et au bord des monocordons pour différentes conditions {P,V}

II.3.2.3. Forme du bain liquide

Par rapport aux matériaux métalliques (notamment par rapport à l'alliage Haynes 188), la profondeur et la longueur des bains de fusion des céramiques oxydes sont nettement supérieures. En *Figure II-41*, même pour une énergie linéique plus faible, les dimensions du bain restent supérieures dans le cas des

céramiques semi-transparentes à faible conductivité thermique, suggérant un écart encore plus marqué pour une même énergie linéique. Les coupes longitudinales des bains céramiques sont en forme de « queue de charrue » plutôt qu'en forme de demi-ellipse comme c'est le cas des matériaux opaques et absorbants au rayonnement laser *(Figure II-41)*.

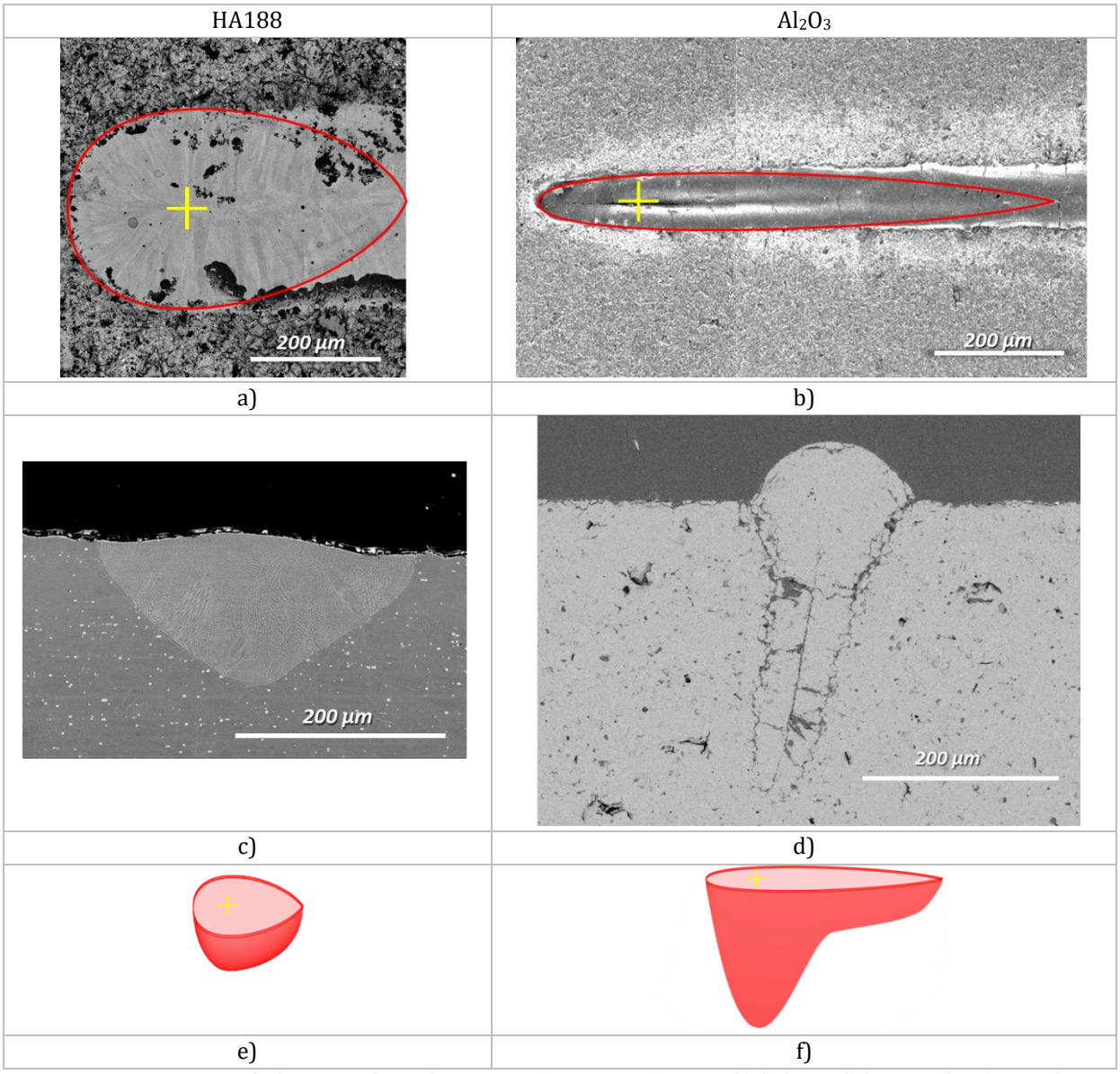


Figure II-41 : Comparaison des bains sur substrat dense HA188 (E_l=1,68 J.mm^{-1}) avec un dépôt de LDP d'alumine mélangée au carbone sur substrat dense d'alumine {PA+0.1C_SA} (E_l=1,05 J.mm^{-1}) : a-b) vue de dessus et c-d) vue en coupe transverse e-f) schématisation 3D des bains

II.3.2.4. Structures cristallographiques et orientations des phases

Les oxydes fondus ou refondus par LBM sous air comme sous argon apparaissent noirs *(Figure II-42)*, même sans ajout d'absorbant, ce qui laisse envisager une réduction des oxydes. Ce phénomène est vérifié par un post-traitement thermique de ré-oxygénation de 2h à 800°C sous air qui permet de rendre au matériau sa couleur blanche d'origine.

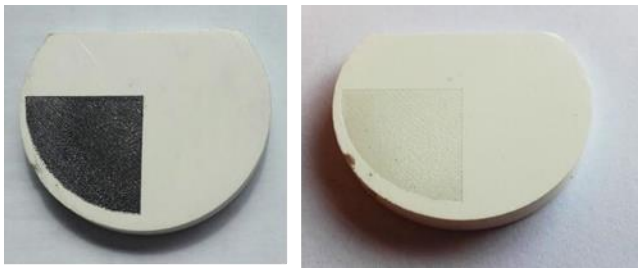
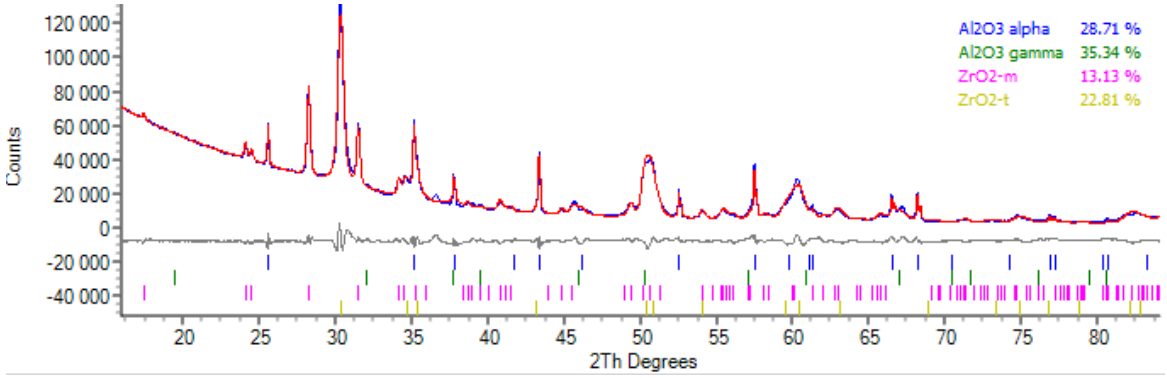
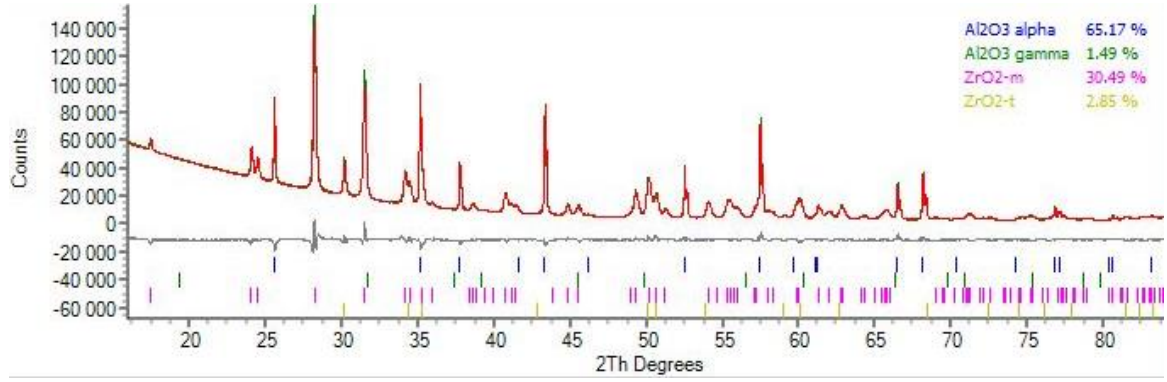


Figure II-42 : Substrat dense d'alumine-zircone en partie irradiée par le laser Yb : YAG sous air (à gauche) et après traitement thermique sous air (à droite)

La diffraction par rayons X (DRX) sur des échantillons bruts de fabrication *(Figure II-43.a)* indique la présence des phases M-ZrO_2, T-ZrO_2, Al_2O_3−α ainsi que d'une alumine de transition Al_2O_3-γ. La fusion et le refroidissement rapide permettent donc une stabilisation partielle de la zircone malgré l'absence de stabilisants ainsi qu'une alumine spinelle. Une fois le traitement thermique de ré-oxygénation opéré, les phases métastables T-ZrO_2 et Al_2O_3-γ se stabilisent en M-ZrO_2 et Al_2O_3−α *(Figure II-43.b)*. Cela est cohérent dans la mesure où la poudre utilisée pour la fabrication (*HC.Starck*) ne détient pas d'éléments stabilisants.



a)



b)

Figure II-43 : Diffractogramme d'un échantillon 3D d' Al_2O_3-ZrO_2, a) brut de fusion et b) après traitement thermique de ré-oxygénation

Une alumine spinelle devant correspondre à Al_2O_3-γ est également observée au MET *(Figure II-44)*. Cette phase γ est aussi identifiée par (Ando et Shiohara 1991) lors du refroidissement rapide de l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2. Ils ont pu identifier les phases de transition de l'alumine *γ et δ* avec des espacements inter-lamellaires proches de ceux relevés dans cette étude (40 nm).

Les acquisitions en EELS (*electron energy loss spectroscopy*) dans la région des faibles pertes d'énergie confirment la présence unique de M-ZrO_2 sur la poudre à réception avant fusion et de T-ZrO_2 après fusion dans les zones à microstructure lamellaire *(Figure II-45)*. En revanche, ces acquisitions sur les seuils L2L3 de Zr ne permettent pas l'observation d'un possible changement du degré d'oxydation. Il est possible que la réduction des oxydes soit très faible et donc difficilement quantifiable.

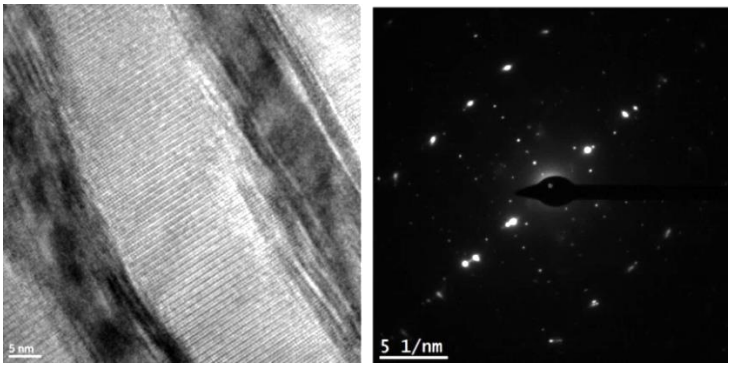
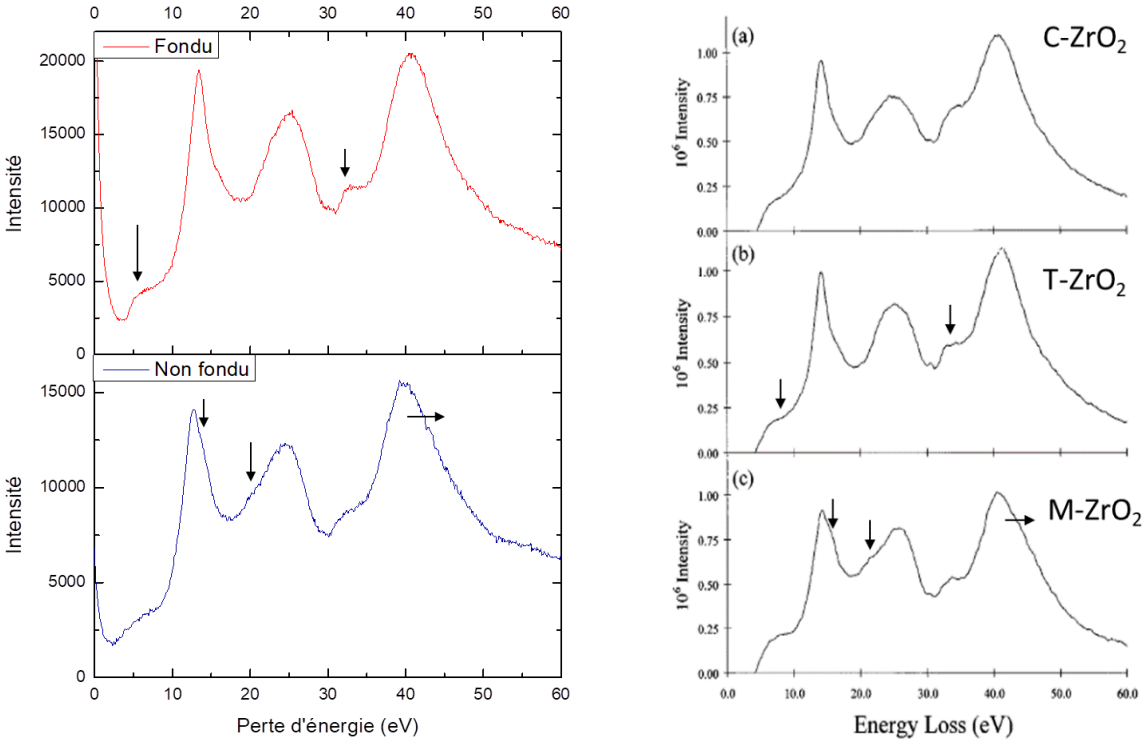


Figure II-44 : Observation par HRTEM du réseau de l'alumine en fond clair et cliché de diffraction associé, ne pouvant être attribué à la phase alpha.



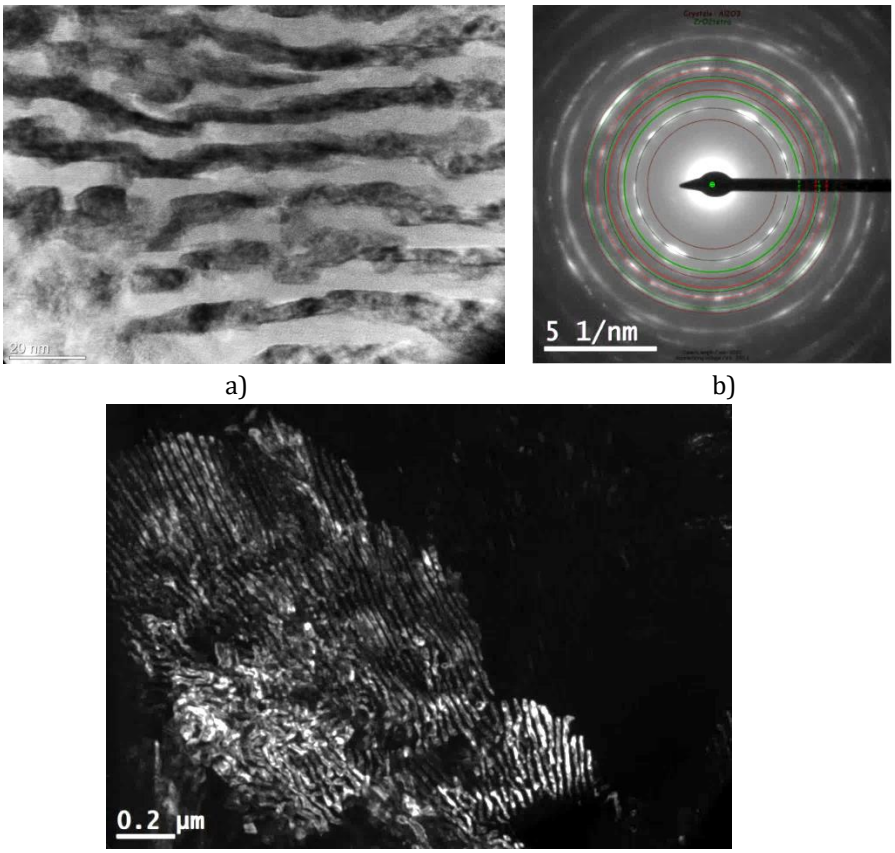
a) b)

Figure II-45 : Spectres en EELS dans la région des faibles pertes d'énergie pour ZrO_2 a) acquis à partir de la lame FIB sur échantillons brut de fusion (« fondu ») et avant fusion (poudre « non fondue ») et b)spectres théoriques des différentes structures cristallographiques de la zircone, d'après (McComb 1996)

L'observation des interfaces entre les phases de l'eutectique par HRTEM (*High resolution transmission electron microscopy*) sur un échantillon brut de fusion montre des interfaces ondulées et fibreuses entre les phases T-ZrO_2 et Al_2O_3−α *(Figure II-46)*. Les colonies sont localement désorientées, ce qui est mis en évidence par les tâches de diffraction formant des anneaux et par une observation en fond sombre où seule une colonie est imagée.

L'observation fine de l'eutectique fibreux, laisse apparaitre un grossissement des fibres sur les échantillons bruts de fusion. (Llorca et Orera 2006) mentionnent que les causes de ce grossissement ne sont pas clairement identifiées. Toutefois, il est possible que certaines fibres grossières croissent au profit des plus fines par un phénomène similaire au murissement d'Ostwald à la solidification, si la matrice alumineuse présente un « gradient de concentration » favorable à la diffusion entre les fibres de différents

rayons de courbure. Le grossissement serait induit par un défaut de migration : il s'agit d'une paire de terminaison et branchement au sein d'une fibre *(Figure II-47.a)*. Le branchement s'expanse et la terminaison se rétracte *(Figure II-47.b)*. Puis lorsque la courbure est maximale au niveau de la terminaison et minimale au branchement, il y a formation d'un bulbe grossier *(Figure II-47.c)*. Ce mécanisme pourrait intervenir dans les structures fibreuse et lamellaire mais le processus n'est pas clair car il est avant tout difficile de définir un eutectique purement fibreux ou lamellaire.



a) b) c)

Figure II-46 : Colonies eutectiques observées par a) HRTEM ; b) cliché de diffraction associé à – en rouge Al_2O_3–α et en vert T-ZrO_2 ; c) cliché en contraste de diffraction en champ sombre

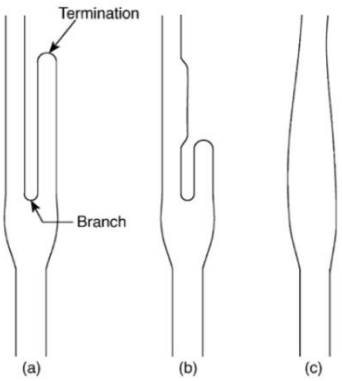


Figure II-47 : Schématisation d'un grossissement de fibres par défaut de migration dans les eutectiques fibreux a) géométrie initiale du défaut b) retrait progressif de la terminaison et expansion du branchement c) bulbe créé par le défaut de migration

La présence de carbone pourrait accentuer la réduction de l'alumine par carbothermalisation. La diffraction de l'alumine inter-lamellaire issue de la fusion par LBM d'une poudre d'alumine-zircone mélangée au carbone montre que cette phase pourrait coïncider avec une alumine réduite de type Al_3O_3 selon les paramètres présentés au *(Tableau II-11)* par (Dan'ko et al. 2008).

Tableau II-11 : Comparaison des distances inter-réticulaires inverses de l'Al_2O_3 mesurées dans cette étude et celles définies selon (Dan'ko et al. 2008) et plans cristallins associés (hkl)

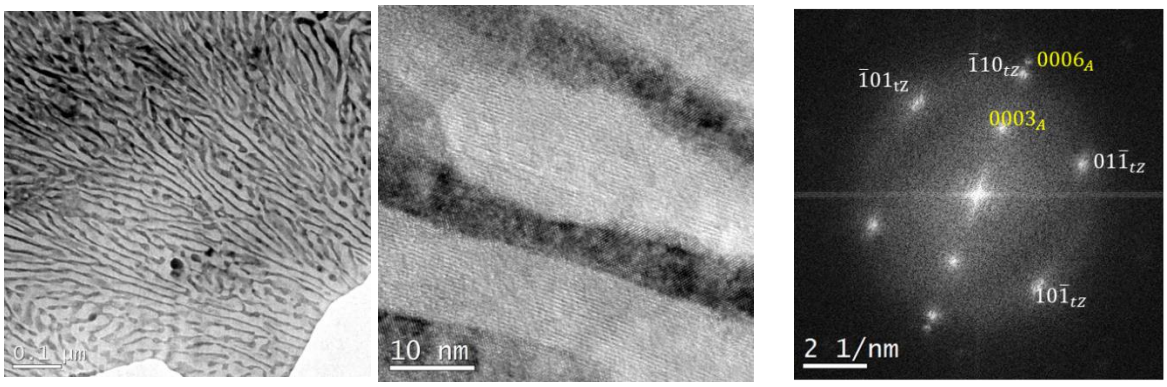
Plans Al_2O_3 (hkl)	$1/d_{hkl}$ [nm^{-1}] (Dan'ko et al. 2008)	$1/d_{hkl}$ [nm^{-1}] relevé
(220)	3,56	3,58
(040)	5,04	5,09
(440)	7,12	7,24

II.3.2.5. Relations d'orientation entre phases

Les morphologies lamellaires identifiées au *§II.3.2.1*, sont constituées de T-ZrO_2 et présentent les relations d'orientation associées aux axes de zone définis au *(Tableau II-12; Figure II-48 et Figure II-49)*.

Tableau II-12 : Parallélismes des plans de l'alumine et de la zircone observés selon deux axes de zone de la zircone au sein de l'eutectique lamellaire alumine-zircone

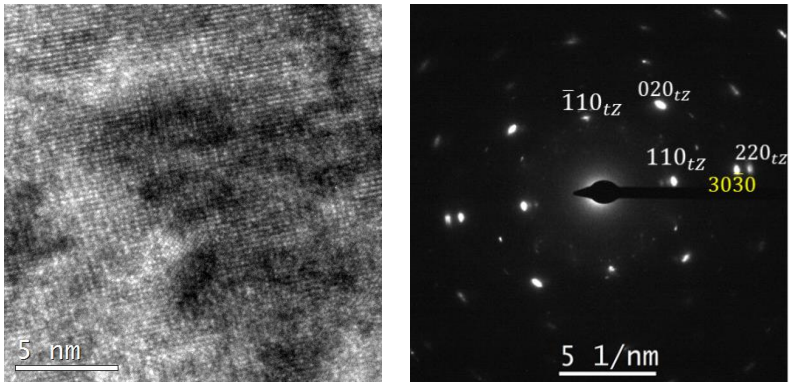
Plans parallèles	Axe de zone
$(0001)Al_2O_3$ // $\{110\}T-ZrO_2$	$[111]_{T-ZrO_2}$
$\{10\bar{1}0\}Al_2O_3$ // $\{110\}T-ZrO_2$	$[001]_{T-ZrO_2}$



a) b) c)

Figure II-48 : Observation au MET des colonies a) contraste de diffraction b) HRTEM c) transformée de Fourrier correspondante indiquant une relation d'orientation 0006_A // $\bar{1}10_{tZ}$ *et à un axe de zone* $[111]_{tZ}$

On note en *Figure II-49* que les tâches de diffraction forment des arcs, ce qui confirme que les colonies sont légèrement désorientées.



a) b)

Figure II-49 : Observation au MET des colonies a) HRTEM b) cliché de diffraction correspondant à une relation d'orientation $30\bar{3}0_A$ // 220_{tZ} *et à un axe de zone* $[001]_{tZ}$

Pour les arrangements type TDI, on identifie une zircone monoclinique avec pour relation d'orientation :

$$(0001)Al_2O_3 \;//\; (010)M-ZrO_2$$

Pour ce type d'arrangement TDI, les lamelles de zircone sont moins droites voire fibrillaires et plus instables (de plus forte énergie) que celles de la morphologie lamellaire précédente. Ceci doit être lié à une légère différence de composition chimique ou d'énergie interfaciale entre les deux morphologies. Pour la structure TDI, une énergie supérieure accroît les contraintes exercées sur les lamelles, ce qui facilite la transformation de la zircone tétragonale vers la zircone monoclinique au refroidissement.

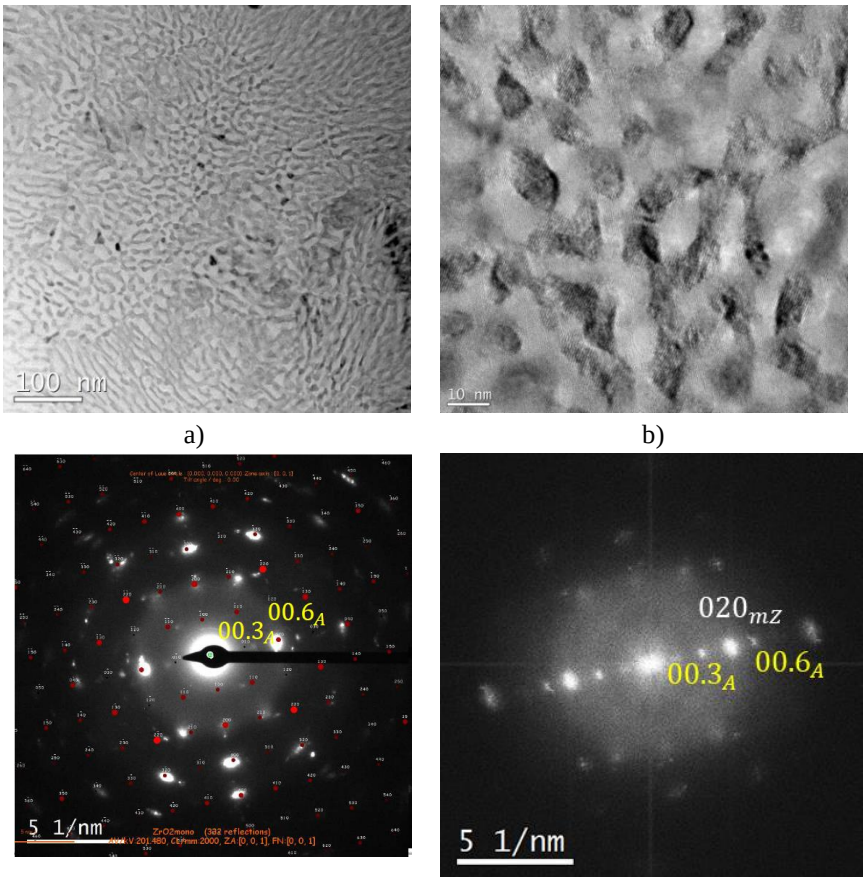


Figure II-50 : Observation au MET des structures TDI a) contraste de diffraction b) HRTEM c-d) cliché de diffraction et transformée de Fourrier correspondant à une relation d'orientation $\mathbf{0003_A // 020_{mZ}}$ *et à un axe de zone* $[\mathbf{001}]_{mZ}$ *(indexation du cliché de diffraction par le logiciel jems)*

Les relations d'orientation entre phases rencontrées dans la littérature en fonction des morphologies de croissance sont recensées par (Llorca et Orera 2006) - *Tableau II-13*.

Tableau II-13 : Relations d'orientation entre phases en fonction des morphologies, d'après (Llorca et Orera 2006)

Morphologie	Direction de croissance	Relations d'orientation	Sources
TDI	$(\bar{1}10\bar{2})A$ // $(\bar{1}10)YSZ$	$(\bar{1}10\bar{2})A$ // $\approx(\bar{1}10)YSZ$	(Larrea et al. 2002)
		$[02\bar{2}1]A$ // $\approx$ $[111]YSZ$	
Régulière complexe, Fibreuse	$[0001]A$ // $[001]YSZ$		zircone cubique (Léo Mazerolles, Michel, et Hÿtch 2005) (Revcolevschi, Dhalenne, et Michel 1988)
	$[01\bar{1}0]A$ // $[001]YSZ$	$(2\bar{1}\bar{1}0)A$ // $(110)YSZ$	
	$[0001]A$ // $\langle 011\rangle YSZ$		(Sayir et Farmer 2000)
Fibreuse ($\boldsymbol{mZ}$)	$[100]A$	$(001)A$ // $\langle 100\rangle mZ$	(Minford, Bradt, et Stubican 1979)
		$(110)A$ // $\langle 100\rangle mZ$	

Si on considère l'équivalence entre le système tétragonal et le système cubique de la zircone tel que :

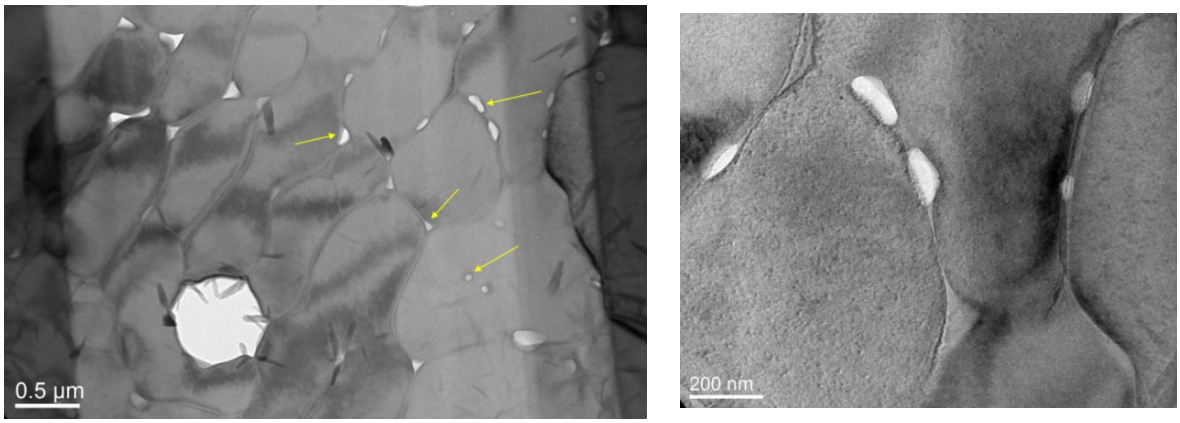
$$(110)T - ZrO_2 \sim \{200\}C - ZrO_2$$

alors, les relations d'orientation entre les phases relevées dans cette étude pour les colonies fibreuses correspondent à celles annoncées par (Léo Mazerolles, Michel, et Hÿtch 2005) – respectivement en rouge et en bleu dans le *Tableau II-13*.

II.3.3. Réactivité des absorbants

II.3.3.1. Carbone et SiC

L'observation d'une lame FIB d'un bain de fusion au sein d'un compact de poudre d'alumine mélangée au SiC-β indique la présence de silice sous forme d'une phase interdendritique et de phases intra-granulaires *(Figure II-51)*.



a) b)

Figure II-51 : Contraste de diffraction sur une lame FIB prélevée sur un monocordon au sein d'un compact de poudre d'alumine mélangée à 0,5%m.de SiC -β

Le caractère fortement covalent des liaisons Si-C confère au carbure de silicium une très bonne stabilité thermique jusqu'aux environs de 2700°C. Au-delà de cette température, le SiC se sublime en présence d'oxygène et se décompose en une phase vapeur riche en Si et en carbone solide. Sous l'effet de l'irradiation laser sous air, le SiC semble donc se décomposer en SiO gazeux puis se recombine en SiO_2 solide comme il a pu être observé lors de l'ablation laser par (Samant et Dahotre, 2009) :

$$2\,SiC_{(s)} + O_2(g) = 2SiO_{(g)} + 2C_{(s)} \qquad \text{II.2}$$

$$2SiO_{(g)} + O_{2(g)} = 2SiO_{2(s)}$$

$$2C_{(s)} + O_{2(g)} = 2CO_{(s)} \qquad \text{II.3}$$

$$2CO_{(g)} + O_{2(g)} = 2CO_{2(g)}$$

De la même façon, il est très probable que le carbone en tant qu'absorbant réagisse avec l'oxygène *(équation II.3)*. La formation de gaz carbonique CO_2 dans les bains par la présence de pores est visible après la fusion de compacts de poudre de céramique mélangée avec des absorbants, ce qui n'est pas le cas des compacts de poudre céramique de réception *(Figure II-53 et Figure II-52)*. De plus, la porosité au sein des bains augmente avec la teneur en absorbant. Aux fortes teneurs en absorbant, le bain « explose ». Pour les échantillons *EMSE* dont l'ajout de carbone est distribué de manière homogène, la teneur en carbone semble être déjà saturée pour un déliantage à 2% *(Figure II-53.h)*. Le noir de carbone utilisé pour les

mélanges est issu du craquage de l'acétylène et appartient à la famille des carbones aromatiques turbostatiques, il est composé de liaisons doubles C=C et simples C-C.

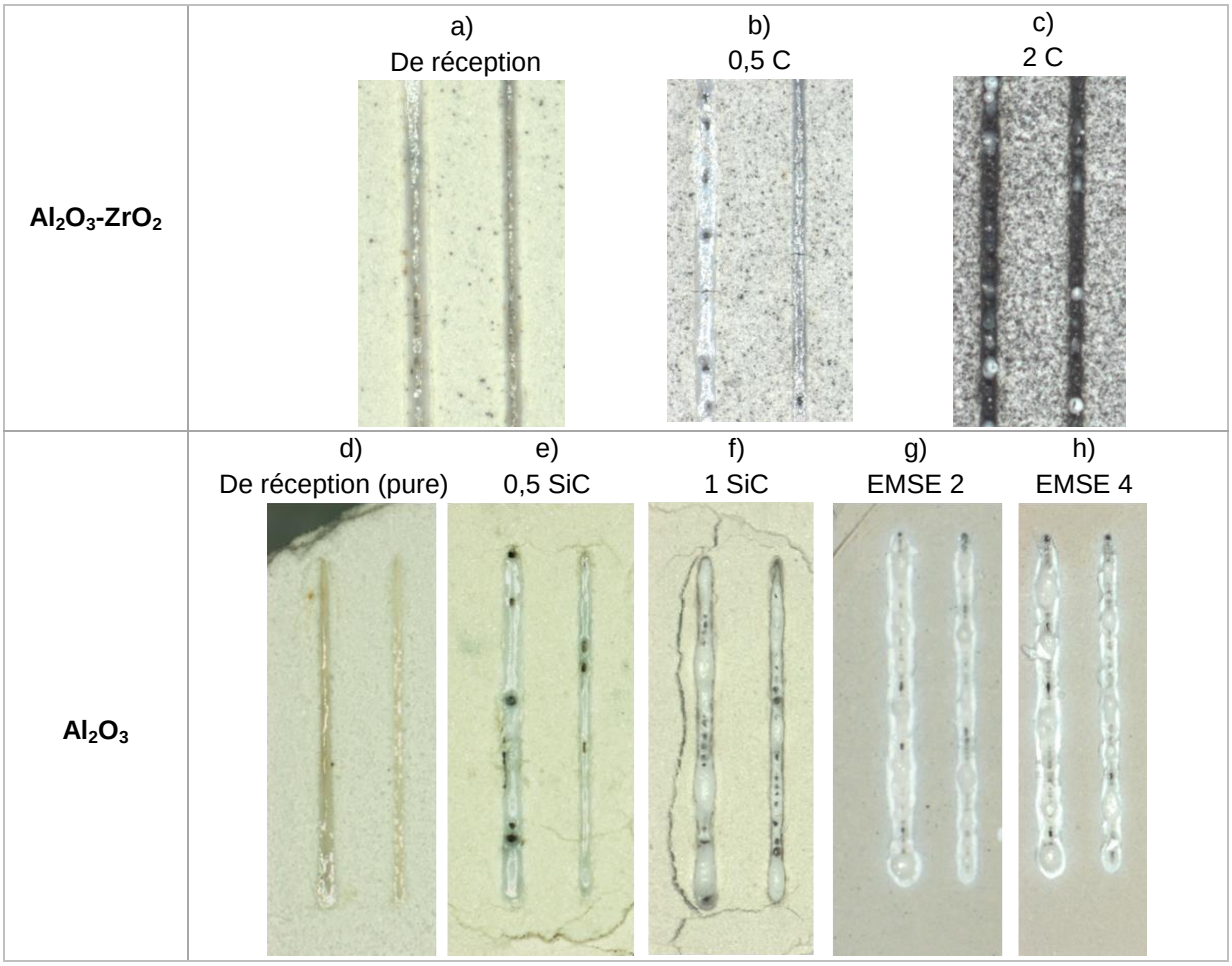


Figure II-52 : Monocordons sur des compacts de poudre vus de dessus à P42V50 et P42V100

On note que la température de sublimation du SiC est inférieure à celle des composés carbonés à liaisons simples C-C et encore plus significativement vis-à-vis des liaisons doubles C=C *(Tableau II-14)*. Ceci indique une contribution moins persistante du SiC à l'absorption des céramiques auquel il est mélangé, à condition que l'échauffement des deux absorbants soit similaire dans le cas où l'absorption du SiC et du Carbone seraient proches.

Tableau II-14 : Propriétés des liaisons atomiques au sein des absorbants

Liaisons	Energie de dissociation ($kJ.mol^{-1}$)	Température de sublimation (°C)
Si-C	360	2700
C-C	348	3825
C=C	610,3	4200

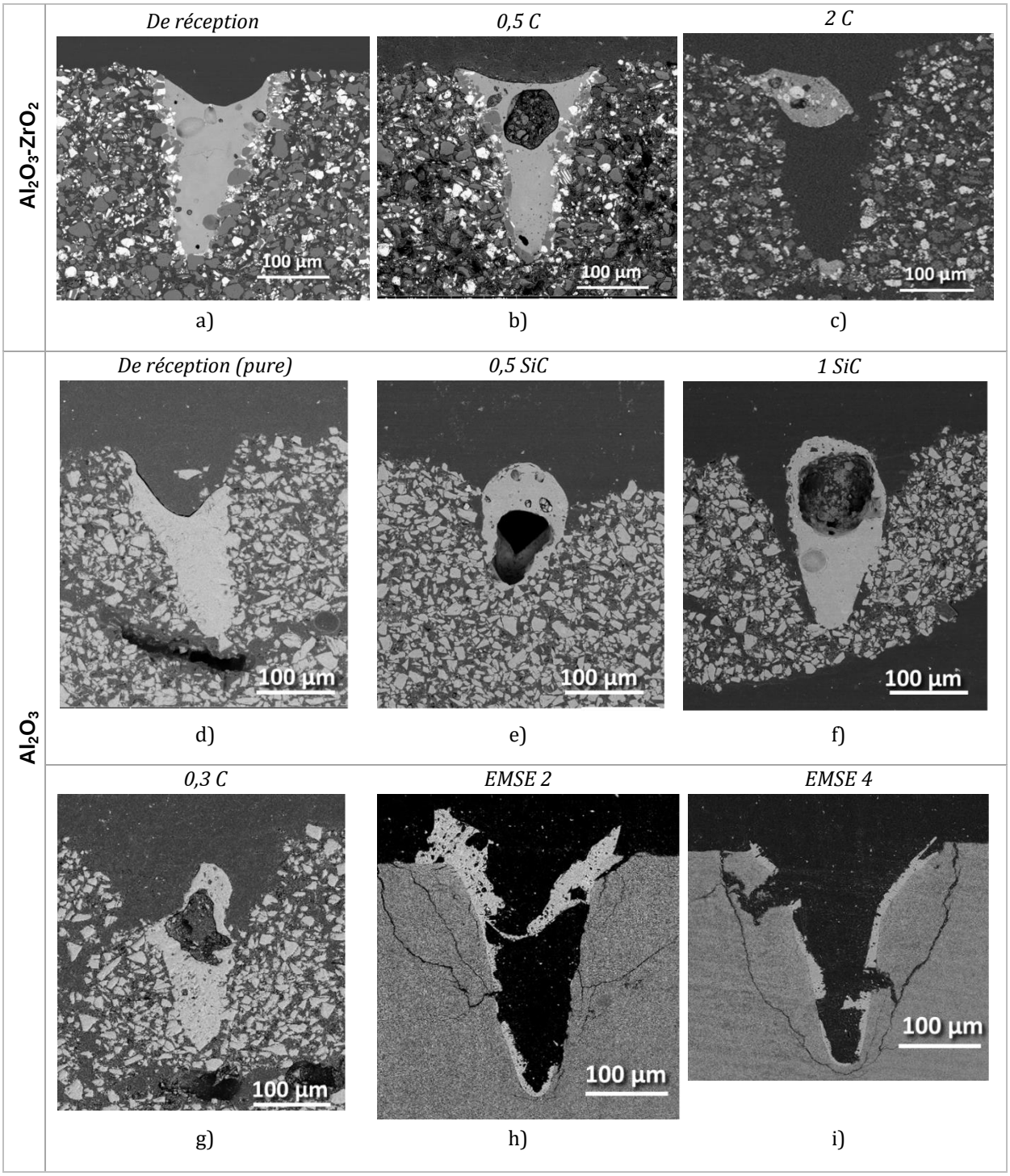
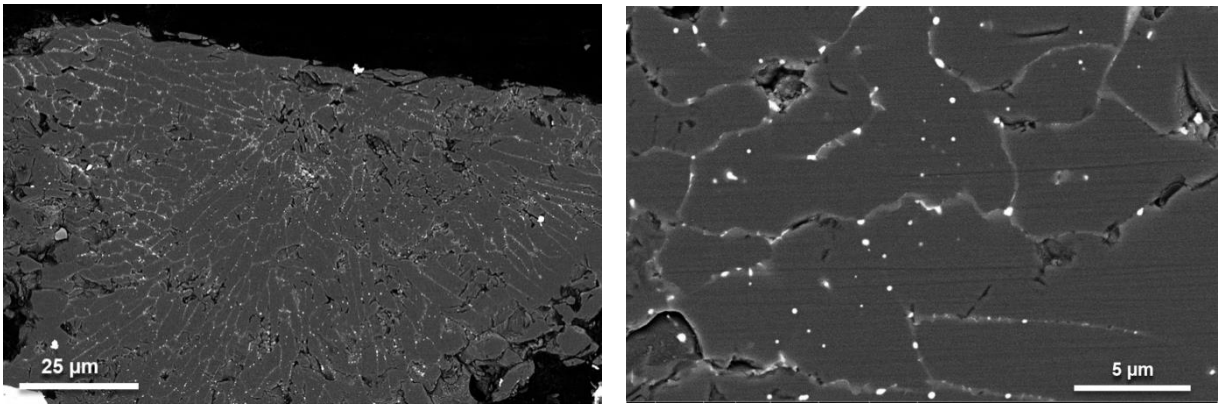


Figure II-53 : Sections transverses des bains issus des compacts de poudre fondue à P84V200

On note par ailleurs que la poudre EMSE synthétisée par « spray-drying » contient du carbone suite au déliantage. Il s'agit alors là non pas de noir de carbone mais de composés à chaînes carbonées plus courtes composées de liaisons simples ou doubles. Cette différence indique une dissociation à plus basse température pour le carbone contenu dans les poudres EMSE que pour le noir de carbone utilisé dans les mélanges des autres poudres. Cette dissociation à plus basse énergie, ainsi que la répartition homogène du carbone dans la poudre EMSE et la fine taille de grains expliqueraient la forte explosion des bains dans les compacts de poudre *(Figure II-53.h-i)*.

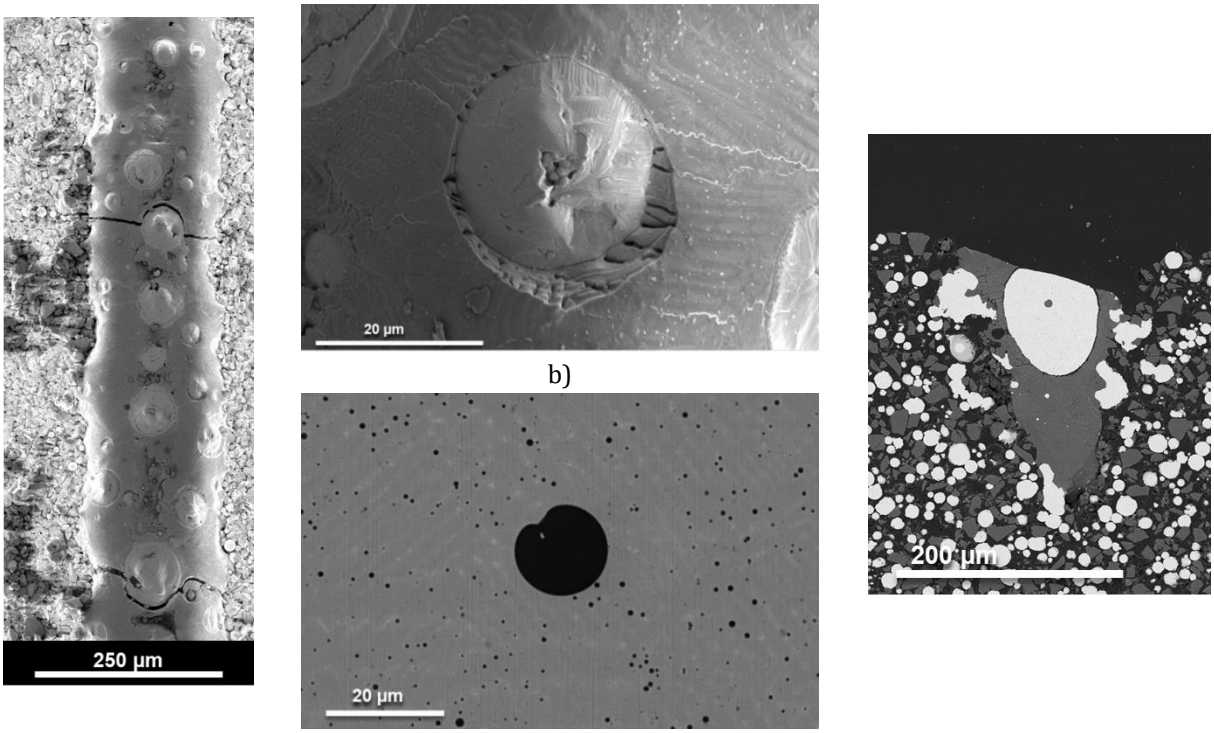
II.3.3.2. Mélanges céramique-métal

Les compacts de poudres {alumine+Inconel 625} présentent, après fusion sous argon, une alumine à microstructure dendritique avec une phase grisâtre et de fins précipités inter-dendritiques riches en nickel *(Figure II-54)*. La phase grisâtre interdendritique pourrait correspondre à une spinelle $NiAl_2O_4$. Néanmoins, les teneurs en particules métalliques choisies *(§II.2.2.2)* sont excessives : une saturation de liquide métallique au sein des monocordons apparaît. Des mares riches en éléments métalliques, issues de la fusion et solidification de l'Inconel 625 sont présentes en excès à la surface des monocordons *(Figure II-55.a-c).* Ces mares présentent des traces d'ébullition sous forme de pores de petites et grandes dimensions *(Figure II-55.d)*.



a) b)

Figure II-54 : Bain de fusion issu du mélange de poudre d'alumine avec 10%vol d'Inconel 625



a) b) d) c)

Figure II-55 : Monocordon issu de la fusion du mélange d'un lit de poudre d'alumine mélangé à 35%vol d'Inconel 625 déposé sur un substrat fritté de même nature

a-b) vues du dessus c) vue en coupe transverse d) grandissement de la partie claire de la vue en coupe transverse du bain

II.4. Fissuration

La morphologie en colonies solidifiée par LBM présente des zones de faiblesses telles que des pores et des microfissurations inter-colonies (Pastor et al. 2001) - *Figure II-56*. Pour les structures très fines à grains très fins, en accord avec la loi de Hall-Petch, la limite d'élasticité et la résistance à la corrosion seraient néanmoins accrues. Cet effet peut être limité à une taille minimale en-dessous de laquelle l'effet bénéfique est annulé (Hall-Petch inverse).

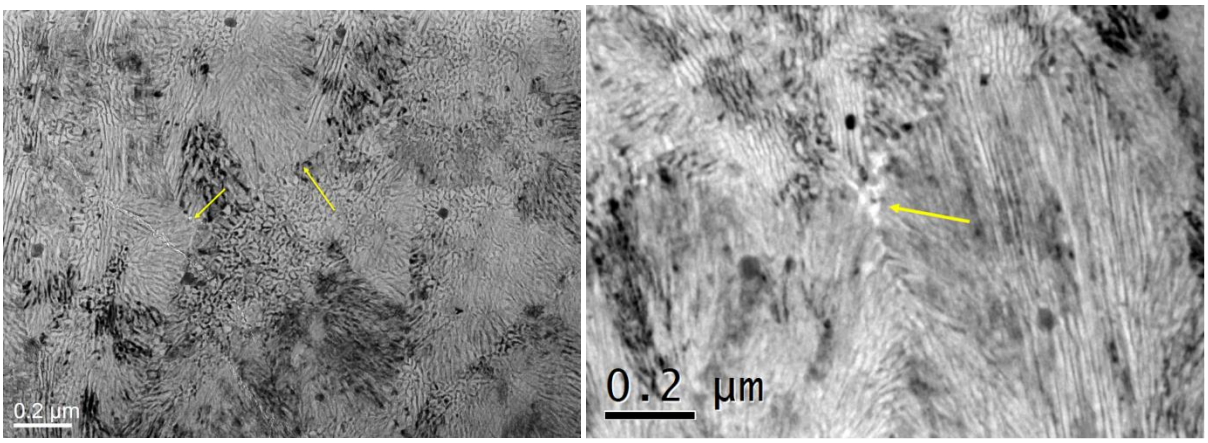


Figure II-56 : Défauts inter-colonies observés sur une pièce 3D fabriquée en Al_2O_3-ZrO_2 par LBM

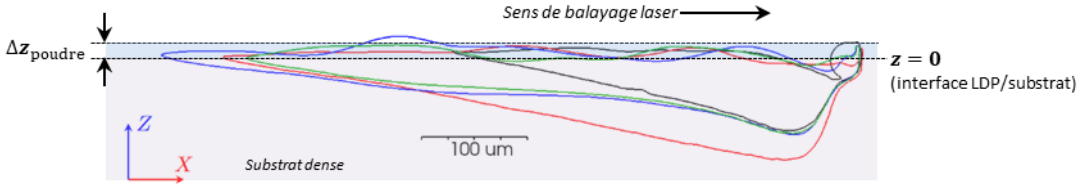
Les monocordons présentent de nombreuses fissures transverses à espacement régulier qui dépendent des paramètres du procédé *(Figure II-57)*. Ce phénomène est caractéristique de la fissuration à froid et est lié aux contraintes résiduelles issues du retrait linéaire et longitudinal contraint suivant la direction de balayage lors du refroidissement des monocordons en deçà de la température de fusion T_f.

Figure II-57 : Monocordons obtenus par fusion d'un lit de poudre d'alumine mélangé au carbone (0,1%m. C) déposé sur un substrat d'alumine dense pour une vitesse de balayage croissante de gauche à droite

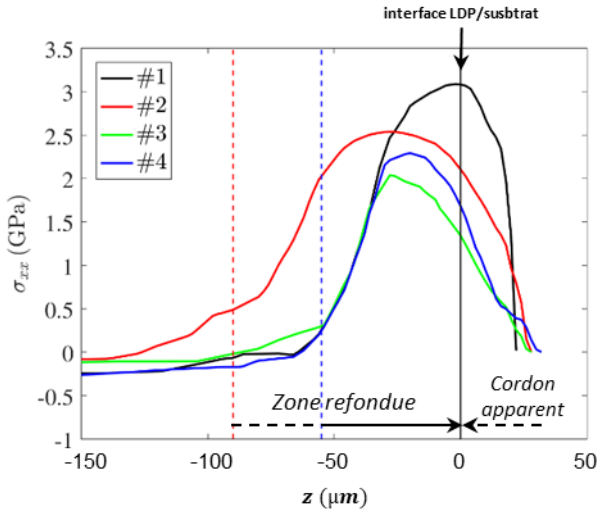
La mise en place d'un pré/post-chauffage couplé une étude paramétrique adaptée à cette nouvelle configuration de fusion pourra permettre une diminution des gradients thermiques et des vitesses de solidification et ainsi limiter la fissuration des monocordons à l'élaboration. Le pré/post-chauffage engendrera également une variation morphologique et dimensionnelle de la microstructure *(Figure II-26)*, qui aura également un effet sur la tenue mécanique.
Un travail sur la composition du matériau peut également améliorer la fissuration et la morphologie de l'eutectique. L'ajout de l'oxyde Y_2O_3 a déjà été identifié dans la littérature : il peut servir de stabilisant à la zircone et/ou former un eutectique ternaire alumine-YAG (grenat d'yttrium)-zircone (Cherif 2016;

Londaitzbehere 2016; Waku 2011; Llorca et Orera 2006). Un mélange d'une poudre céramique avec une poudre métallique judicieusement choisie comme celle investiguée dans le mélange alumine-Inconel 625 permettra très certainement d'accommoder les contraintes internes. La fissuration peut-être aussi minimisée par un design géométrique des pièces approprié (suppression des facteurs de concentration de contraintes) ou encore par l'utilisation d'un substrat poreux (compact de poudre) permettant de mieux accommoder le retrait à la solidification en deçà de T_f.

Au cours de l'étude CEFALE, (Chen 2018) a comparé la configuration standard sans chauffage auxiliaire au laser de fusion (**#1**) avec celle d'un chauffage coaxial (x=0µm) par un laser auxiliaire Yb:YAG (#2), et celles de post-chauffages décalés de x=-250 µm à l'arrière du bain de fusion réalisé avec un laser de type Yb:YAG (#3) ou de type CO_2 (#4) . Ses calculs hydrodynamiques par simulation numérique mettent en évidence la différence de morphologies des bains associées à ces différentes configurations : les bains sont plus profonds et/ou plus longs que celui de la configuration standard et les vitesses de refroidissement diminuent *(Figure II-58.a)*. La distribution des contraintes longitudinales σ_{xx} dans la profondeur du bain est comparée pour les différentes configurations et pour une température en surface de 500°C *(Figure II-58.b)*. Les configurations avec préchauffage (#2 et #4) montrent une décroissance de la contrainte maximale de traction. C'est pour la configuration #3 que la valeur maximale de σ_{xx} est la plus faible. Ainsi, le chauffage par un laser auxiliaire Yb:YAG appliqué dans la zone de refroidissement en queue de bain semble être le plus efficace pour réduire les contraintes maximales σ_{xx} de traction dans la profondeur du bain.



a)



b)

Figure II-58 : Comparaison de différentes configurations de chauffage #1(noir) #2(rouge) #3 (vert) et #4 (bleu) à t=8ms
a) morphologies des bains de fusion en coupe longitudinale
b) distributions des contraintes longitudinales σ_{xx} dans la profondeur du bain, les lignes en pointillés représentent les limites des zones refondues (fond du bain en rouge pour #2 et en bleu pour les autres configurations), d'après (Chen 2018)

II.5. Conclusion du Chapitre II

Les propriétés intrinsèques des céramiques oxydes en font de bonnes candidates pour une utilisation à haute température et dans des environnements critiques. L'eutectique alumine-zircone est l'une d'entre elles, à point de fusion relativement bas, qui présente en plus des propriétés mécaniques et microstructurales intéressantes pour la fusion par LBM. Leurs propriétés antagonistes de tenue mécanique à froid et tenue au fluage pourraient être garanties par une texturation morphologique. La ténacité pourrait quant à elle être améliorée par le biais de la transformation de phase de la zircone.

Parmi les **poudres** choisies, les alumine-zircone présentent à l'origine des impuretés absorbantes telles que le carbone. Bien que présents en faible quantité, ces éléments peuvent impacter les propriétés optiques de ces matériaux lorsqu'ils sont irradiés par un rayonnement laser Yb :YAG. L'alumine de l'étude, plus pure, servira pour l'étude de l'effet de la nature et teneur en absorbant sur les propriétés optiques.
La porosité des lits de poudre broyée est relativement élevée, de l'ordre de 50% à 60% ce qui implique des retraits importants des bains à la solidification. L'addition d'absorbants provoque une dégradation des propriétés des poudres broyées en termes de largeur de la répartition granulaire, d'homogénéité, de coulabilité et de porosité des lits de poudre. On note que l'effet du SiC-β comparé au carbone est moindre vis-à-vis de ces caractéristiques.
Les **absorbants** jouent le rôle de sources pour l'absorption du rayonnement et la restitution de l'énergie sous forme de chaleur. Cette transmission de chaleur aux particules céramiques se fait par conduction et rayonnement dans un volume de poudre donné autour de la source. La taille des sources, leur nombre et répartition volumique ont donc un impact important sur l'absorption du rayonnement et la transmission de la chaleur. Or, il a été constaté que la répartition volumique de ces sources dans le lit de poudre est aléatoire et hétérogène, principalement avec le noir de carbone comme absorbant (dont la taille de particules est plus grossière que pour le SiC-β). L'étude de l'interaction laser-matière pour différentes teneurs et natures d'absorbant vise à définir leur pouvoir absorbant et leur concentration idéale. Un compromis doit donc être fait de manière à ne pas introduire un nombre excessif de sources de trop grande taille qui déstabiliseraient le bain liquide par une transmission trop importante de chaleur. Il faudra toutefois, maintenir une quantité suffisante de sources espacées de manière homogène pour transférer du mieux possible la chaleur aux particules céramiques oxydes.

Les **microstructures** eutectiques solidifiées par LBM dépendent, au sein même d'un monocordon, des valeurs du gradient thermique et de la vitesse de solidification qui sont fonction des paramètres du procédé. L'espacement inter-lamellaire est nanométrique et dépend clairement de la vitesse de balayage. L'eutectique obtenu forme des colonies principalement lamellaires ou de structures 3D complexes dites TDI. La solidification permet de plus une stabilisation partielle de la zircone en phase tétragonale malgré l'absence de stabilisants. Les relations d'orientation entre l'alumine et la zircone sont cohérentes avec les résultats de la littérature. Elles sont liées à la morphologie de l'eutectique et à la structure cristallographique de la phase de la zircone, plutôt tétragonale pour l'eutectique lamellaire ou fibreux et monoclinique pour l'eutectique de type TDI.
Après fusion laser sous air, plusieurs phases sont détectées par DRX et MET. On recense l'Al_2O_3-α, l'alumine de transition Al_2O_3-γ et les zircones tétragonale et monoclinique. On identifie également une phase qui pourrait correspondre à une alumine réduite de type Al_3O_3 favorisée par la présence de carbone. La forme des bains de fusion très allongée et très profonde est très différente de celle des métaux qui sont opaques au rayonnement laser et bien meilleurs conducteurs thermiques que les céramiques oxydes. Les absorbants présents en trop grande quantité provoquent un éclatement du bain. De plus, dans le cas du SiC-β, on observe après fusion, sa décomposition en SiO_2 qui pourrait être néfaste pour la tenue mécanique à chaud des pièces. Le mélange alumine-Inconel 625 présente au niveau microstructural un intérêt à condition de limiter la fraction volumique de particules métalliques en deçà de 10%vol. En effet, il est clairement montré que l'Inconel 625 peut parfaitement jouer le rôle d'absorbant et qu'il mouille bien

l'alumine solide puisqu'il pénètre entre les dendrites d'alumine. Cependant, il reste à définir la proportion d'Inconel 625 qu'il convient d'ajouter pour transmettre suffisamment de calories afin de fondre l'alumine sans qu'un excès de liquide d'Inconel 625 se solidifie au sein du bain d'alumine.

Enfin, la **fissuration** transverse des monocordons pourrait être minimisée par la stabilisation de la phase tétragonale de la zircone par l'ajout d'Yttrine et par la mise en place d'un post-chauffage. Cette étape est encourageante relativement à la faisabilité de ces céramiques eutectiques par LBM.

CHAPITRE III

RELATIONS ENTRE PROPRIETES RADIATIVES ET OPTIQUES

Le mode de propagation du rayonnement laser au sein des matériaux dépend de leur nature absorbante ou transparente (Chapitre I), mais également de leur caractère optique homogène ou hétérogène à l'échelle de la longueur d'onde du rayonnement incident. Une hétérogénéité optique (porosité ou inclusion) au sein d'un milieu homogène qui constitue la matrice, est définie par un indice optique différent de celui de cette matrice. Au sein du lit de poudre, la dualité particule-porosité en fait un milieu hétérogène. La configuration de travail du LBM dont le rayonnement est collimaté impose trois composantes : le lit de poudre à caractère hétérogène, le substrat dense et le liquide à caractère homogène. La caractérisation optique du procédé LBM nécessite alors la description de ces deux types de milieu.

La mesure des propriétés radiatives permet de remonter directement aux propriétés optiques des échantillons, à travers les lois de l'optique appropriées à la nature de l'échantillon. Ainsi, l'objectif de ce chapitre est de présenter les théories de la propagation d'un rayonnement dans un matériau diélectrique, dans le cas homogène et dans le cas hétérogène. Ces théories mettent en lien les propriétés radiatives avec les propriétés optiques des échantillons. Pour un milieu solide homogène (dense et sans défauts), les relations de l'optique géométrique s'appliquent. Seuls les indices optiques de réfraction n et d'extinction κ_e du matériau suffisent pour déterminer les propriétés optiques de transmission et de réflexion. Le milieu optiquement hétérogène, nettement plus complexe à traiter fait appel à la théorie de Mie appliquée à un ensemble de particules ainsi qu'à la résolution de l'équation de transfert radiatif (ETR). Il faut alors examiner la part d'absorption et de diffusion entre le rayonnement électromagnétique et les hétérogénéités. La nature des interactions dépend des caractéristiques des hétérogénéités : leur taille, leur nature (contraste optique), leur forme et leur distribution spatiale.

De plus, les propriétés radiatives que nous cherchons à mesurer dans le cas du LBM vont dépendre des autres caractéristiques des milieux étudiés et des paramètres du procédé LBM tels que la rugosité des particules ou du substrat, la compacité du lit de poudre, la température (puissance), etc. Une revue bibliographique des quelques résultats de mesures optiques de la littérature sera entreprise afin d'établir les premières corrélations entre les propriétés des milieux et leur propriétés radiatives, ce qui servira de guide pour les mesures réalisées au Chapitre IV.

Sommaire du Chapitre III

III. INTERACTION LASER-MATIERE : RELATIONS ENTRE PROPRIETES RADIATIVES ET OPTIQUES

III.1 PROPAGATION DU RAYONNEMENT ELECTROMAGNETIQUE DANS UN MATERIAU HOMOGENE ... 110
III.1.1 Polarisation électromagnétique ... 110
III.1.2 Relation entre propriétés optiques et diélectriques ... 110
III.1.3 Relation entre propriétés radiatives et propriétés optiques ... 116
III.1.3.1 Incidence normale ... 117
III.1.3.2 Lame d'épaisseur finie ... 118
III.1.3.3 Milieu multicouche ... 120
III.2 PROPAGATION DU RAYONNEMENT ELECTROMAGNETIQUE DANS UN MILIEU HETEROGENE ... 123
III.2.1 Phénomène de diffusion ... 124
III.2.1.1 Par une particule unique ... 124
III.2.1.2 Par un ensemble de particules ... 125
a) Diffusion simple ... 126
b) Diffusion multiple ... 128
c) Diffusion dépendante et indépendante ... 128
III.2.1.3 Propriétés optiques et diélectriques pour les milieux effectifs ... 129
III.2.2 Equation du transfert radiatif ... 131
III.2.3 Méthodes de résolution de l'ETR ... 131
III.2.3.1 Nomenclature ... 132
III.2.3.2 Méthode à deux flux : Kubelka-Munk ... 132
a) Cas opaque ... 134
b) Cas translucide ... 135
III.2.3.3 Correction de Saunderson pour Kubelka-Munk ... 137
III.2.3.4 Méthode à 4 flux de Gouesbet-Maheu/Lorentz-Mie ... 139
III.2.3.5 Correction de l'incidence collimatée au lieu de l'incidence diffuse pour K-M ... 141
III.2.3.6 Expression des coefficients de réflexion aux interfaces ... 143
III.2.3.7 Lien entre les coefficients extrinsèques et intrinsèques ... 144
III.2.3.8 Cas des mélanges ... 145
III.3 INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES DES MILIEUX SUR LES PROPRIETES RADIATIVES : ETAT DE L'ART 146
III.3.1 Température et paramètres de premier ordre ... 148
III.3.1.1 Matériaux denses (massifs) ... 148
III.3.1.2 Configuration LBM : lits de poudre déposés sur substrats denses ... 152
III.3.2 Lien entre milieu granulaire et milieu dense ... 153
III.3.3 Rugosité d'un substrat massif ... 155
III.3.4 Taille des particules et compacité ... 155
III.4 CONCLUSION DU CHAPITRE III ... 159

III.1 Propagation du rayonnement électromagnétique dans un matériau homogène

III.1.1 Polarisation électromagnétique

Comme vu au *Chapitre I*, le champ électrique $\vec{E_i}$ de l'onde électromagnétique incidente se propageant dans un milieu homogène interagit avec les charges électriques (électrons, ions, moments dipolaires), et les pousse à se déplacer légèrement. Le déplacement électrique $\vec{D}$ s'exprime selon la loi de l'électromagnétisme :

$$\vec{D} = \varepsilon_0.\vec{E_i} + \vec{P} = \varepsilon_0.\varepsilon_r.\vec{E_i} \qquad \text{III.1}$$

$\vec{P}$ est la polarisation électrique induite par la modification des barycentres des charges positives et négatives suite au déplacement de ces dernières.

$$\vec{P} = \varepsilon_0.\chi_e.\vec{E_i} \qquad \text{III.2}$$

ε_0 est la permittivité diélectrique du vide et ε_m celle du matériau. χ_e est la susceptibilité électrique du matériau, cette dernière représente la capacité du nuage de charge à se déformer (à se polariser sous l'effet de $\vec{E_i}$). ε_r est la permittivité diélectrique relative encore appelée **fonction diélectrique du matériau**, il s'agit d'une grandeur sans dimension. Elle décrit la réponse d'un matériau à la propagation d'une onde électromagnétique et vaut :

$$\varepsilon_r = (1 + \chi_e) = \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0} \qquad \text{III.3}$$

III.1.2 Relation entre propriétés optiques et diélectriques

Dans un matériau diélectrique, le faisceau incident, bien que partiellement réfléchi, pénètre en grande partie dans le matériau induisant une réponse diélectrique et magnétique. Le champ électrique d'une onde électromagnétique monochromatique se propageant dans un matériau s'exprime comme solution de l'équation de propagation du champ électrique dans un matériau :

$$\vec{E_t} = \vec{E_i}.e^{-i.(k.z-\omega.t)} \qquad \text{III.4}$$

ω est la pulsation de l'onde, z sa direction de propagation et $k = 2\pi/\lambda$ le vecteur d'onde. On verra que ce vecteur d'onde est relié à l'**indice d'extinction** k_e. Cet indice est fonction de la longueur d'onde incidente λ et de la température T.

n est l'**indice de réfraction** du matériau dans lequel l'onde électromagnétique se propage. Egalement fonction de λ et T, il s'exprime comme le rapport de la vitesse de l'onde dans le vide c_0, et de celle dans le matériau c_m tel que :

$$n = \frac{c_0}{c_m} = \left(\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0}.\frac{\mu_m}{\mu_0}\right)^{\frac{1}{2}} \qquad \text{III.5}$$

μ_m et μ_0 représentent respectivement la perméabilité magnétique du matériau et celle du vide. n est toujours supérieur à l'unité car la vitesse de propagation de l'onde électromagnétique au sein du matériau est toujours inférieure à sa vitesse de propagation dans le vide. En *Figure III-1* sont présentés les indices de réfraction de l'alumine et de la zircone. Les valeurs de la littérature sont relativement dispersées pour la zircone à température ambiante. En effet, la nature de cet oxyde n'est pas toujours bien définie. (Weber 2003) précise cependant que l'ajout d'oxyde d'yttrium à la zircone n'altère pas de manière significative l'indice de réfraction. Il semblerait de manière globale que l'indice optique tende à diminuer avec l'augmentation de la température.

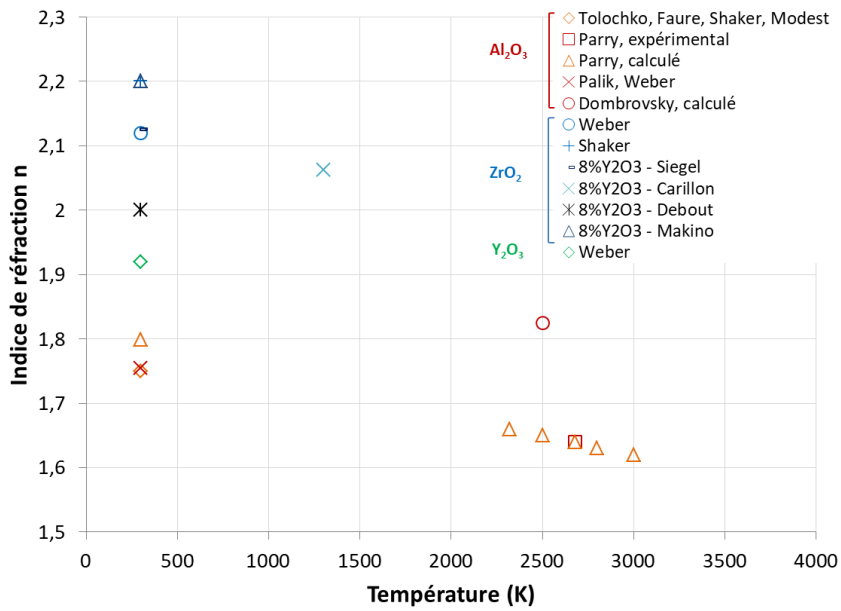


Figure III-1 : Valeurs de l'indice de réfraction n issues de la littérature pour λ=1µm d'après (Tolochko et al. 2000; Faure 2004; Shaker 2017a; Modest 2013; Bityukov et Petrov 2013; Palik 2003; Weber 2003; Carillon 2007; Debout 2007)

Les valeurs complémentaires pour les métaux et absorbants composés d'un seul constituant utilisés dans cette étude sont données au *Tableau III-1* pour la longueur d'onde d'intérêt. Les éléments métalliques non alliés présentent des indices de réfraction supérieurs aux composés céramiques alumine, zircone, yttrine ou encore au carbure de silicium et au carbone.

Tableau III-1 : Valeurs de l'indice de réfraction n pour λ=1 µm

Matériau	n	Référence
Fe	3,23	(Bass 1995)
Ni	2,85	
Co	2,80	(Johnson et Christy 1974)
Cr	3,43	
Carbone (graphite)	2,20	(Shaker 2017)
Verre BK7	1,50	
SiC-α (hc) ou SiC-β (fcc)[1]	2,49	(Pégourié 1988)
	2,58	(Palik 2003)

Le rapport des perméabilités μ_m et μ_0, $\mu_r = \frac{\mu_m}{\mu_0}$, est la perméabilité magnétique relative du matériau qui représente sa faculté à modifier le champ magnétique. Ainsi, en remplaçant dans l'*équation (III.5)* avec cette dernière relation et l'*équation (III.3),* on en déduit que :

$$n = \sqrt{\mu_r . \varepsilon_r} \qquad \text{III.6}$$

Or, pour un matériau diélectrique $\mu_0 \approx \mu_m$, et donc :

$$\boldsymbol{n \approx \sqrt{\varepsilon_r}} \qquad \text{III.7}$$

(Ashby, Shercliff, et Cebon 2013) montrent que les polymères et les matériaux très purs comme le diamant ou le silicium vérifient très bien cette approximation. En revanche, c'est moins le cas des verres dopés, les dopants ayant un impact plus marqué sur les constantes diélectriques que sur les indices de réfraction.

[1] *L'indice de réfraction du SiC-β est équivalent à celui du SiC-α lorsque la lumière est polarisée perpendiculairement à l'axe $\vec{c}$ du cristal dans le proche IR (Hofmeister et al. 2009).*

Le phénomène de polarisation diélectrique n'est pas instantané. Les équations étant linéaires, cela se traduit, pour une onde monochromatique plane, par un déphasage entre le champ électrique et l'induction électrique ou encore par une permittivité relative complexe $\tilde{\varepsilon}_r$ que l'on écrit traditionnellement sous la forme :

$$\tilde{\varepsilon}_r = \varepsilon_r + i.\varepsilon_r' \qquad \text{III.8}$$

$$\text{avec} \qquad \varepsilon_r = n^2 - \kappa_e{}^2 \qquad \text{III.9}$$

$$et \qquad \varepsilon_r' = 2\kappa_e.n \qquad \text{III.10}$$

Puisque la permittivité relative d'un matériau est une grandeur complexe *(équation III.8)*, d'après l'approximation *(équation III.7)*, l'indice optique associé à ce même matériau l'est également. On exprime alors l'indice de réfraction complexe $\tilde{n}$, de partie réelle n et partie imaginaire κ_e *(équation III.11)* tel que :

$$\tilde{n} = n + i.\kappa_e \qquad \text{III.11}$$

On peut relier les composantes de l'indice de réfraction complexe n et κ_e *(équation III.11)*, aux propriétés intrinsèques électriques et magnétiques du matériau d'après (Gale 2004) :

$$n^2 = \frac{1}{2}[\varepsilon_r + |\tilde{\varepsilon}_r|] = \frac{1}{2}\left[\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0} + \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_e.\lambda}{2\pi c_0.\varepsilon_0}\right)^2}\right] \qquad \text{III.12}$$

$$\kappa_e{}^2 = \frac{1}{2}[-\varepsilon_r + |\tilde{\varepsilon}_r|] = \frac{1}{2}\left[-\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0} + \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_0}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_e.\lambda}{2\pi c_0.\varepsilon_0}\right)^2}\right] \qquad \text{III.13}$$

σ_e étant la conductivité électrique du matériau.

Dans le cas d'un matériau diélectrique, on peut écrire que le vecteur d'onde $k = \frac{n.\omega}{c_0}$, et donc l'*équation (III.4)* prend la forme suivante :

$$\vec{E_t} = \vec{E_i}.e^{\,i.\omega.\left(t - \frac{n.z}{c_0}\right)} \qquad \text{III.14}$$

En considérant que cette onde se propage dans un milieu d'indice complexe ñ, l'expression du champ électrique vaut alors :

$$\vec{E_t} = \vec{E_i}.e^{\,i.\omega.\left(t - \frac{\tilde{n}.z}{c_0}\right)}$$

Et d'après l'*égalité (III.11)* :

$$\vec{E_t} = \vec{E_i}.\exp\left(-i.\omega.\left(t - \frac{n.z}{c_0}\right)\right).\exp\left(-\frac{\omega.\kappa_e.z}{c_0}\right) \qquad \text{III.15}$$

Ainsi, la propagation de la lumière dans la matière suivant l'axe z est affectée de deux manières. D'une part, le premier terme indique un ralentissement de l'onde électromagnétique. Un changement de vitesse de l'onde s'opère au passage d'une interface et se traduit par un phénomène de réflexion et de réfraction, associé à un changement de direction du rayon lumineux. L'indice de réfraction n décrit alors la propagation du rayonnement. D'autre part, le deuxième terme caractérise l'amortissement de l'onde. Après la traversée d'un rayon lumineux sur une épaisseur δ de matière, l'intensité diminue d'un facteur exponentiel en (-$\kappa_e z$). L'indice d'extinction κ_e traduit l'amortissement le long de l'épaisseur. Cet indice est lié au **coefficient d'absorption linéaire** α_{abs} de la loi de Beer-Lambert, exprimé en mm^{-1} par :

$$\alpha_{abs} = 2\omega.\frac{\kappa_e}{c_m} = \frac{4\pi.\kappa_e}{\lambda} \qquad \text{III.16}$$

On définit également la **distance optique**, épaisseur de peau ou profondeur de pénétration δ_{abs} :

$$\delta_{abs} = \frac{1}{\alpha_{abs}} \qquad \text{III.17}$$

La région de transparence (ou de semi-transparence suite à la présence d'impuretés) des céramiques oxydes est peu étudiée et les quelques valeurs à disposition sont dispersées. Les valeurs retenues pour le coefficient d'absorption de l'alumine, pour la longueur d'onde étudiée, sont présentées en *Figure III-2*.

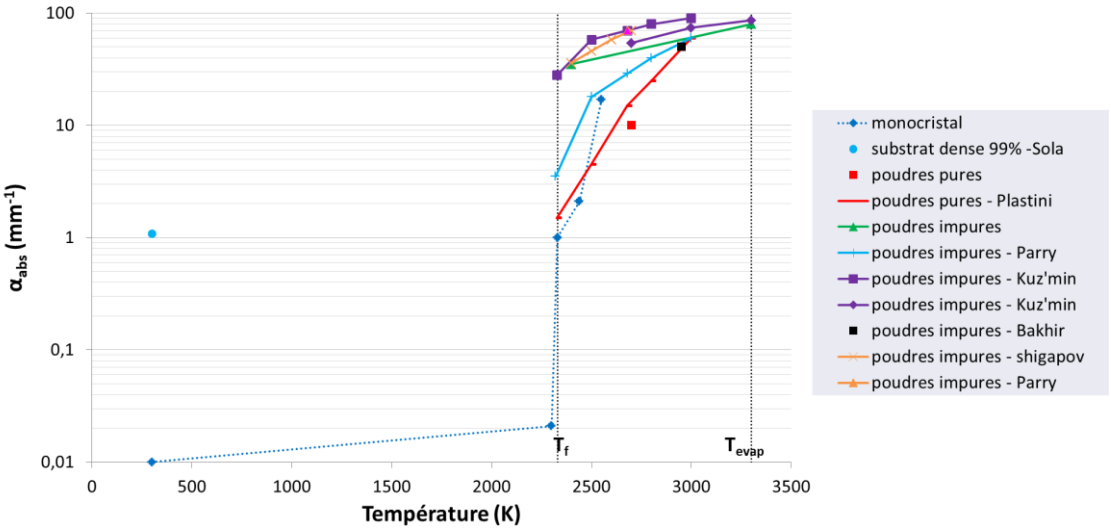


Figure III-2 : Coefficients d'absorption en fonction de la température pour différents types d'alumine à λ=1,07µm d'après (Bityukov et Petrov 2013; Faure 2004; Sola et Peña 2013)

Selon (Faure 2004), pour un monocristal d'alumine, le coefficient d'absorption α_{abs} vaut 0,01 mm^{-1} à température ambiante pour λ=1070 nm. Cette valeur augmente de plusieurs ordres de grandeur avec l'augmentation de la température, d'après (Bityukov et Petrov 2013). A 2300 K, α_{abs} est égal à 0,02 mm^{-1} pour le monocristal à l'état solide. Il atteint 1 mm^{-1} à 2330 K (*i.e* à la température de fusion) et 15 mm^{-1} à 2550 K pour le matériau fondu. (Bityukov et Petrov 2013) ont aussi relevé les valeurs pour les poudres pures commerciales d'alumine et celles contenant des impuretés. Pour l'état liquide, α_{abs} des poudres pures vaut 10 mm^{-1} pour 2700 K (à λ=1300 nm). Pour les poudres impures, les valeurs de α_{abs} varient entre 35 mm^{-1} à 2400K et 80 mm^{-1} à 3300 K (*i.e.* à la température d'évaporation).

La dépendance en température dans la zone de transparence de la zircone n'est pas référencée mais, (Cabannes et Billard 1987) ont noté la forte augmentation de l'absorption de la zircone dans la région de 3 à 6 µm. La même tendance est confirmée pour l'alumine.

L'augmentation du coefficient d'absorption avec la température est flagrante, principalement lors de la fusion. Selon (Bityukov et Petrov 2013), l'analyse de la structure de l'alumine fondue montre que la phase liquide possède un arrangement atomique de type γ avec une maille élémentaire $(AlO_4)^{5-}$ présentant des défauts atomiques. La bande de conduction électrique interdite de cette phase vaut 3,9 eV à température ambiante au lieu de 8,8 eV pour l'alumine-α. L'état fondu peut alors être considéré comme un semi-conducteur à bande interdite étroite, et va donc absorber sur un large domaine de longueurs d'onde. (Coutures et al. 1994) ont également mis en évidence que la structure de l'alumine liquide dépendait de la pression partielle en oxygène présent dans l'environnement. Lors de leurs expériences sous argon, des

atomes libres d'aluminium ont été identifiés dans le liquide. Leur concentration à 2620 K a été estimée égale à environ 2,5%, et diminue abruptement avec la diminution de la température (0,3% at 2473 K). (Bityukov et Petrov 2013) recensent que le coefficient d'absorption sous argon est supérieur à celui sous oxygène. L'alumine deviendrait déficiente en oxygène sous argon. Sous argon, le gradient d'absorption induit l'amorce de la cristallisation en surface, puis couche après couche au fur et à mesure que la température diminue. Dans ce cas, le matériau solidifié présente une couleur grise. Sous air, l'absorption étant homogène et faible, le transfert thermique est volumique.

Une autre grandeur est définie, la **distance de diffusion thermique** δ_{th} (Ashby, Shercliff, et Cebon 2013) :

$$\delta_{th} = \sqrt{2a_{th}.t_{int}} \qquad \text{III.18}$$

où $a_{th} = \lambda_{th} / (\rho.C_p)$ est la diffusivité thermique du matériau et $t_{int} = \phi_l/V$ le temps d'interaction laser-matière (λ_{th} étant la conductivité thermique, ρ la masse volumique, C_p la chaleur spécifique, ϕ_l le diamètre du spot laser et V la vitesse de balayage du faisceau laser).
Les longueurs caractéristiques δ_{th} et δ_{abs} permettent de définir deux régimes de chauffage :

- si $\boldsymbol{\delta_{th} \gg \delta_{abs}}$: le <u>chauffage est surfacique</u>, l'absorption du rayonnement se fait sur de faibles profondeurs (absorption en surface), et le profil de température dans le matériau est essentiellement décrit par ses propriétés thermiques (a_{th}, λ_{th}, et C_p).

- si $\boldsymbol{\delta_{th} \ll \delta_{abs}}$ le <u>chauffage est volumique</u> et le profil de température est essentiellement décrit par ses propriétés optiques, dans la mesure où la diffusivité thermique est négligeable dans cette échelle temporelle. Ce régime est aussi appelé « régime de confinement thermique ».

Une revue de la littérature des propriétés optiques et thermiques a été établie pour différents matériaux, *(Tableau III-2)*. Les valeurs calculées de δ_{th} correspondent aux valeurs représentatives du LBM. Il est alors possible de comparer les longueurs caractéristiques δ_{abs} et δ_{th}. Le mode de chauffage des métaux, très absorbants à la longueur d'onde étudiée, est toujours surfacique pour les substrats denses. La radiation est absorbée sur quelques nm. Les coefficients d'absorption des métaux granulaires sont néanmoins supérieurs de 4 ordres de grandeurs par rapport aux matériaux denses selon (McVey et al. 2007). δ_{abs} devient comparable à δ_{th}, et conduit vers un chauffage volumique. Il convient de souligner que les valeurs des coefficients d'absorption des poudres à la longueur d'onde de travail sont rares dans la littérature. Pour le monocristal et les substrats d'alumine et de zircone, le chauffage est volumique. La radiation est absorbée sur quelques mm pour les céramiques les moins pures et quasiment jusqu'à 1 m dans les monocristaux purs, qui se rapprochent du cas du verre. De manière globale, le type de chauffage des poudres et des substrats céramiques impures, dépend de la nature et teneur en impuretés, de la température et donc des conditions de lasage.

Tableau III-2 : Propriétés optiques et thermiques de différents matériaux denses comme pulvérulents à λ=1,07µm et à température ambiante

k_e	$\alpha_{abs}(mm^{-1})$	$\delta_{abs}(\mu m)$	Matériau et référence	δ_{th} (µm) $\phi_l = 70\mu m$ $V = 800mm.s^{-1}$	δ_{th} (µm) $\phi_l = 70\mu m$ $V = 50mm.s^{-1}$
4,44	*5,26.10⁴*	1,90.10⁻²	**Fe** (Shaker 2017)	63	252
4,23	*5,00.10⁴*	2,00.10⁻²	**Fe** (Weber 2003)		
1,22.10⁻³	*14,4*	69,4	**Poudres Fe** (McVey et al. 2007)		
			Fe (Monaghan et Quested 2001)	32	130
5,26	*6,23.10⁴*	1,60.10⁻²	**Ni** (Shaker 2017)	61	242
4,91	*5,80.10⁴*	1,72.10⁻²	**Ni** (Weber 2003)		
2,55	*3,01.10⁴*	3,32.10⁻²	**Ni** (Chalhoub 2010)		
			INCO 625 (Maglić, Perović, et Stanimirović 1994)	24 (200°C) 30 (1100°C)	98 (200°C) 122 (1100°C)
5,17	*6,10.10⁴*	1,64.10⁻²	**Co** (Montague, Draper, et Rosenblatt 1979; Weber 2003)	67 41 (700°C)	270 163 (700°C)
			HA188 (Haynes international)	23 32 (1100°C)	90 137 (1100°C)
8,47.10⁻⁷	*10⁻²*	10⁵	**Al_2O_3 Monocristal** (Bityukov et Petrov 2013)		
10⁻⁶	*1,18.10⁻²*	8,47.10⁴	**Al_2O_3 Monocristal** (Faure 2004)	47 16 (1000°C)	187 63 (1000°C)
9,23.10⁻⁵	*1,09*	900	**Al_2O_3 Substrat dense 99%** (Sola et Peña 2013)	37	146
			Al_2O_3 dense 63% (Saheb et Hayat 2017)	26 14 (250°C)	103 58 (250°C)
			Al_2O_3 dense >99% (Saheb et Hayat 2017)	39 22 (250°C)	145 95 (250°C)
			Al_2O_3 Poudres d_{50}=150nm (Saheb et Hayat 2017)	5 4 (300°C)	20 16 (300°C)
1,27.10⁻⁴(2100°C) 5,08.10⁻³(2700°C)	1,5 (2100°C) 60 (2700°C)	667 (2100°C) 16,7 (2700°C)	**Al_2O_3 Poudres pures** (Plastini)		
2,96.10⁻⁴(2050°C) 7,62.10⁻³(2700°C)	3,5 (2050°C) 90 (2700°C)	286 (2050°C) 11,1 (2700°C)	**Al_2O_3 Poudres impures** (Bityukov et Petrov 2013)		
5,34.10⁻⁴	*6,31*	158	**Al_2O_3 Film fin** (de la Rosa-Santana et al. 2016)		
			Al_2O_3 pure 99,9% (Hostaša, Pabst, et Matějíček 2011)	14 (100°C) 12 (1000°C)	55 (100°C) 48 (1000°C)
2,00.10⁻⁶	*2,36.10⁻²*	4,23.10⁴	**ZrO_2 Monocristal**		
2,95.10⁻³	*34,9*	28,7	**ZrO_2-3% Y_2O_3**		
2,51.10⁻³	*29,7*	33,7	**ZrO_2** (Shaker 2017)	11	42
7,9110⁻⁵	*0,934*	1 100	**ZrO_2 -8%Y_2O_3 Substrat dense** (Sola et Peña 2013)	14	55
1,00.10⁻⁶	*1,18.10⁻²*	8,47.10⁴	**ZrO_2 -8%Y_2O_3** (Siegel et Spuckler 1993)		
5,00.10⁻⁵	*0,591*	1 690	**ZrO_2 -8%Y_2O_3** (Debout 2007)		
4,23.10⁻⁴	*5,00.10⁴*	200	**ZrO_2 -8%Y_2O_3 dense à 80%** (Akopov et al. 2001)		
10⁻⁵	*0,118*	8 470	**ZrO_2 -80%m + Y_2O_3, SiO_2,Al_2O_3** (Makino et al. 1985)		
10⁻⁶	*1,18.10⁻²*	8,47.10⁴	**ZrO_2 -8%Y_2O_3 Monocristal à 1000°C** (Carillon 2007)		
			ZrO2-3% Y_2O_3 à 100°C (Hostaša, Pabst, et Matějíček 2011)	33	134
			ZrO_2-3% Y_2O_3 à 1000°C (Hostaša, Pabst, et Matějíček 2011)	17	69
4,64.10⁻³	*54,7*	18,3	**Al_2O_3 -ZrO_2 60-40**		
			Al_2O_3 -ZrO_2 60-40 (3Y_2O_3) à 100°C (Hostaša, Pabst, et Matějíček 2011)	11	42
			Al_2O_3 -ZrO_2 60-40 (3Y_2O_3) à 1000°C (Hostaša, Pabst, et Matějíček 2011)	14	55
0,210	*2,48.10³*	0,403	**SiC-α ou SiC-β** (Pégourié 1988)		
6,00.10⁻³	70,9	14,1	**SiC-α ou SiC-β** (Hofmeister et al. 2009)		
1,12	*1,33.10⁴*	7,53.10⁻²	**C** (Shaker 2017)		
2,5.10⁻⁷	*1,411.10⁻⁴*	333	**Verre BK7** (Victoria 2014)		

III.1.3 Relation entre propriétés radiatives et propriétés optiques

L'**irradiance** I exprimée en $W.m^{-2}$, représente l'énergie transportée par unité de surface et de temps. Le terme intensité peut également être employé, cependant il peut être confondu avec d'autres quantités radiométriques. Ce terme peut aussi être décliné en puissance surfacique, densité de courant thermique, densité de flux ou encore flux surfacique de chaleur.

L'irradiance incidente I_0 à la surface d'un échantillon est partiellement réfléchie (I_R), transmise (I_{Tr}) et absorbée (I_A) :

$$I_0 = I_R + I_{Tr} + I_A \qquad \text{III.19}$$

Les fractions d'irradiance réfléchie, transmise et absorbée par rapport à l'irradiance du faisceau incident correspondent respectivement aux coefficients de réflexion R, de transmission Tr et d'absorption A. Leur somme est égale à l'unité (Ashby, Shercliff, et Cebon 2013) :

$$R = \frac{I_R}{I_0};\ \mathrm{Tr} = \frac{I_{Tr}}{I_0}\ et\ A = \frac{I_A}{I_0} \qquad \text{III.20}$$

$$R + A + Tr = 1 \qquad \text{III.21}$$

Ces grandeurs peuvent être associées à la **longueur d'onde incidente**, il s'agit alors de composantes spectrales ou monochromatiques. A l'inverse, si elles sont indépendantes de la longueur d'onde, ce sont des composantes totales. Si elles sont orientées dans une seule **direction de propagation,** on les qualifie de directionnelles. Dans le cas où elles sont indépendantes de la direction de propagation, on utilise le terme de grandeur hémisphérique. On distingue alors les grandeurs :

- totales hémisphériques : $(\rho_h, \alpha_h, \tau_h)$
- monochromatiques hémisphériques : (R_h, A_h, Tr_h)
- totales directionnelles : $(\rho_n, \alpha_n, \tau_n)$
- monochromatiques directionnelles : (R, A, Tr)

Les termes employés dans cette thèse sont monochromatiques car dépendantes de la longueur d'onde de travail λ=1,07 µm.

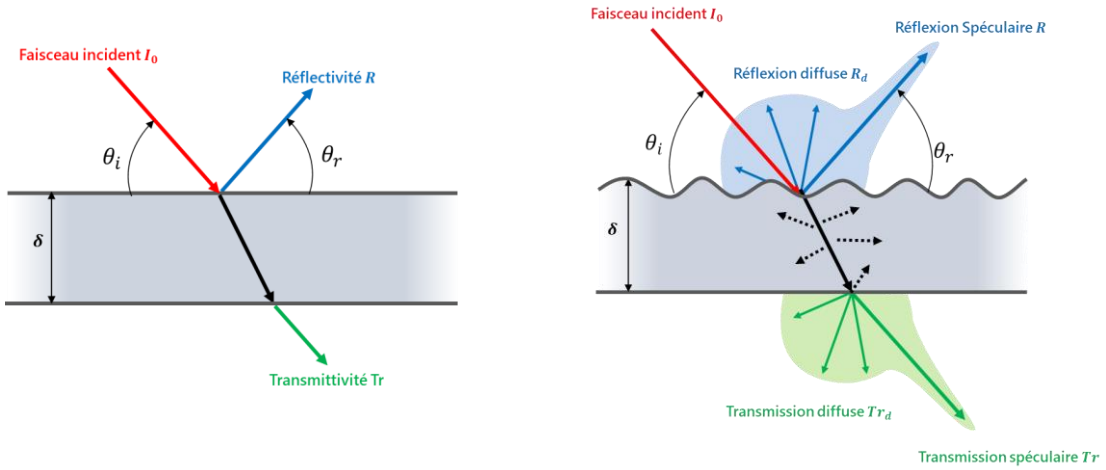
En général, la réflexion hémisphérique R_h est la somme de la réflexion spéculaire ou collimatée R_c et de la réflexion diffuse R_d, soit : $\boldsymbol{R_h = R_c + R_d}$.

La **réflexion est spéculaire ou collimatée**, lorsqu'elle est orientée dans la direction de miroir parfait c'est en général le cas lors d'un rayonnement impactant une surface lisse ou polie. Les coefficients radiatifs sont alors nommés « **réflectivité $\boldsymbol{R_c}$ *ou* $\boldsymbol{R}$ /absorptivité $\boldsymbol{A_c}$ *ou* $\boldsymbol{A}$ /transmittivité $\boldsymbol{Tr_c}$*ou* $\boldsymbol{Tr}$** ». Ce type de réflexion obéit aux lois de Snell-Descartes et la lumière incidente n'est renvoyée que dans une seule direction en restant dans le plan d'incidence *(Figure III-3.a)*.

La **réflexion diffuse** est en général induite par une surface rugueuse ou un matériau optiquement hétérogène vis-à-vis de la longueur d'onde incidente. Le faisceau incident induit est réfléchi en une multitude de réflexions. Les termes radiatifs sont nommés « **réflectance $\boldsymbol{R_d}$/absorbance $\boldsymbol{A_d}$/transmittance $\boldsymbol{R_d}$** » *(Figure III-3.b)*.

La loi de Beer-Lambert donne la fraction de l'intensité incidente qui est transmise après avoir traversé le matériau homogène d'épaisseur δ. On définit alors par $Tr(\delta)$ la part transmise du rayonnement suite à l'atténuation dans le matériau, et ceci sans prendre en compte les réflexions aux interfaces :

$$Tr(\delta) = \frac{I_{Tr}(\delta)}{I_0} = e^{-\alpha_{abs}\delta} \qquad \text{III.22}$$



a) b)

Figure III-3 : Composantes de réflexion et de transmission lors de l'irradiation d'un échantillon a) à surface lisse ou polie b) à surface rugueuse ou hétérogène

La première loi de Kirchhoff énonce que l'émissivité monochromatique directionnelle ε d'un matériau absorbant est égale à l'absorptivité monochromatique directionnelle A :

$$\varepsilon = A = 1 - R - Tr \qquad \text{III.23}$$

Cette loi met directement en relation les propriétés radiatives et thermo-radiatives d'un matériau homogène. Dans le cas du corps noir, $\varepsilon = A = 1$; pour un massif opaque (métal), $A + R = 1$; pour un massif transparent (alumine pure), $R + Tr = 1$.

Les termes radiatifs varient donc avec la nature absorbante du matériau, la rugosité de surface, la microstructure et l'épaisseur du matériau δ. L'angle d'incidence θ_i et la température T à la surface peuvent également influencer l'absorption du rayonnement.

III.1.3.1 Incidence normale

Les champs électriques des rayonnements incidents $\vec{E_i}$, réfléchis $\vec{E_r}$ et transmis $\vec{E_t}$ à travers une interface air-matériau pour une **incidence normale** sont schématisés à la *Figure III-4* selon que z est compté positivement (milieu 1) ou négativement (milieu 2, l'air). A l'interface z=0, (Bohren et Huffman 1983) expriment :

$$\vec{E}_i + \vec{E}_r = E_i^{max} \exp\left(i\omega\left(\frac{\tilde{n}_2.z}{c_0} - t\right)\right) + E_r^{max} \exp\left(-i\omega\left(\frac{\tilde{n}_2.z}{c_0} + t\right)\right) \; pour\; z < 0 \qquad \text{III.24}$$

$$\vec{E}_t = E_t^{max} \exp\left(i\omega\left(\frac{\tilde{n}_1.z}{c_0} - t\right)\right) pour\; z > 0 \qquad \text{III.25}$$

La continuité du champ électromagnétique à l'interface z=0, combinée aux lois de Fresnel et Descartes sous **incidence normale**, pour une interface air/matériau diélectrique donnent accès aux égalités suivantes :

$$\vec{E}_i + \vec{E}_r = \vec{E}_t \quad \text{et} \quad \vec{E}_i - \vec{E}_r = \frac{\tilde{n}_1}{\tilde{n}_2}\vec{E}_t \qquad \text{III.26 et III.27}$$

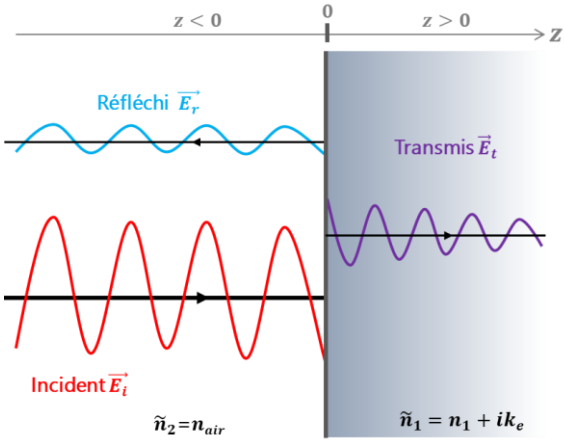


Figure III-4 : Réflexion et transmission d'un rayonnement normal incident à travers une interface plane air-matériau. Le rayonnement transmis est ralenti et amorti d'après (Bohren et Huffman 1983)

Ici, $\tilde{n}_2 = n_{air} = 1$ et $\tilde{n} = \frac{\tilde{n}_1}{\tilde{n}_2} = n + i\kappa_e$. On introduit les coefficients de réflexion $\tilde{r}$ et de transmission $\tilde{t}$ en amplitude qui s'expriment alors respectivement comme la fraction de flux réfléchi et transmis.

$$\vec{E}_r = \tilde{r}\,\vec{E}_i \quad \text{et} \quad \vec{E}_t = \tilde{t}\,\vec{E}_i \qquad \text{III.28}$$

Ces coefficients sont des nombres complexes déterminés par la loi de Fresnel pour une monocouche et dont la phase permet de déduire le déphasage entre l'onde réfléchie et l'onde incidente. L'intensité du coefficient de réflexion (resp. transmission) pour un milieu isotrope est égale au module de $\tilde{r}$ (resp. de $\tilde{t}$) au carré comme exprimé en *équation III.31*.

$$\tilde{r} = \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \quad et \quad \tilde{t} = \frac{2\tilde{n}}{\tilde{n} + 1} \qquad \text{III.29 et III.30}$$

$$\boldsymbol{R = |\tilde{r}|^2 = \left|\frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1}\right|^2 = \frac{(n-1)^2 + \kappa_e^2}{(n+1)^2 + \kappa_e^2}} \qquad \text{III.31}$$

$$\boldsymbol{Tr = |\tilde{t}|^2 = \left|\frac{2\tilde{n}}{\tilde{n} + 1}\right|^2 = \frac{4(n^2 + \kappa_e^2)}{(n+1)^2 + \kappa_e^2}}$$

III.1.3.2 Lame d'épaisseur finie

Pour un échantillon transparent d'épaisseur finie à interfaces parallèles et pour une incidence non normale, le faisceau lumineux se propage indépendamment de son angle d'incidence. Dans ce cas, comme détaillé en *Figure III-5*, les fractions de flux réfléchi et transmis sont le résultat d'une suite de réflexions et de transmissions multiples. On cherche alors à exprimer R_h *et* Tr_h qui pourront être ensuite mesurées expérimentalement à l'aide de sphères intégrantes.

La somme des irradiations transmises s'écrit :

$$I_{Tr_h} = I_0(1-R)^2 e^{-\alpha_{abs}\delta}(1 + R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta} + R^4 e^{-4\alpha_{abs}\delta} + R^6 e^{-6\alpha_{abs}\delta} \dots) \qquad \text{III.32}$$

Par approximation : $1 + R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta} + R^4 e^{-4\alpha_{abs}\delta} + R^6 e^{-6\alpha_{abs}\delta} \dots \approx \frac{1}{1 - R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta}}$ III.33

De la forme : $1 + x + x^2 + x^3 + \cdots \approx (1-x)^{-1}$ pour $|x| < 1$ avec $x = R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta}$

Soit :

$$I_{Tr_h} = \frac{I_0(1-R)^2 e^{-\alpha_{abs}\delta}}{1-R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta}} \qquad \text{III.34}$$

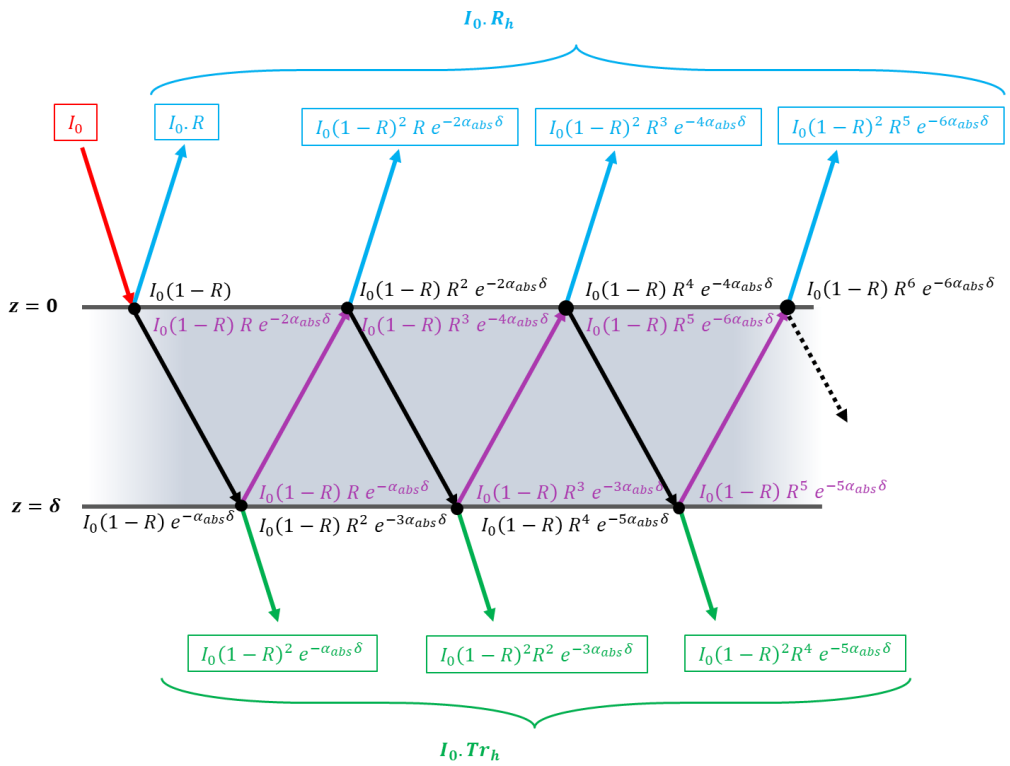


Figure III-5 : Propagation d'un rayonnement incident sur un matériau transparent d'épaisseur finie d'après (Bohren et Huffman 1983)

De plus, le faisceau lumineux qui traverse la lame subit une atténuation dans l'épaisseur de la lame suivant la loi de Beer-Lambert et la transmittivité Tr s'écrit en fonction du coefficient d'absorption linéaire α_{abs} suivant l'*équation (III.22).* En combinant l'*équation (III.34)* et l'*équation (III.22),* on a alors :

$$\boldsymbol{Tr_h = \frac{I_{Tr_h}}{I_0} = \frac{(1-R)^2.Tr}{1-R^2.Tr^2}} \qquad \text{III.35}$$

On note que dans le cas des céramiques oxydes dans le visible, R^2Tr^2 <<1, et *l'équation (III.35)* devient :

$$Tr_h = (1-R)^2.Tr \qquad \text{III.36}$$

À partir des *équations (III.22) et (III.16)*, nous pouvons exprimer les coefficients d'extinction κ_e et d'absorption α_{abs} de la lame d'épaisseur finie δ :

$$\alpha_{abs} = -\frac{1}{\delta} lnTr \qquad \text{III.37}$$

$$\kappa_e = \frac{\alpha_{abs}}{4\pi}\lambda = -\frac{1}{\delta}\frac{lnTr}{4\pi}\lambda \qquad \text{III.38}$$

La somme des irradiations réfléchies conduit à :

$$I_{R_h} = I_0R + I_0R(1-R)^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta}(1 + R^2 e^{-2\alpha_{abs}\delta} + R^4 e^{-4\alpha_{abs}\delta} + \cdots) \qquad \text{III.39}$$

De la même manière que pour la transmission, après approximation, cette équation équivaut à :

$$\boldsymbol{R_h = R + \frac{R.Tr^2.(1-R)^2}{1-R^2.Tr^2} = R.(1+Tr.Tr_h)} \qquad \text{III.40}$$

D'un point de vue expérimental, il est possible de calculer R, Tr, puis n et κ_e à partir des mesures de R_h et Tr_h. Les *équations (III.35) et (III.40)* permettent de définir les coefficients a_1 et a_2 :

$$a_1 = \frac{Tr}{Tr_h} = \frac{1-R^2.Tr^2}{(1-R)^2} \qquad \text{III.41} \qquad \text{et} \qquad a_2 = \frac{R}{R_h} = \frac{1}{1+Tr.Tr_h} \qquad \text{III.42}$$

Soit

$$Tr = a_1.Tr_h \qquad \text{III.43} \qquad \text{et} \qquad R = \frac{R_h}{1+Tr.Tr_h} \qquad \text{III.44}$$

D'après *l'équation (III.41)*, le coefficient a_1 est alors solution de l'équation :

$$a_1(1-R)^2 + R^2.Tr^2 - 1 = 0$$

Soit en remplaçant Tr et R à partir des *équations (III.43) et (III.44)* dans l'équation précédente, on obtient :

$$a_1{}^3.Tr_h^4 + a_1{}^2.Tr_h^2.[(R_h-1)^2 + 1 - Tr_h^2] + a_1.[(R_h-1)^2 - 2Tr_h^2] - 1 = 0$$

Le calcul de a_1 par la résolution de l'équation précédente, puis celui de Tr par l'*équation (III.43)* et de R par l'*équation (III.44)* permet d'en déduire α_{abs} par la *relation (III.37)* et κ_e par la *relation (III.38).*

Enfin, d'après l'*équation (III.31)*, n est solution de l'équation du second degré pour les surfaces lisses à réflexion spéculaire et sous incidence normale :

$$n^2.(R-1) + 2n.(R+1) + (R-1).(\kappa_e^2+1)$$

avec

$$n = \frac{(1+R) + \sqrt{(R+1)^2 - (R-1)^2(\kappa_e^2+1)}}{1-R}$$

III.1.3.3 Milieu multicouche

On peut également considérer un milieu multicouche, de façon à correspondre au dépôt de poudre (milieu 1) sur un substrat dense (milieu 2). Bien que la description du lit de poudre hétérogène ait été distinguée de celle du substrat et du liquide homogènes, l'interaction laser-matière en cours de fabrication est complexe et porte simultanément sur les trois milieux. Il est alors envisagé dans un premier temps, d'appliquer les lois de l'optique géométrique pour l'interaction laser-matière lors de la fusion du monocordon 1D. En effet, ces lois sont plus simples à mettre en œuvre que les modèles hétérogènes, et il est possible de considérer que le faisceau laser interagit majoritairement avec le liquide lors de la fabrication.

Pour les milieux multicouches, deux cas sont à différencier. En premier lieu, est distingué le cas d'un lit de poudre absorbant ou semi-transparent sur un substrat dense d'épaisseur semi-infinie caractérisé par $Tr = 0$ *(Figure III-6-a)*. En second lieu, on distingue le cas d'un matériau semi-transparent d'épaisseur finie avec $Tr \neq 0$ *(Figure III-6-b)*. Dans les deux cas, l'ensemble est décrit par le coefficient d'absorption α_{abs}^{ps}.

Le bilan des irradiances de la première couche absorbante *(Figure III-6.a)* est équivalent à la lame vue en *Figure III-5*, en différenciant les coefficients de réflexion en entrée de lame R_p (sur lit de poudre) et en sortie de lame R_s (sur susbtrat). Les *équations (III.35) et (III.40)* après avoir été adaptées à la *Figure III-6* s'écrivent :

$$Tr_{h,ps}^{abs} = \frac{(1-R_s).(1-R_p).Tr_p}{1-R_s.R_p.{Tr_p}^2} \qquad \text{III.45}$$

$$R_{h,ps}^{abs} = R_p + \frac{R_s.{Tr_p}^2.(1-R_p)^2}{1-R_s.R_p.{Tr_p}^2} = R_p + \frac{R_s.Tr_p.(1-R_p)}{(1-R_s)}.Tr_{h,ps}^{abs} \qquad \text{III.46}$$

Dans le cas d'un matériau semi-transparent *(Figure III-6.b)*, les faisceaux transmis au substrat subiront une réflexion en face arrière du substrat. Le bilan radiatif est décomposé suivant les deux milieux. Ainsi, on définit :

- **Pour le lit de poudre seul (milieu 1),** on a $\{\alpha_{abs}^{p}, \delta, Tr_{h,p}\ et\ R_{h,p}\}$:

$$Tr_{h,p} = \frac{(1-R_p)^2.Tr_p}{1-R_p^2.Tr_p^2} \qquad \text{III.47}$$

$$R_{h,p} = R_p + \frac{R_p.{Tr_p}^2.(1-R_p)^2}{1-R_p^2.Tr_p^2} = R_p.(1+Tr_p\ .Tr_{h,p}) \qquad \text{III.48}$$

$$avec\ Tr_p = e^{-\alpha_{abs}^{p}.\delta}$$

- **Pour le substrat seul (milieu 2)**, on a $\{\alpha_{abs}^{s}, \delta_{sub}, Tr_{h,s}\ et\ R_{h,s}\}$:

$$Tr_{h,s} = \frac{(1-R_s)^2.Tr_s}{1-R_s^2.Tr_s^2} \qquad \text{III.49}$$

$$R_{h,s} = R_s + \frac{R_s.Tr_s^2.(1-R_s)^2}{1-R_s^2.Tr_s^2} = R_s.(1+Tr_s\ .Tr_{h,s}) \qquad \text{III.50}$$

$$avec\ Tr_s = e^{-\alpha_{abs}^{s}.\delta_{sub}}$$

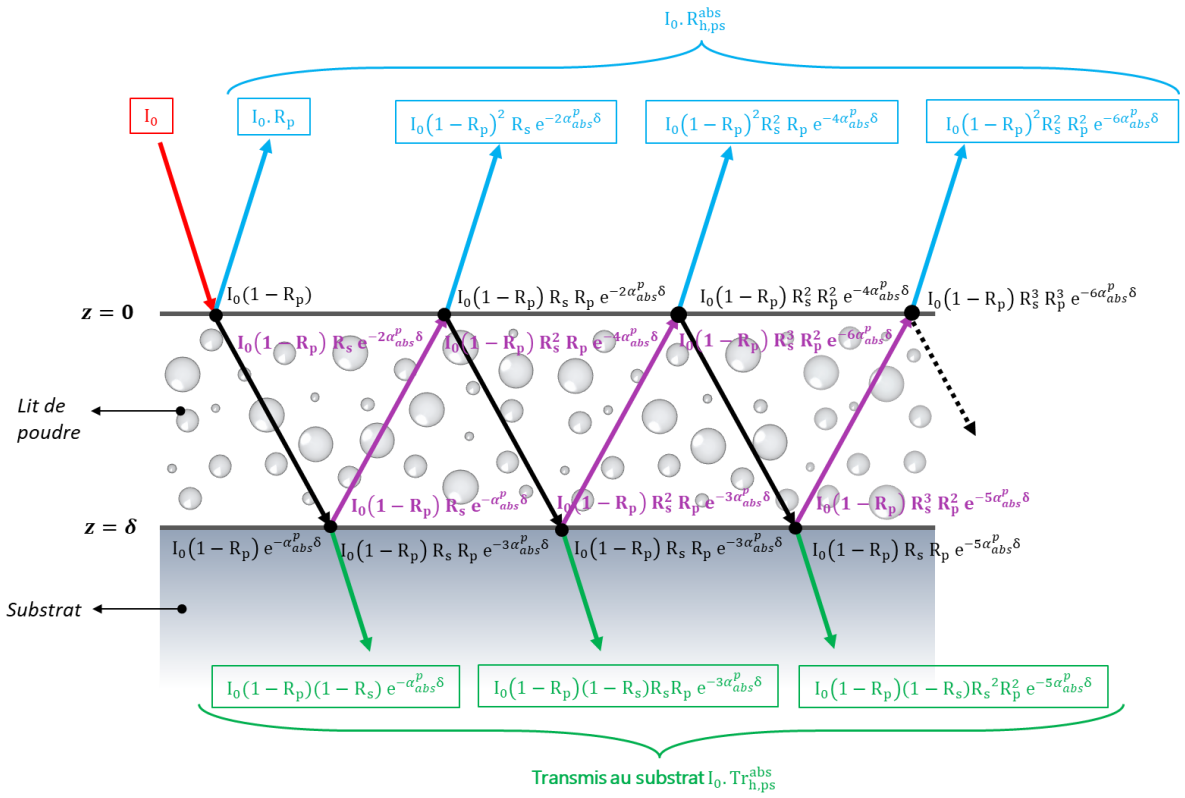
- **Pour l'ensemble (milieu 1+2)** comme schématisé en *Figure III-6-b* d'après (Kortüm 1969), on a $\{\alpha_{abs}^{ps}, \delta+\delta_{sub}, Tr_{h,ps}\ et\ R_{h,ps}\}$ et $\{R_i\ et\ Tr_i\}$ les valeurs à l'interface :

$$\boldsymbol{Tr_{h,ps} = \frac{Tr_{h,p}.Tr_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}}} \qquad \text{III.51}$$

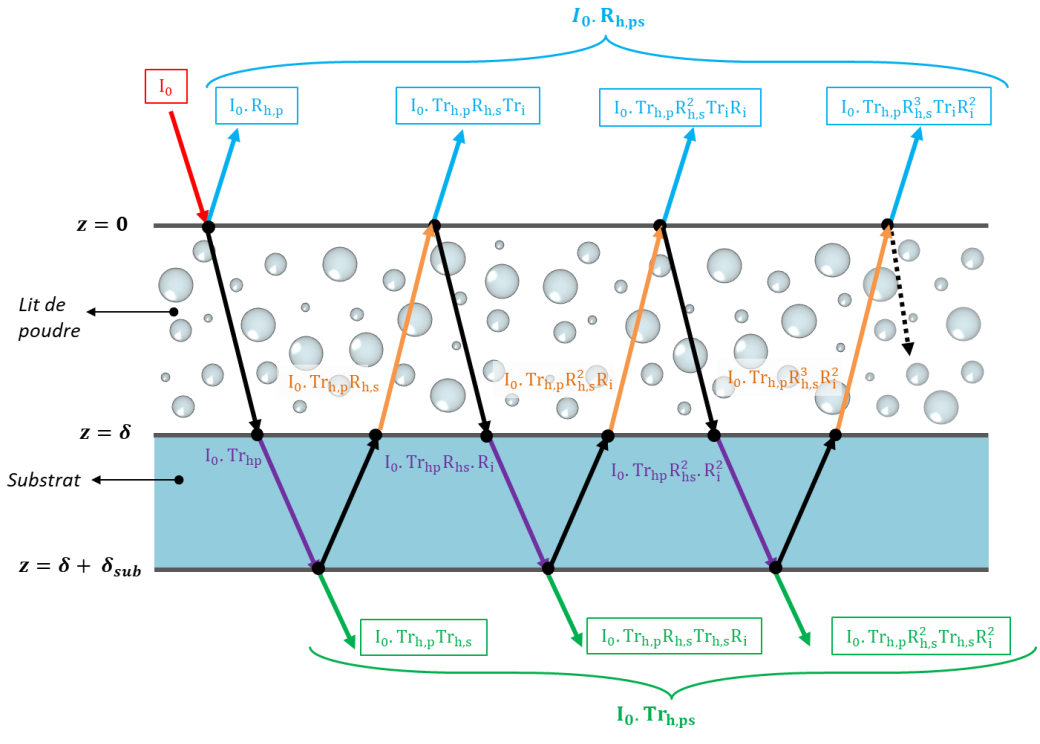
$$\boldsymbol{R_{h,ps} = R_{h,p} + \frac{Tr_{h,p}.Tr_i.R_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}}} \qquad \text{III.52}$$

Et dans le cas de milieux hétérogènes $Tr_{h,p} = Tr_i$:

$$R_{h,ps} = R_{h,p} + \frac{Tr_{h,p}^2.R_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}} = R_{h,p} + \frac{Tr_{h,ps}.Tr_{h,p}.R_{h,s}}{Tr_{h,s}} \qquad \text{III.53}$$



a)



b)

Figure III-6 : Propagation d'un rayonnement incident sur un ensemble multicouche {lit de poudre+substrat} dans le cas d'un matériau a) absorbant de type métallique ou céramique d'épaisseur semi- infinie b) semi-transparent de type céramique oxyde (pour le proche IR) d'épaisseur finie

III.2 Propagation du rayonnement électromagnétique dans un milieu hétérogène

(Makino et al. 1985) ont mesuré les coefficients de réflexion spéculaire R_c et hémisphérique R_h *(Figure III-7)* pour des échantillons polycristallins, polis de zircone yttriée (pureté >85%m. - *en masse*), d'alumine (pureté >99%m.) et de SiC (pureté >95%m.). Aux faibles longueurs d'onde, dans la zone de semi-transparence, la composante spéculaire R_c contribue, bien que faiblement, à la réflexion globale hémisphérique R_h. C'est donc R_d la composante de diffusion volumique qui est majoritaire. Les surfaces étant polies, cette diffusion provient de la discontinuité de l'indice de réfraction liée à la structure de grains (non monocristalline) et des porosités résiduelles présentes dans les matériaux frittés. Plus l'épaisseur du substrat augmente, plus la probabilité de diffusion augmente tout comme le coefficient de réflexion R_d. Au-delà de 5 µm, hors de la zone de semi-transparence, R_d devient négligeable car la taille des centres de diffusion devient très faible par rapport à la longueur d'onde. Seule la réflexion spéculaire R_c détermine la réflectance hémisphérique R_h. Les auteurs concluent que pour les céramiques oxydes Al_2O_3 et ZrO_2 irradiées aux courtes longueurs d'onde (cas de notre étude), la réflexion est majoritairement influencée par l'indice de réfraction n et les coefficients K et S d'absorption et de diffusion (exprimés par la suite pour les milieux hétérogènes). Aux fortes longueurs d'onde, seuls les indices n et k_e régissent la réflexion. A l'inverse, dans le cas du SiC absorbant (de couleur noire), la composante R_d est négligeable et n et k_e régissent les propriétés de réflexion sur tout le domaine spectral de réflexion. Ces résultats expriment la problématique de diffusion des matériaux semi-transparents mêmes denses et justifient de la nécessité de l'utilisation des modèles de propagation du rayonnement dans un milieu hétérogène.

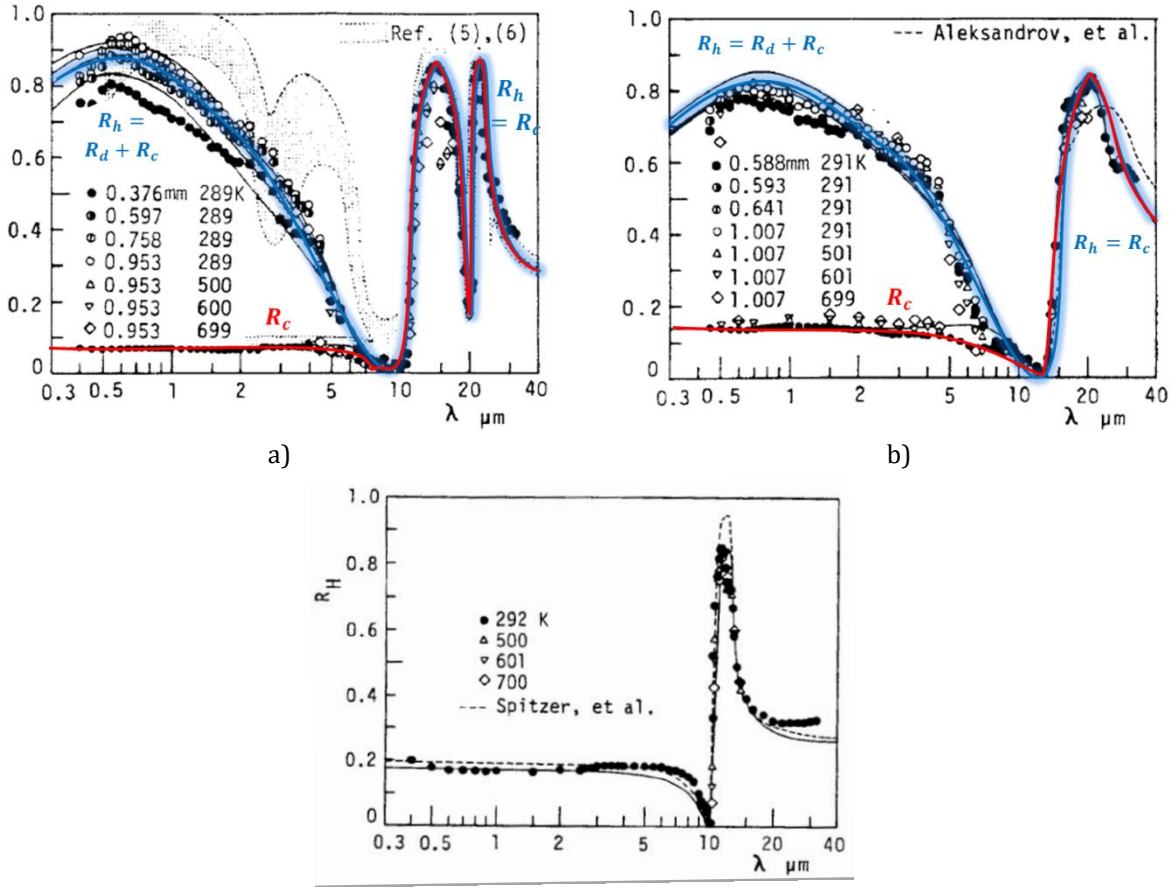


Figure III-7 : Réflectivités spéculaire R_c et hémisphérique R_h pour un échantillon poli de a) alumine 99% pure b) zircone yttriée à 85%m. pure c) SiC à 95%m. pur selon (Makino et al. 1985)

Rappelons que le lit de poudre est défini comme un milieu optiquement hétérogène et que l'indice de réfraction des particules de poudre diffère de celui du milieu environnant lié à la porosité inter-particulaire. A l'échelle macroscopique, le rayonnement incident sur le lit de poudre peut alors être diffusé ou absorbé par les particules. A l'échelle de la longueur d'onde, l'onde électromagnétique incidente peut être réfléchie, réfractée (l'onde pénètre dans la particule et ressort avec une direction modifiée) ou diffractée (l'onde ne pénètre pas la particule mais voit sa direction de propagation modifiée par la présence des particules environnantes). Tous ces phénomènes sont responsables de la diffusion volumique du rayonnement au sein des lits de poudre (Carillon 2007; Jarrige 2012).

III.2.1 Phénomène de diffusion

III.2.1.1 Par une particule unique

Les sections efficaces d'absorption C_{abs} et de diffusion C_{diff}, correspondent au rapport du flux d'énergie absorbé et diffusé par la particule sur l'intensité incidente $\left(\text{soient } \frac{W_{abs}}{I_0} \; et \frac{W_{diff}}{I_0}\right)$. D'après le principe de la conservation d'énergie, on peut écrire que la somme des deux est égale à la section efficace d'extinction :

$$C_{ext} = C_{abs} + C_{diff} \qquad \text{III.54}$$

Cette quantité comparable à une surface (m^2) peut être visualisée comme la surface effective d'interaction entre l'onde et la particule. Cette surface s'étend en général au-delà des limites géométriques de la particule. On peut normaliser ces sections par la surface projetée de la particule dans la direction d'incidence de l'onde pour quantifier l'efficacité relative des mécanismes de diffusion et d'absorption. On note alors les facteurs d'efficacité respectifs Q_{ext}, Q_{abs} et Q_{diff} (Boutier 2012; Carillon 2007).

$$Q_x = \frac{C_x}{\pi r^2} \qquad \text{III.55}$$

où x est relatif à l'absorption, diffusion ou extinction

Le calcul des sections efficaces d'une particule dépend de sa morphologie, taille, orientation dans l'espace (dans le cas non sphérique et non homogène), de la longueur d'onde de la lumière incidente, et des indices optiques de la particule et du milieu environnant. Dans le cas d'une particule non absorbante $C_{ext} = C_{diff}$.

Le processus de diffusion est traité différemment suivant la taille de la particule. Le paramètre de taille de Mie défini par $\boldsymbol{x} = \frac{\boldsymbol{n.2\pi.r_p}}{\boldsymbol{\lambda}}$ (r_p étant le rayon de la particule) permet de distinguer plusieurs régimes de diffusion (Carillon 2007; Marthe 2013) - *Figure III-8* :

- Si la <u>taille de la particule est négligeable</u> par rapport à la longueur d'onde du champ électromagnétique incident ($\boldsymbol{x} << \mathbf{1}$), la particule va répondre comme un dipôle électrique en présence d'un champ électrique statique et donc va émettre une radiation dipolaire secondaire à la même fréquence que le champ incident. On parle alors de <u>diffusion de Rayleigh.</u> Ici, $Q_{diff} \propto x^4$ alors que $Q_{abs} \propto x$. L'absorption et la diffusion sont faibles. La diffusion de la lumière est isotrope c'est-à-dire que les particules diffuseront autant vers l'avant que vers l'arrière.
- Dans le cas extrême où <u>la particule est un milieu dense</u> ou que les particules sont très grandes par rapport à la longueur d'onde ($\mathbf{1} << \boldsymbol{x}$), on se retrouve dans le cas de la réflexion et de la réfraction de l'onde à l'interface entre deux milieux (pour des interfaces lisses). Les ondes réfléchie et réfractée sont alors calculées par les lois de <u>l'optique géométrique</u> de Snell-Descartes. La part entre l'absorption et la réflexion est calculée en fonction des indices optiques du milieu et de la particule. Ce cas a été abordé en *partie III.1*.
- Si <u>la taille de la particule devient comparable à la longueur d'onde</u> ($\boldsymbol{x} \approx \mathbf{1}$), le raisonnement quasi-statique n'est plus valide car le champ électromagnétique ne peut plus être considéré comme uniforme à l'échelle de la particule. Il s'agit de la configuration du LBM. L'interaction entre l'onde et la

particule devient importante, le système est alors fortement diffusant et diffuse principalement vers l'avant. La particule se comporte alors comme un multi-pôle électrique et magnétique dont le rayonnement doit être calculé à partir de la théorie électromagnétique (ondes planes). La première théorie complète de la diffusion d'une onde plane harmonique par une particule sphérique unique et isotrope dans un milieu non absorbant est résolue précisément par la théorie de Mie ou par Lorentz-Mie (Bohren et Huffman 1983). Cette théorie indique que la particule composée de charges électriques qui reçoit une onde électromagnétique se met à osciller et émet un rayonnement secondaire dans toutes les directions de même fréquence que l'onde incidente. Dans ce cas, il s'agit d'un rayonnement élastique diffusé par la particule. Nous considérons dans cette étude uniquement la diffusion élastique qui ne modifie pas la fréquence de l'onde. Ces mêmes charges élémentaires excitées peuvent aussi transformer une partie de l'énergie incidente par absorption, principalement sous forme thermique. L'ensemble de la diffusion et d'absorption contribuent alors au processus d'atténuation, ou d'extinction, de l'énergie électromagnétique incidente.

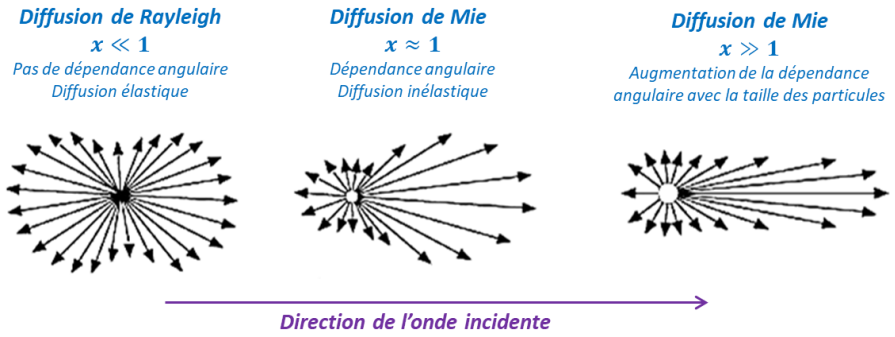


Figure III-8 : Les différents modes de diffusion suivant la taille des particules vis-à-vis de la longueur d'onde

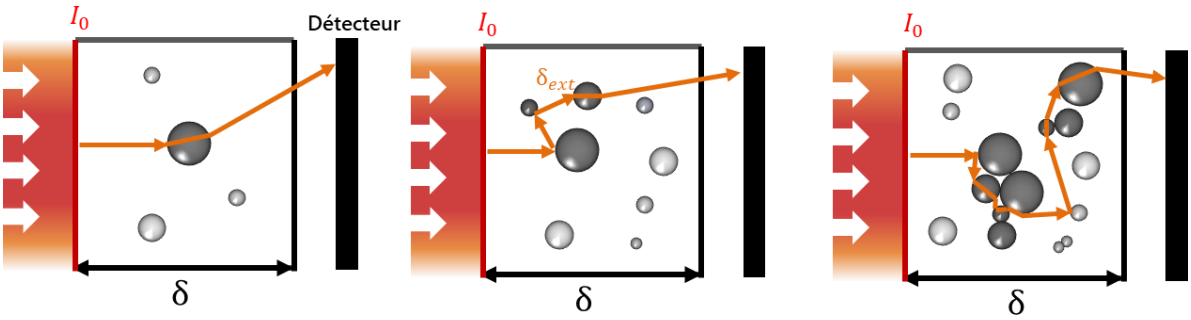
III.2.1.2 Par un ensemble de particules

Si le milieu irradié est un ensemble de particules, chaque particule est excitée par le champ incident mais également par le champ diffusé par les autres particules. Suivant la distance séparant ces particules et leur concentration, les interactions entre les champs diffusés vont être plus ou moins importantes - *Figure III-9* - (Boutier 2012). Le régime de diffusion est donc défini par la comparaison du libre parcours moyen des rayons ou l'épaisseur optique d'extinction δ_{ext} avec la distance minimale δ qui devrait être parcourue par ces mêmes rayons en l'absence de particules pour traverser l'échantillon et arriver au détecteur.

- Si $\boldsymbol{\delta_{ext} \gg \delta}$, le libre parcours moyen d'extinction du photon est bien supérieur aux dimensions du milieu. Le photon ne subit alors quasiment pas d'absorption ou de diffusion. C'est un régime propagatif, sans absorption ni diffusion.

- Lorsque $\boldsymbol{\delta_{ext} = \delta}$, le libre parcours moyen est de l'ordre de grandeur des dimensions du milieu. Le photon subit alors en moyenne un processus de diffusion. C'est le régime de diffusion simple. Dans ce cas, l'atténuation du faisceau doit être faible.

- Si $\boldsymbol{\delta_{ext} \ll \delta}$, le libre parcours moyen est nettement inférieur aux dimensions du milieu. Si $C_{abs} \ll C_{diff}$, le photon est diffusé de nombreuses fois avant d'être détecté ; il s'agit du régime de diffusion multiple. A l'inverse, si $C_{abs} \gg C_{diff}$, le phénomène d'absorption est prédominant et il s'agit plutôt du régime d'absorption.



a) Diffusion simple b) Diffusion multiple c) Diffusion multiple dépendante

Figure III-9 : Illustration des phénomènes de diffusion adapté de (Boutier 2012)

a) Diffusion simple

Lorsque le milieu est faiblement concentré en particules (particules petites et/ou distantes les unes des autres) on considère qu'une particule est excitée seulement par le champ incident provenant de la source principale *(Figure III-9.a)*. C'est l'approximation de la diffusion simple et le milieu est dit optiquement dilué. Les propriétés d'absorption, de diffusion ou d'extinction du milieu sont alors données par l'intégration des propriétés de chaque particule. L'intensité diffusée par N particules est égale à N fois l'intensité diffusée par une particule isolée donnée par la théorie de Mie. On en déduit les expressions des **coefficients de diffusion s**, **d'absorption k** et d'extinction α_{ext} (Baillis et Sacadura 2000):

$$s = \sum_{i}^{N} C_{diff,i}.fv_{p_i} \qquad \text{III.56}$$

$$k = \sum_{i}^{N} C_{abs,i}.fv_{p_i} \qquad \text{III.57}$$

$$\alpha_{ext} = s + k = \sum_{i}^{N} (C_{abs,i} + C_{diff,i}).fv_{p_i} = \sum_{i}^{N} C_{ext,i}.fv_{p_i} \qquad \text{III.58}$$

fv_{p_i} correspond au nombre de particules de taille i par unité de volume

Les constantes optiques (C_{diff} et C_{abs}) d'une dispersion homogène sont identiques pour chaque particule et la somme de l'*équation (III.58)* s'applique uniquement aux classes des tailles de particules. Ainsi on exprime :

$$\alpha_{ext} = \int_0^{\infty} C_{ext}(r_p).df v_{p_i}(r_p) \qquad \text{III.59}$$

$fv_{p_i}(r_{rp})$ est interprétée comme le nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris dans l'intervalle r_p et $r_p + dr_p$.

Comme vu précédemment dans le cas d'un matériau homogène, une onde et par extension un faisceau, se propageant dans un milieu d'épaisseur δ, voit son intensité varier selon la loi de Beer-Lambert dans laquelle α_{abs} est le coefficient d'absorption du milieu. Cette variation est obtenue en intégrant sur le parcours de l'onde les absorptions infinitésimales successives *(Figure III-10)*. Dans le cas d'une diffusion simple, la loi de Beer-Lambert définie par *l'équation (III.60)* peut être utilisée pour estimer l'atténuation d'un faisceau se propageant à travers une population de particules dispersées dans une matrice non absorbante (Debout 2007). Le coefficient d'atténuation noté α_{ext} pour une extinction particulaire, est à différencier du coefficient d'absorption α_{abs} employé pour un milieu continu *(Figure III-10)*.

$$I_{Tr} = I_0 . e^{-\alpha_{ext}\delta} = I_0 . e^{-\delta/\delta_{ext}} \qquad \text{III.60}$$

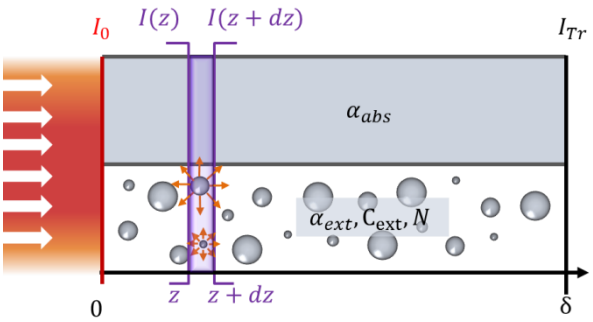
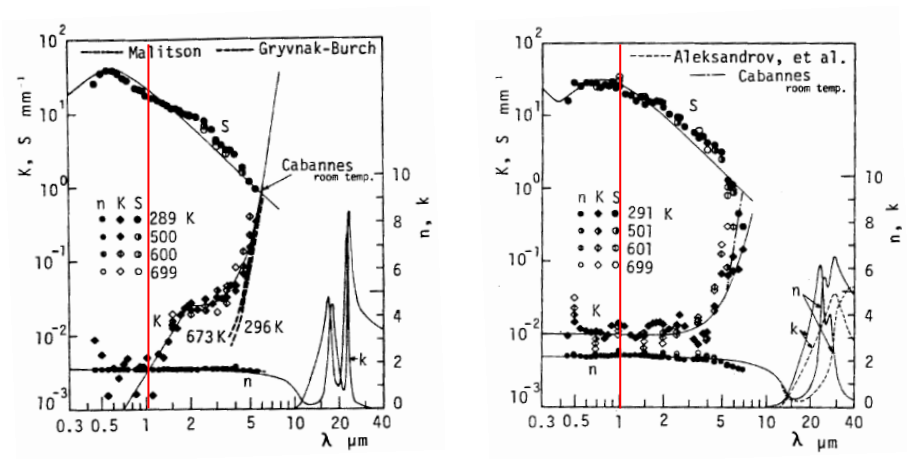


Figure III-10 : Schématisation de l'atténuation d'une onde dans un milieu continu et de l'extinction d'une onde par un milieu particulaire

Très peu de données sont disponibles dans la littérature et les caractéristiques précises des matériaux évoqués sont rarement précisées. Pour toutes les valeurs relevées *(Tableau III-3)*, $s >> k$ (ou par les coefficients effectifs $S >> K$ définis plus loin), le régime de diffusion est donc dominant. Les coefficients d'absorption k (ou K) et de diffusion s (ou S) de l'alumine et de la zircone dépendent de la longueur d'onde - *Figure III-11* d'après (Makino et al. 1985). En dessous de 5 µm, la diffusion est dominante avec $S >> K$ et est associée à un faible indice d'extinction κ_e à indice de réfraction n constant. Au-dessus de 5 µm, la tendance s'inverse avec $K >> S$, ce qui s'accompagne d'une augmentation et fluctuation de k_e et de n. Une augmentation de la diffusion mène à une diminution de la pénétration des photons au sein du matériau et par conséquent à une diminution de l'absorbance A et à une augmentation de la réflectance hémisphérique R_h comme on pourra le voir au chapitre suivant.

Tableau III-3 : Valeurs de la littérature des coefficients d'absorption k et de diffusion s pour λ=1µm

Matériau	k ou K (m^{-1})	s ou S (m^{-1})	Référence
ZrO_2 (TZP)	22,0	$1,26.10^4$	(Wahiduzzaman et Morel 1992)
ZrO_2 (PSZ)	20,9	$1,32.10^4$	
ZrO_2	30,0	$1,50.10^5$	(Siegel et M. Spuckler 1998)
ZrO_2 +8 %m.Y_2O_3	5,5	$1,07.10^5$	(Eldridge et Spuckler 2008)
ZrO_2	30,0	$1,10.10^4$	(Carillon 2007)
ZrO_2+Y_2O_3	10,0	$3,00.10^5$	
ZrO_2+8%m.Y_2O_3, SiO_2, Al_2O_3	≈ 9,0	≈ $3,10^4$	(Makino et al. 1985) -
Al_2O_3	8,0	$2,00.10^5$	(Carillon 2007)
Al_2O_3	≈ 3,0	≈ $2,10^4$	(Makino et al. 1985)-



a) b)

Figure III-11 : Variation de n, k_e, K et S pour a) Al_2O_3 b) ZrO_2 d'après (Makino et al. 1985)

b) Diffusion multiple

Dès que la concentration en particules augmente ou si l'épaisseur du milieu diffusant est importante, le flux incident sur une particule proviendra à la fois de la source principale et des autres particules agissant comme des sources secondaires. En effet, le rayonnement diffusé n'est pas définitivement perdu dans le système contrairement à la partie absorbée. Il change simplement de direction et peut retraverser les particules. Plus la section efficace de diffusion, le nombre de particules et l'épaisseur optique seront importants, plus grande sera la diffusion multiple en un point donné. Dans ce cas, le milieu est dit optiquement dense et on parle de régime de diffusion multiple *(Figure III-9.b)*. La lumière diffusée par une particule l'est au moins une fois par une autre particule. Les propriétés optiques ne peuvent plus être décrites comme la somme des contributions unitaires. Pour traiter ce cas, il est possible de travailler avec l'équation de transfert radiatif (ETR), la méthode statistique de Monte Carlo ou encore avec les équations de l'électromagnétique.

c) Diffusion dépendante et indépendante

La diffusion est dite **indépendante** (resp. **dépendante**) dans un milieu lorsque la capacité à diffuser pour chaque particule ne dépend pas (resp. dépend) de la présence de particules voisines, c'est-à-dire de la distance moyenne séparant les diffuseurs. Dans le cas dépendant, les particules peuvent diffuser de manière collective comme un agrégat cohérent *(Figure III-9.c)*. Des effets d'interférences en champ lointain sont observables entre les champs électromagnétiques diffusés par chaque particule. Ces cas sont traités par (Da Silva 2001) avec l'introduction dans l'ETR des sections efficaces et fonctions de phase corrigées.
La diffusion indépendante n'induit donc pas d'interférences, ce qui correspond à la condition de valeur minimale pour que d_{ip} / λ (le rapport de la distance inter-particulaire d_{ip} sur la longueur d'onde λ) soit égale à 0,5 selon (Tien et Drolen 1987). Cette condition est illustrée en *Figure III-12*. Notons qu'il n'y a plus d'effet de dépendance quelle que soit la taille des particules lorsque $f v_p < 0{,}006$ (soit d_{ip} /λ<0.3), la distance entre les particules devient trop importante comparée à leur taille. Ainsi chaque particule diffuse comme si elle était seule. Il a été démontré que ces calculs ne pouvaient pas s'appliquer à des sphères absorbantes ni à des empilements présentant peu de porosité (Baillis et Sacadura 2000). Dans le cas du procédé LBM, ce rapport vaut environ 10 si on considère des particules de taille moyenne égale à 10 µm et la longueur d'onde λ du laser à 1,070 µm. La fraction volumique de particules au sein des lits de poudres varie entre 40 et 60%. Sur la *Figure III-12*, le domaine du LBM est identifié en rouge. Il suit donc le régime de diffusion multiple indépendante et il est alors possible de travailler avec la résolution de l'ETR.

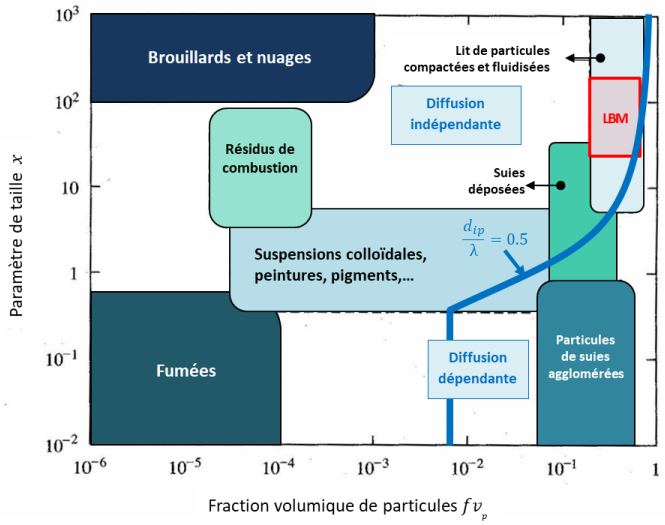


Figure III-12 : Identification des limites des domaines de diffusion dépendante et indépendante d'après (Tien et Drolen 1987). En rouge le domaine des lits de poudre LBM

III.2.1.3 Propriétés optiques et diélectriques pour les milieux effectifs

La théorie du milieu effectif permet de déterminer la fonction diélectrique $\tilde{\varepsilon}_{eff}$ d'un milieu homogène optiquement équivalent à un milieu hétérogène, ce qui est utile pour la résolution de l'équation de transfert radiatif. Les propriétés optiques des milieux hétérogènes requièrent alors une homogénéisation optique qui intègre l'influence de la porosité dans les propriétés optiques effectives notées n_{eff} et $\kappa_{e,eff}$.
Pour de faibles fractions volumiques f d'inclusions au sein d'une matrice, la fonction diélectrique $\tilde{\varepsilon}_{eff}$ d'un mélange matrice/inclusions s'exprime en fonction des propriétés des inclusions i et de la matrice mat selon la relation de Bruggeman (Bohren et Huffman 1983) :

$$\tilde{\varepsilon}_{eff} = \frac{(1-f).\tilde{\varepsilon}_{mat} + f.\beta\tilde{\varepsilon}_i}{(1-f) + f.\beta} \qquad \text{III.61}$$

Pour des inclusions sphériques : $\beta = \dfrac{3\tilde{\varepsilon}_{mat}}{\tilde{\varepsilon}_i + 2\tilde{\varepsilon}_{mat}}$

On obtient alors :

$$\boldsymbol{\tilde{\varepsilon}_{eff} = \tilde{\varepsilon}_{mat}\left[\frac{1 + 2f.\left(\frac{\tilde{\varepsilon}_i - \tilde{\varepsilon}_{mat}}{\tilde{\varepsilon}_i + 2\tilde{\varepsilon}_{mat}}\right)}{1 - f.\left(\frac{\tilde{\varepsilon}_i - \tilde{\varepsilon}_{mat}}{\tilde{\varepsilon}_i + 2\tilde{\varepsilon}_{mat}}\right)}\right]} \qquad \text{III.62}$$

Pour un mélange avec des inclusions de différentes natures, on a :

$$\tilde{\varepsilon}_{eff} = \frac{(1-f).\tilde{\varepsilon}_{mat} + \sum_j f_j.\beta_j.\tilde{\varepsilon}_j}{(1-f) + \sum_j f_j.\beta_j} \qquad \text{III.63}$$

Les **<u>lits de poudre</u>** étudiés (P_t >50%) peuvent être décrits comme des inclusions au sein d'une matrice d'air dont les caractéristiques sont les suivantes :

$$\begin{cases} \text{particules de poudre} : \{\tilde{\varepsilon}_i = \tilde{\varepsilon}_p \,;\, f = fv_p\} \\ \text{porosité} : \{\tilde{\varepsilon}_{mat} = \tilde{\varepsilon}_{air} = 1 \,;\; 1 - f = 1 - fv_p\} \end{cases}$$

De la même façon, les **<u>substrats</u>** contenant des pores peuvent être décris par :

$$\begin{cases} \text{pores} : \{\tilde{\varepsilon}_i = \tilde{\varepsilon}_{air} = 1 \,;\; f = P_t\} \\ \text{matrice} : \{\tilde{\varepsilon}_{mat} = \tilde{\varepsilon}_{sub} \,;\, 1 - f = 1 - P_t\} \end{cases}$$

Pour des substrats poreux de zircone, (Debout 2007) montre que l'augmentation du taux de porosité s'accompagne d'une diminution de l'indice de réfraction n_{eff} du milieu effectif, mais ne conduit pas à une diminution significative de l'indice d'extinction $\kappa_{e,eff}$.

La *relation (III.62)* est applicable dans le cas de **<u>mélanges de poudres</u>** céramiques oxydes de différentes natures (comme Al_2O_3-ZrO_2) et également pour des mélanges de céramiques oxydes avec les absorbants (comme A+0,1C). La matrice est alors remplacée par la phase majoritaire et les inclusions par la phase minoritaire :

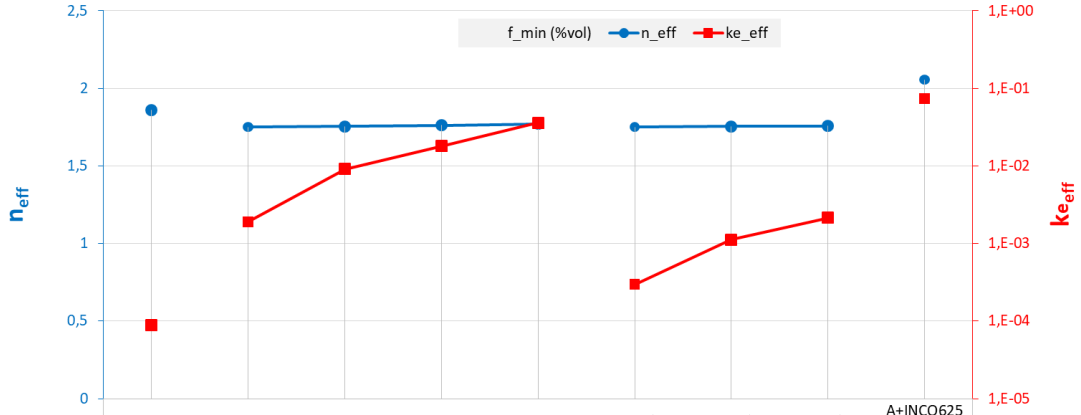
$$\begin{cases} \text{phase minoritaire} : \{\tilde{\varepsilon}_i = \tilde{\varepsilon}_{min} \,;\, f_{min}\} \\ \text{phase majoritaire} : \{\tilde{\varepsilon}_{mat} = \varepsilon_{maj} = 1 \,;\; 1 - f = f_{maj}\} \end{cases}$$

Une fois $\tilde{\varepsilon}_{eff}$ déduit de l'*équation (III.62)*, n_{eff} et k_{eff} sont calculés à partir des parties réelle et imaginaire de $\tilde{\varepsilon}_{eff}$ en les égalant aux *relations (III.9) et (III.10)*. Ces calculs permettent alors de définir les valeurs associées aux mélanges de poudres de l'étude *(Figure III-13)*. Pour ces calculs, d'après la *Figure III-1* et le *Tableau III-1*, les valeurs des constituants purs sont définies au *Tableau III-4* ci-dessous.

Tableau III-4 : Valeurs de n et k_e des constituants individuels choisies pour les calculs de n_{eff} et k_{eff}

Matériau	n	k_e
Al_2O_3	1,75	$9{,}23.10^{-5}$
ZrO_2	2,12	$7{,}91.10^{-5}$
Nickel	2,62	5,26
Carbone	2,20	1,12
SiC	2,49	0,21

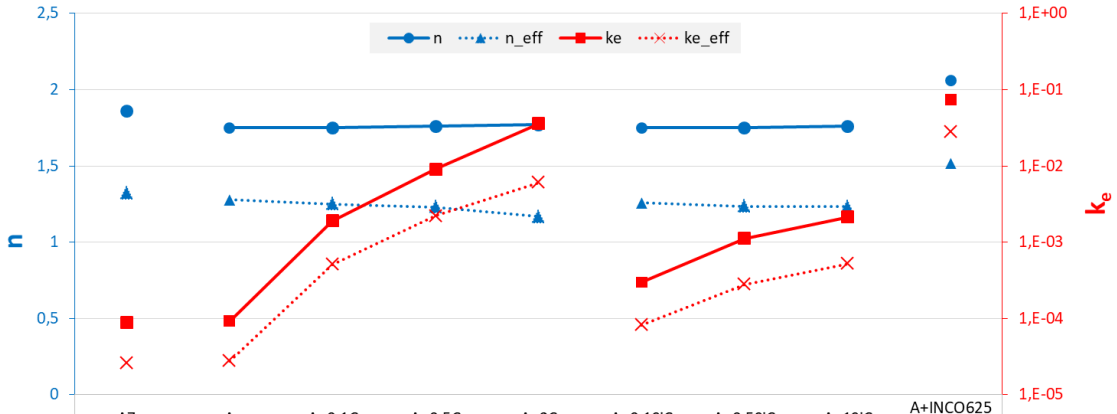
Les valeurs des n_{eff} et k_{eff} sont moyennées par rapport aux valeurs de n et k_e des constituants individuels. Les valeurs de k_{eff} sont fortement influencées par l'ajout d'absorbant, et ceci même pour de faibles teneurs : par exemple avec l'addition de 0,1%m. de carbone, le coefficient d'extinction de l'alumine passe de 9,2 10^{-5} à 1,9 10^{-3}.



	AZ	A+0,1C	A+0,5C	A+1C	A+2C	A+0,1SiC	A+0,5SiC	A+1SiC	A+INCO625 10/90
f_min (%vol)	31,3%	0,2%	0,9%	1,8%	3,6%	0,1%	0,6%	1,2%	10,0%
n_eff	1,86	1,75	1,76	1,76	1,77	1,75	1,75	1,76	2,06
ke_eff	8,9E-05	1,9E-03	9,1E-03	1,8E-02	3,6E-02	3,0E-04	1,1E-03	2,1E-03	7,4E-02

Figure III-13 : Indices de réfraction et d'extinction effectifs calculés pour les mélanges de poudres. On notera que par manque de données, l'Inconel 625 a été simplifié par le nickel pur.

Une fois les valeurs de n et k_e des mélanges établies, il est possible d'exprimer n_{eff} et k_{eff} pour les lits de poudre étudiés grâce à *l'équation (III.62)* en considérant les particules solides dans une matrice d'air *(Figure III-14)*. Quel que soit le système, la porosité atténue les indices de réfraction et d'extinction. Tout comme mentionné par (Debout 2007), l'effet sur l'indice de réfraction est nettement plus marqué que sur le coefficient d'extinction.



	AZ	A	A+0,1C	A+0,5C	A+2C	A+0,1SiC	A+0,5SiC	A+1SiC	A+INCO625 10/90
n	1,86	1,75	1,75	1,76	1,77	1,75	1,75	1,76	2,06
n_eff	1,32	1,28	1,25	1,23	1,17	1,26	1,24	1,23	1,52
Pt(%)	55,6	57,3	61,1	64,33	74	60,2	63,3	64,1	41,6
ke	8,9E-05	9,2E-05	1,9E-03	9,1E-03	3,6E-02	3,0E-04	1,1E-03	2,1E-03	7,4E-02
ke_eff	2,6E-05	2,8E-05	5,1E-04	2,2E-03	6,1E-03	8,2E-05	2,8E-04	5,2E-04	2,8E-02

Figure III-14 : Comparaison des indices de réfraction et d'extinction des matériaux denses et des lits de poudre associés

III.2.2 Equation du transfert radiatif

Dans le cadre de la diffusion multiple indépendante, la théorie du transfert radiatif permet de décrire la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés où se produisent des phénomènes de diffusion et d'absorption multiples. Cette théorie est phénoménologique : l'approche utilise une description de la lumière par des flux énergétiques, sans passer par les équations de Maxwell. Le bilan des flux lumineux se propageant à l'intérieur du milieu diffusant est établi sous la forme d'une équation de transport appelée l'Equation du Transfert Radiatif (ETR). De plus, le milieu dans lequel se produisent la diffusion et l'absorption est traité comme un milieu continu. L'intérêt de la résolution de l'ETR est de mettre en lien les grandeurs expérimentales mesurées de réflectance et de transmittance hémisphériques R_h et Tr_h avec les coefficients d'absorption et de diffusion intrinsèques {k, s} ou effectifs {K, S} des matériaux étudiés.

Deux types de méthodes existent pour résoudre l'ETR : une méthode statistique comme la méthode Monte-Carlo ou alors la simplification du problème en discrétisant l'espace. Nous optons pour la dernière méthode. Ainsi, dans un premier temps, la théorie de Mie permet la détermination des sections efficaces d'absorption et de diffusion dans le cas d'une particule isolée dans un milieu non absorbant. Deuxièmement, l'ETR s'applique dans le cadre de la diffusion indépendante. Enfin, une solution générale à l'ETR est formulée par l'homogénéisation du milieu étudié et l'écriture d'un système de N équations différentielles couplées en fonction de coefficients inconnus. Puis, s'ensuit le choix des conditions aux limites et la résolution du système d'équations différentielles avec la détermination des coefficients de diffusion s et d'absorption k (Debout 2007; Simonot 2002).

Les domaines de validité de l'ETR impliquent que le milieu soit non magnétique, non émissif, statistiquement homogène et isotrope. L'homogénéité du milieu assure l'indépendance des coefficients de diffusion et d'absorption, et de la fonction de phase à la position x. La concentration en particules diffusantes doit être faible (cas de la diffusion indépendante). Enfin, la position des particules diffusantes dispersées dans le milieu doit être aléatoire (Baillis et Sacadura 2000).

III.2.3 Méthodes de résolution de l'ETR

Le calcul exact des flux diffus dans toutes les directions et pour chaque longueur d'onde est complexe. Afin de simplifier la mise en équation, plusieurs méthodes de résolution de l'ETR ont été développées, avec divers degrés de simplicité et de précision par rapport aux flux modélisés.

Des méthodes de résolution simples permettent d'aboutir à une résolution complètement analytique de l'ETR mais son domaine de validité est restreint. Parmi elles, les méthodes à **1-flux** (de *Beer-Lambert*) et à **2-flux** (de *Kubelka-Munk*), permettent d'avoir une bonne compréhension de la physique de l'ETR. Notons que le modèle de Kubelka et Munk (K-M) reste très utilisé en raison de sa simplicité et de sa robustesse. D'autres méthodes fournissent des résultats exacts mais nécessitent une résolution numérique souvent coûteuse en temps de calcul. C'est le cas du **modèle 3-flux** (Kuhn et al. 1993), **4-flux** de *Lorentz-Mie* ou *Gouesbet-Maheu*, **multi-flux** de *Chandrasekhar*, de la **fonction auxiliaire** (Simonot 2002), de la méthode **statistique Monte-Carlo**, etc. La méthode à 2-flux de *Kubelka-M*unk considère uniquement la propagation d'un ensemble de 2-flux diffus dans deux directions opposées (flux incident et flux réfléchi), la méthode des 4-flux de *Lorentz-Mie/Gouesbet-Maheu* considère deux flux spéculaires et deux flux diffus intégrés se propageant dans des directions opposées. La m*éthode à N-flux* dite des « ordonnées discrètes » fait appel à une discrétisation angulaire de l'espace sous forme de N canaux.

Les méthodes à 2 et 4 flux seront présentées ci-après. La méthode à 2 flux permet de comprendre, en première approximation et à l'aide de formules analytiques, le comportement radiatif des lits de poudre lorsque leur substrat ou l'épaisseur de poudre varient. Il sera néanmoins important de préciser les limites de cette théorie, (Jarrige 2012; Simonot 2002).

III.2.3.1 Nomenclature

Il est important de définir avant tout les variables utilisées pour faciliter la lecture des figures qui suivent. Les flux pourront être attachés à des indices simples tels que :

- **f** (« front ») qui est lié à la face avant de la surface supérieure (z=0)
- **b** (« back ») qui est lié à la face arrière de la surface supérieure (z=0)
- **s** (« substrat ») qui est lié à la face supérieure de la surface inférieure (z= δ)
- **g** (« ground ») lié au substrat (z= δ)

Puis à des indices doubles :

- **cc** se réfèrent à la valeur collimatée sous incidence collimatée
- **cd** se réfèrent à la valeur collimatée sous incidence diffuse
- **dd** se réfèrent à la valeur diffuse sous incidence diffuse

A titre d'exemple, le coefficient r_{cc}^{f} sera identifié comme le coefficient de réflexion de la lumière collimatée sous flux collimaté en surface frontale de la couche. Le coefficient « r » fait référence au coefficient de réflexion d'une surface unique (unitaire), tandis que « R » est la réflectance hémisphérique du système dans sa globalité.

Les formules pourront tantôt s'appliquer à une couche de poudre considérée comme semi-infinie, et donc de réflectance hémisphérique R_{∞}, ou tantôt à un milieu granulaire d'épaisseur finie déposé ou non sur un fond, qui peut être un substrat dit « fond blanc » totalement réfléchissant ou un substrat dit « fond noir » totalement absorbant. A ces fonds, sont associées les valeurs de réflectance R_g résultant des mesures sans dépôts de poudre.
$I(z)$ et $J(z)$ sont les irradiances dans les sens incident et rétrograde. L'indice 0 est toujours employé pour le rayonnement incident. Les mêmes notations sont applicables pour les valeurs de transmittance.

III.2.3.2 Méthode à deux flux : Kubelka-Munk

Dès 1905, Schuster s'intéresse à l'absorption et à l'émissivité des atmosphères stellaires où l'émissivité est le résultat d'une part, de la diffusion et d'autre part, de la luminescence aux hautes températures. Il considère alors un milieu homogène, isotrope aux surfaces planes, parallèles et infinies de telle sorte que les effets de bords puissent être négligés. Ce milieu est éclairé par une lumière monochromatique incidente diffuse et homogène. Schuster décrit le bilan des flux lumineux en ne considérant que deux flux diffus et isotropes, l'un entrant et l'autre sortant. La dépendance angulaire des flux diffus recueillis est perdue. Soient $I_d(z)$ le flux diffus se propageant dans le sens du rayonnement incident et $J_d(z)$ le flux diffus dans le sens rétrograde *(Figure III-15)*. Il établit un système de deux équations différentielles du premier ordre *(équation III.64)*. La résolution complète et générale de ces équations est donnée en 1931 par Kubelka et Munk. Les **coefficients effectifs d'absorption K** et de **diffusion S** exprimés en (m^{-1}) sont introduits et ont des significations physiques différentes de celles des coefficients intrinsèques d'absorption k et de diffusion s de la théorie de Mie énoncée précédemment. Le lien entre les coefficients intrinsèques (liés aux particules individuelles) et effectifs (liés à l'ensemble du lit de poudre) est détaillé par la suite. La diffusion S est majoritairement liée à la morphologie et l'absorption K à la chimie du matériau ou du système. Ce modèle à 2 flux présente un domaine d'applicabilité restreint car il requiert des valeurs de S suffisamment élevées pour obtenir rapidement un rayonnement interne diffus, ce qui est le cas pour les matériaux céramiques étudiés à la longueur d'onde d'intérêt.

Le système d'équations différentielles linéaires d'ordre 1 à coefficients constants qui résulte de l'échange de flux dans une portion dz du milieu particulaire est le suivant :

$$\begin{cases} \frac{dI_d(z)}{dz} = -K.I_d(z) + S.J_d(z) - S.I_d(z) \\ -\frac{dJ_d(z)}{dz} = -K.J_d(z) + S.I_d(z) - S.J_d(z) \end{cases} \qquad \text{III.64}$$

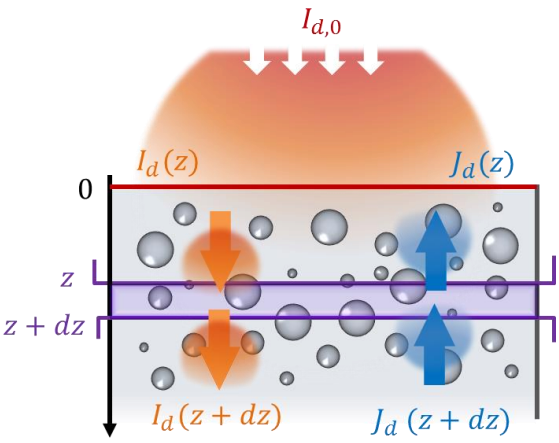


Figure III-15 : Modèle à deux flux de Kubelka-Munk : illumination diffuse et flux internes diffus

Les coefficients d'absorption K et de diffusion S introduits par *Kubelka* et *Munk* ont des significations physiques limitées car les luminances[2] « directe » et « inverse » sont considérées isotropes en chaque point. La solution générale du système revient à écrire que les deux flux $I_d(z)$ et $J_d(z)$ sont des fonctions exponentielles. (Emmel 2000) retranscrit ce système d'équations différentielles sous forme matricielle qui conduit à deux valeurs propres ($\pm\ \alpha_{ext}$) associés et deux vecteurs propres :

$$\begin{cases} I_d(z) = A(1-\beta).e^{\alpha_{ext}z} + B(1+\beta).e^{-\alpha_{ext}z} \\ J_d(z) = A(1+\beta).e^{\alpha_{ext}z} + B(1-\beta).e^{-\alpha_{ext}z} \end{cases} \qquad \text{III.65}$$

avec

$$\begin{cases} A = -\dfrac{(1-\beta)e^{-\alpha_{ext}z}}{(1+\beta)^2 e^{\alpha_{ext}z} - (1-\beta)^2.e^{-\alpha_{ext}z}}.I_0 \\ B = -\dfrac{(1+\beta)e^{\alpha_{ext}z}}{(1+\beta)^2 e^{\alpha_{ext}z} - (1-\beta)^2.e^{-\alpha_{ext}z}}.I_0 \end{cases}$$

$$\beta = \sqrt{\mathrm{K}/(\mathrm{K} + 2\mathrm{S})}$$
$$\boldsymbol{\alpha_{ext}} = \sqrt{\mathbf{K(K + 2S)}} \qquad \text{III.66}$$

S'il n'y a pas de diffusion ($S = 0$), on retrouve l'*équation (III.60)* de Beer-Lambert.

Les limites de la théorie sont concentrées dans la partie expérimentale. En effet, éclairer l'échantillon de manière diffuse est difficilement réalisable et présente peu d'intérêt dans le cas du LBM, où l'interaction avec le lit de poudre se fait sous faisceau laser collimaté. Dans notre cas, le dispositif de la sphère intégrante présenté au *Chapitre IV*, produit un éclairage collimaté et permet une observation diffuse du signal réfléchi ou transmis.

Dans cette méthode de résolution de l'ETR, la description angulaire des flux diffus et la condition d'illumination collimatée sont perdues. Les formules permettent d'approcher le spectre de réflectance d'un échantillon hétérogène du type lit de poudre et de comprendre son évolution lorsque l'épaisseur ou la nature du substrat sur lequel il repose sont modifiés. Les autres limites de cette méthode résident dans le fait qu'elle induit un écart de valeurs par rapport aux méthodes exactes citées précédemment. Elle n'est pas adaptée aux matériaux absorbants (de préférence $R_{h,\infty}$ >0,6) et elle ne prend pas en compte les discontinuités de l'indice de réfraction aux interfaces. La relation de Saunderson, décrite plus loin, permet néanmoins de pallier cette lacune. De plus, le rayonnement interne étant supposé diffus, l'échantillon doit avoir une épaisseur supérieure à $3{,}5\ (K+S)^{-1}$ sous un rayonnement incident collimaté alors que sous un rayonnement diffus, l'épaisseur minimale est égale à $0{,}5.(S+K)^{-1}$ (Debout 2007).

[2] flux spectraux émis par unité de surface et par unité d'angle solide, à une température T dans une direction sous angle θ

Ce qui fait la popularité de la théorie de Kubelka-Munk est qu'elle permet de déterminer les valeurs des coefficients K et S de façon explicite, et ce indépendamment l'un de l'autre. Ceci est possible à travers la mesure de deux couches de poudre d'épaisseurs différentes. On mesure avant tout la réflectance d'une épaisseur semi-infinie dite **« cas opaque »** (R_∞^{KM}) que l'on combine avec la réflectance d'une couche d'épaisseur finie dite « **cas translucide** ». Cette couche d'épaisseur finie est déposée sur un fond de réflectance connue (R_g), notée dans le cas présent R_g^{KM}. Ce fond peut être un substrat dense (avec $R_g = R_{h,s}$), un « **fond blanc** » totalement réfléchissant (pour lequel $R_g = 1$) ou un « **fond noir** » totalement absorbant (pour lequel $R_g = 0$). Si la couche de poudre est déposée sur du verre ou sur aucun substrat (cas du compact de poudre suffisamment cohésif pour se maintenir sans substrat), la couche de poudre est dite « **autoportée** » et la réflectance du système est notée R^{KM}. On note que cette configuration est alors équivalente au cas du dépôt sur un fond noir avec $R_g = 0$. Il est également possible de combiner la mesure de la réflectance du cas opaque R_∞^{KM} avec la mesure de transmittance $Tr_h = Tr^{KM}$ du système autoporté.

a) Cas opaque

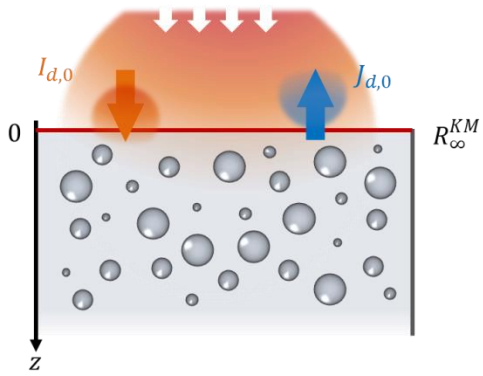


Figure III-16 : Modèle à deux flux de Kubelka-Munk dans le cas d'un milieu opaque d'épaisseur semi- infinie

Le cas le plus simple consiste à considérer un milieu opaque représenté en *Figure III-16*, dans lequel le flux s'éteint avant de traverser toute l'épaisseur du milieu (Kubelka 1948). Ceci revient à supposer que le milieu est infini ($\delta = +\infty$), c'est-à-dire $I(z), J(z) \xrightarrow[z\to+\infty]{} 0$. On peut alors exprimer la réflectance issue de l'illumination diffuse d'un milieu opaque à sa surface libre $z = 0$ à partir de l'*équation (III.66)* :

$$R_\infty^{KM} = R_{h,\infty} = \frac{J_d(0)}{I_d(0)} = \frac{J_{d,0}}{I_{d,0}} = \frac{1-\beta}{1+\beta} = 1 + \frac{K}{S} - \sqrt{\left(1+\frac{K}{S}\right)^2 - 1} = \frac{1}{1 + \frac{K}{S} + \sqrt{\frac{K}{S}\left(2+\frac{K}{S}\right)}} \qquad \text{III.67}$$

Soit :

$$\boldsymbol{\frac{K}{S} = \frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{2R_\infty^{KM}} \equiv F(R_\infty^{KM})} \qquad \text{III.68}$$

Cette dernière formule appelée *« fonction de Kubelka-Munk »* est valable pour chaque longueur d'onde λ. Si $R_\infty^{KM} = 0$ pour $S = 0$, le milieu est absorbant et est décrit par Beer-Lambert. En revanche, si $R_\infty^{KM} = 1$ pour $K = 0$, le matériau est non absorbant (cas du blanc idéal). Cette équation permet également de préciser la condition selon laquelle un dépôt d'épaisseur δ peut être assimilé à un milieu semi-infini, à savoir :

$$\delta \gg \delta_{\text{ext}} = 1/\sqrt{\mathrm{K}(\mathrm{K} + 2\mathrm{S})} \qquad \text{soit} \qquad \delta \gg \frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{(1+R_\infty^{KM})} \cdot \frac{1}{K}$$

Par ailleurs, il existe dans la littérature une résolution de ce même système d'*équations (III.60)* par des fonctions hyperboliques et des coefficients dits secondaires notés a et b – *équation (III.69)* – ce qui simplifie fortement l'évaluation des grandeurs pertinentes K et S à partir des mesures de R_∞^{KM} (Kubelka 1948).

$$\begin{cases} a = \dfrac{S+K}{S} = \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{1}{R_\infty^{KM}} + R_\infty^{KM}\right) = \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{1+R_\infty^{KM^2}}{R_\infty^{KM}}\right) \\ b = \sqrt{a^2-1} = \dfrac{\alpha_{ext}}{S} = \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{1}{R_\infty^{KM}} - R_\infty^{KM}\right) = \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{1-R_\infty^{KM^2}}{R_\infty^{KM}}\right) \end{cases} \qquad \text{III.69}$$

La fonction de K-M définie par *l'équation (III.67)* est représentée en *Figure III-17* pour une couche de peinture blanche dans laquelle a été progressivement ajouté du noir de carbone. Dans ce mélange, (Kortüm 1969) a démontré que la diffusion S du mélange est principalement définie par la diffusion du pigment blanc et ne varie pas avec l'ajout de carbone. Toutefois, l'absorption K de ce même mélange augmente avec l'ajout de carbone et le rapport K/S est donc proportionnel à l'addition de noir de carbone. On note la forte décroissance initiale de R_∞^{KM} pour de faibles additions de noir de carbone, ce qui montre la forte sensibilité d'un matériau idéalement blanc à l'ajout de faibles quantités d'impuretés absorbantes. Ceci explique notamment que la valeur de $R_\infty^{KM} = 1$ soit rarement atteinte.

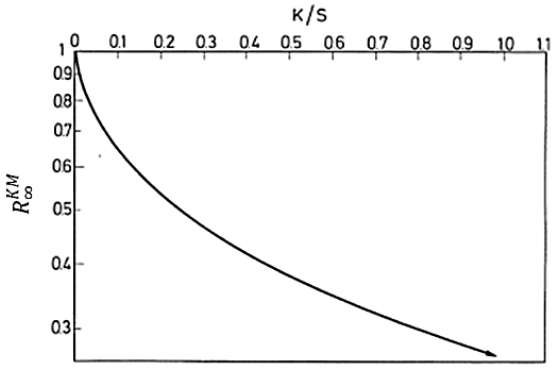


Figure III-17 : Réflectance R_∞^{KM} d'une épaisse couche d'une peinture blanche (échelle logarithmique) : la dépendance en fonction de K/S est obtenue avec l'ajout progressif de faibles quantités de noir de carbone d'après (Kortüm, 1969)

La méthode dite opaque, ne permet pas la détermination individuelle de K et S, seul le quotient K/S est accessible. Dans ce qui suit, nous allons voir qu'il est possible d'y parvenir en combinant la méthode dite opaque avec les méthodes dites translucides.

b) Cas translucide

Il est possible d'exprimer la valeur de la réflectance R_g^{KM} d'une épaisseur de poudre déposée sur un fond de réflectance connue R_g *(Figure III-18)*. La condition radiative de la surface supérieure du substrat en $z = \delta$ est définie par $J_d(\delta)/I_d(\delta) = R_g$ et celle de la surface supérieure du lit de poudre $J_d(0)/I_d(0) = R_g^{KM}$. Avec l'introduction des fonctions hyperboliques et les coefficients a et b définis par l'*équation (III.69)*, (Kubelka 1948) explicite la relation suivante :

$$R_g^{KM} = R_{h,g} = \frac{1 - R_g.[a - b.\coth(bS\delta)]}{a + b.\coth(bS\delta) - R_g} \qquad \text{III.70}$$

Ou encore :

$$R_g^{KM} = \frac{\left(\frac{1}{R_\infty^{KM}}\right).\left(R_g - R_\infty^{KM}\right) - R_\infty^{KM}.\left(R_g - \frac{1}{R_\infty^{KM}}\right).e^{S\delta 2b}}{\left(R_g - R_\infty^{KM}\right) - \left(R_g - \frac{1}{R_\infty^{KM}}\right).e^{S\delta 2b}} \qquad \text{III.71}$$

En isolant S (Kortüm 1969) et en sachant que le rapport K/S doit satisfaire l'*équation (III.68)*, on obtient K tel que :

$$\begin{cases} S = \frac{1}{\delta b} coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - R_g)}{b(R_g - R_g^{KM})}\right) \equiv F(R_g^{KM}, R_g, R_\infty^{KM}) \\ K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1 - R_\infty^{KM})^2}{1 - R_\infty^{KM^2}}.coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - R_g)}{b(R_g - R_g^{KM})}\right) \equiv F(R_g^{KM}, R_g, R_\infty^{KM}) \end{cases} \quad \text{III.72}$$

La mesure en deux temps de R_g^{KM} et R_∞^{KM}, tout en connaissant l'épaisseur δ du milieu granulaire et la réflectance du substrat R_g pour le cas translucide, donne alors accès aux valeurs de K et de S.

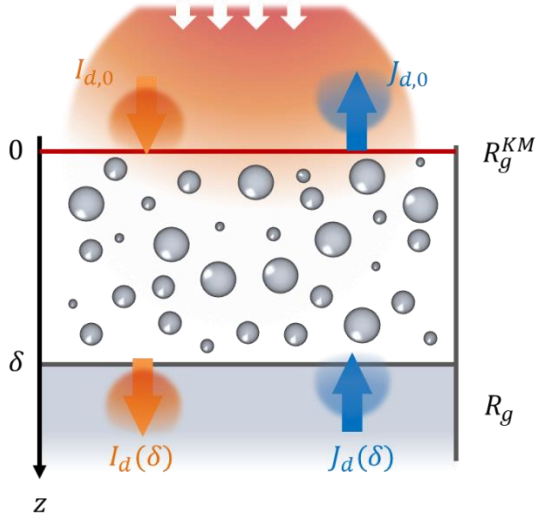


Figure III-18 : Modèle à deux flux de Kubelka-Munk dans le cas d'un milieu translucide d'épaisseur finie déposé sur un substrat

Dans le cas d'un <u>fond blanc totalement réfléchissant</u>, $R_g = 1$, on a

$$R^{KM} = \frac{J_d(0)}{I_d(0)} = R_h = \frac{1 - a + b.\coth(bS\delta)}{a + b.\coth(bS\delta) - 1}$$

$$\begin{cases} S = \frac{1}{\delta b}.coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - 1)}{b(1 - R_g^{KM})}\right) \equiv F(R_g^{KM}, R_\infty^{KM}, R_g = 1) \\ K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1 - R_\infty^{KM})^2}{1 - R_\infty^{KM^2}}.coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - 1)}{b(1 - R_g^{KM})}\right) \equiv F(R_g^{KM}, R_\infty^{KM}, R_g = 1) \end{cases} \quad \text{III.73}$$

Pour une couche d'épaisseur finie sans fond dite <u>autoportée</u>, il n'y a pas de radiation émergent de la face arrière, $J(\delta) = 0$, et ce cas est équivalent au dépôt d'une couche sur <u>fond noir totalement absorbant</u> avec $R_g = 0$. (Kubelka 1948) définit à l'aide de la résolution hyperbolique, la réflectance R^{KM} à la surface $z = 0$ et la transmittance Tr^{KM} à la surface arrière (z= δ) du système :

$$R^{KM} = \frac{J_d(0)}{I_d(0)} = R_h = \frac{\sinh(bS\delta)}{a.\sinh(bS\delta) + b.\cosh(bS\delta)} = \frac{1}{a + b.\coth(bS\delta)} \quad \text{III.74}$$

$$Tr^{KM} = Tr_h = \frac{I_d(\delta)}{I_d(0)} = \frac{\text{b}}{a.\sinh(bS\delta) + b.\cosh(bS\delta)} \quad \text{III.75}$$

Ce qui équivaut à :

$$R^{KM} = \frac{R_\infty^{KM}(e^{S\delta 2b} - 1)}{e^{S\delta 2b} - R_\infty^{KM^2}} \quad \text{III.76} \qquad Tr^{KM} = \frac{(1 - R_\infty^{KM})^2 e^{-bS\delta}}{1 - R_\infty^{KM^2} \cdot e^{-2bS\delta}} \quad \text{III.77}$$

L'*équation (III.77)* est équivalente à la *relation (III.40)* vue pour le cas homogène. Par contre, l'*équation (III.76)* n'est pas équivalente à la *relation (III.40)*.

Puis, on retrouve les expressions des coefficients S et K à partir de l'*équation (III.72)* pour $R_g = 0$:

$$\begin{cases} S = \frac{1}{\delta b}.coth^{-1}\left(\frac{1 - a.R^{KM}}{b.R^{KM}}\right) \equiv F\left(R^{KM}, R_\infty^{KM}, R_g = 0\right) \\ K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1 - R_\infty^{KM})^2}{1 - R_\infty^{KM\,2}}.coth^{-1}\left(\frac{1 - a.R^{KM}}{b.R^{KM}}\right) \equiv F\left(R^{KM}, R_\infty^{KM}, R_g = 0\right) \end{cases} \quad \text{III.78}$$

S et K peuvent également s'exprimer en fonction de la transmittance Tr^{KM} en s'aidant des *équations (III.76) et (III.77)* :

$$\begin{cases} S = \frac{1}{\delta b}.\left[\sinh^{-1}\left(\frac{b}{Tr^{KM}}\right) + \ln(R_\infty^{KM})\right] \equiv F(Tr^{KM}, R_\infty^{KM}) \\ K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1 - R_\infty^{KM})^2}{1 - R_\infty^{KM\,2}}.\left[\sinh^{-1}\left(\frac{b}{Tr^{KM}}\right) + \ln(R_\infty^{KM})\right] \equiv F(Tr^{KM}, R_\infty^{KM}) \end{cases} \quad \text{III.79}$$

Pour le dépôt sur un fond noir comme sur un fond blanc, idéalement cela revient à écrire respectivement $R_g = 0$ et $R_g = 1$. Cependant, il est plus rare d'utiliser le fond blanc car $R_g = 1$ n'est jamais atteint expérimentalement. La *Figure III-19* décrit la variation de la réflectance R_g^{KM} d'un lit de poudre déposé sur un fond noir en fonction du produit $S\delta$ qui rend compte du pouvoir diffusant du système. La quantité R_g^{KM} augmente asymptotiquement avec Sδ jusqu'à atteindre un palier correspondant à R_∞^{KM}. Cette pente abrupte indique qu'une surface totalement absorbante ($R_g = 0$) est difficilement atteignable. Cette augmentation initiale se retrouvant pour différentes valeurs de R_∞^{KM}, il est possible de travailler avec des fonds quasi-totalement noirs, à condition que les grandeurs R_g^{KM} du dépôt sur ces fonds soient suffisamment éloignées de la valeur R_g^{KM} du dépôt sur le fond blanc.

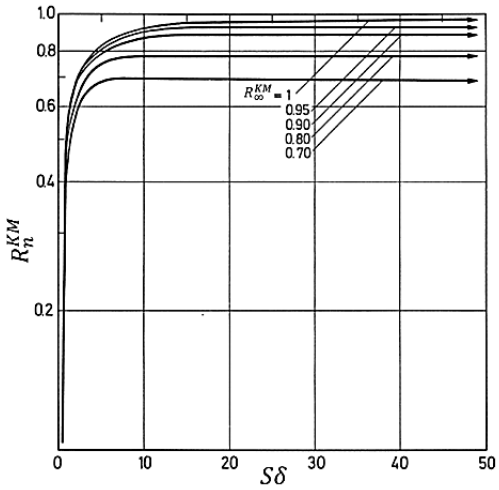


Figure III-19 : Réflectance R_g^{KM} d'une couche d'épaisseur finie sur un fond noir en échelle logarithmique en fonction de Sδ, pour différentes valeurs de R_∞^{KM} d'après (Kortüm 1969)

III.2.3.3 Correction de Saunderson pour Kubelka-Munk

Les calculs issus de K-M sont valables en l'absence de discontinuité de surface des propriétés optiques. Or, les milieux étudiés présentent une discontinuité de l'indice de réfraction à l'interface air/échantillon. La

réflectance mesurée expérimentalement sur la face avant diffère donc de celle calculée juste à l'intérieur du milieu sur la face arrière. La correction de surface de *Giovanelli-Saunderson* relie ces deux réflectances en prenant en compte les réflexions à l'interface *(Figure III-20)*. Pour un flux incident unitaire I_d^f, sur la face avant de la surface supérieure, le flux diffus réfléchi vers l'extérieur est représenté par le produit $I_d^f.r_{dd}^f$, la grandeur r_{dd}^f étant le **coefficient de réflexion énergétique diffuse externe.** Le complément $I_d^f.(1-r_{dd}^f)$ correspond au flux transmis à l'intérieur du milieu. Sur la face arrière de la surface supérieure, on définit par analogie le flux rétrograde unitaire J_d^b, le flux réfléchi vers l'intérieur $J_d^b.r_{dd}^b$ où r_{dd}^b est le **coefficient de réflexion énergétique diffuse interne** et $J_d^b.(1-r_{dd}^b)$ le flux transmis à l'extérieur.

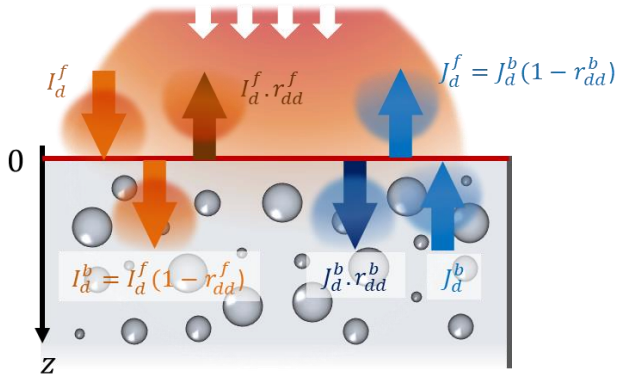


Figure III-20 : Bilan des flux présents à l'interface suivant la correction de Saunderson pour le modèle K-M sous flux incident diffus. I_d^f et J_d^f sont les irradiances externes et I_d^b et J_d^b les irradiances internes.

En prenant en compte la réflexion aux interfaces d'un échantillon d'épaisseur finie sur un substrat, on corrige les valeurs du modèle de K-M par les relations suivantes :

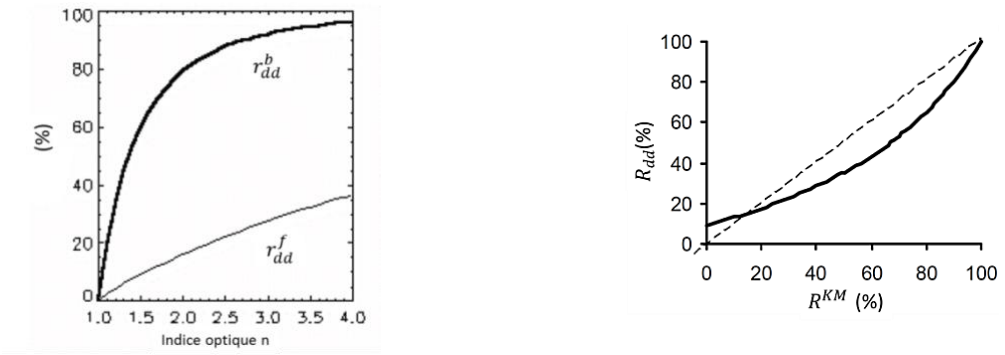
$$R_{dd} = r_{dd}^f + \frac{(1-r_{dd}^f)(1-r_{dd}^b)}{1-r_{dd}^b.R^{KM}}\left[R^{KM} + \frac{Tr^{KM^2}.r_{dd}^b}{(1-r_{dd}^b.R^{KM})^2 - Tr^{KM^2}.{r_{dd}^b}^2}\right] \qquad \text{III.80}$$

$$Tr_{dd} = \frac{(1-r_{dd}^f)(1-r_{dd}^b).Tr^{KM}}{(1-r_{dd}^b.R^{KM})^2 - Tr^{KM^2}.{r_{dd}^b}^2} \qquad \text{III.81}$$

Et pour une épaisseur semi-infinie sous illumination diffuse, l'équation (III.80) devient :

$$R_{dd,\infty} = r_{dd}^f + \frac{(1-r_{dd}^f)(1-r_{dd}^b).R_\infty^{KM}}{1-r_{dd}^b.R_\infty^{KM}} \qquad \text{III.82}$$

La *Figure III-21* issue des calculs de (Simonot 2002), montre que la prise en compte de la réflexion diffuse à l'interface n'est pas négligeable surtout sur la face arrière. Par exemple, pour un indice de réfraction n=1,5, r_{dd}^f*=10 %* et r_{dd}^b*=60 %* *(Figure III-21.a)*. De plus, la correction de Saunderson entraîne une modification sensible du facteur de réflectance *(Figure III-21.b)*. Cette réflectance est le plus souvent inférieure à celle avant correction.



a) b)

Figure III-21 : Variation a) des coefficients de réflexion diffuse en fonction de l'indice de réfraction b) de la réflectance après correction de Saunderson pour n=1,5 en fonction de la réflectance avant correction selon (Simonot 2002)

III.2.3.4 Méthode à 4 flux de Gouesbet-Maheu/Lorentz-Mie

La méthode des 4 flux est ainsi nommée car le flux incident est défini comme la somme de deux composantes : une composante diffuse et une composante collimatée. On distingue alors sous un faisceau incident collimaté, quatre flux lumineux au total : un flux collimaté et un flux diffus dans chaque sens de propagation, opposé et direct correspondant aux flux incidents et réfléchis comme schématisé en *Figure III-22*. L'avantage du modèle à 4 flux est qu'il s'applique à la fois à des milieux absorbants et diffusants tandis que le modèle à 2 flux ne s'applique que pour des milieux diffusants.

Le milieu étudié est directement caractérisé par ses coefficients intrinsèques d'absorption k et de diffusion s. Il est nécessaire de définir des paramètres supplémentaires pour tenir compte du chemin optique réellement parcouru dans le matériau et du caractère isotrope ou non du rayonnement diffusé. On notera **ζ** la fraction d'intensité du faisceau collimaté transformée en rayonnement diffus dans la direction incidente z. Pour la diffusion de Mie, **1/2 < ζ < 1** : ζ = 0,5 si la diffusion est symétrique, ζ >0,5 si la diffusion domine vers l'avant et ζ <0,5 si la rétrodiffusion prédomine.

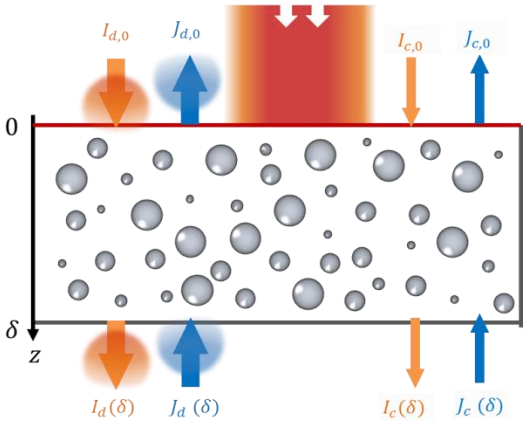


Figure III-22 : Configuration adoptée pour la méthode des 4 flux

Dans le lit de poudre, la trajectoire du rayonnement n'est pas rectiligne, il y a augmentation du trajet optique liée à la diffusion : **γ** est alors le facteur multiplicatif. Il vaut 1 pour un rayonnement collimaté et 2 pour une diffusion isotrope dans la direction de propagation. Ce facteur γ permet donc de tenir compte de la distance moyenne parcourue par le rayonnement diffus. On a alors :

- le coefficient de perte d'intensité par suite de l'absorption du milieu, du faisceau collimaté **k** et du faisceau diffus **γ k**
- le coefficient de perte d'intensité par suite de la diffusion par le milieu, du faisceau collimaté **s**

- les coefficients de perte d'intensité par suite de la diffusion vers l'avant, du faisceau collimaté **ζ s** et du faisceau diffus **γ ζ s**
- les coefficients de perte d'intensité par suite de la diffusion vers l'arrière, du faisceau collimaté **(1-ζ).s** et du faisceau diffus **γ.(1- ζ).s**.

Le bilan des flux conduit aux équations différentielles suivantes :

$$\begin{cases} \dfrac{dI_c(z)}{dz} = (k+s).I_c(z) \\ \dfrac{dJ_c(z)}{dz} = -(k+s).\,J_c(z) \\ -\dfrac{dI_d(z)}{dz} = -\gamma.k.I_d(z) - \gamma.(1-\zeta).s.I_d(z) + \gamma.(1-\zeta).s.J_d(z) + \zeta.s.I_c(z) + (1-\zeta).s.J_c(z) \\ \dfrac{dJ_d(z)}{dz} = -\gamma.k.J_d(z) - \gamma.(1-\zeta).s.J_d(z) + \gamma.(1-\zeta).s.I_d(z) + \zeta.s.J_c(z) + (1-\zeta).s\,.I_c(z) \end{cases}$$

La résolution de ce système d'équations différentielles est présentée de manière précise par (Maheu, Letoulouzan, et Gouesbet 1984). Ils indiquent que les réflexion et transmission hemisphériques d'une couche déposée sur un fond est la somme des différentes contributions :

$$R_h = R_{cc} + R_{cd} + R_{dd} \qquad et \qquad Tr_h = Tr_{cc} + Tr_{cd} + Tr_{dd}$$

Où :
- R_{cc} (Tr_{cc}) est la fraction collimatée du flux total incident réfléchi (transmis) de manière collimatée
- R_{cd} (Tr_{cd}) est la fraction diffuse du flux total incident réfléchi (transmis) de manière collimatée
- R_{dd} (Tr_{dd}) est la fraction diffuse du flux total incident réfléchi (transmis) de manière diffuse

Pour un <u>flux incident collimaté</u> $I_d(z) = 0$ *et* $R_{dd} = Tr_{dd} = 0$, et pour le cas <u>autoporté</u> d'une couche d'épaisseur finie δ sans fond, (Debout 2007) en a déduit les équations suivantes :

$$R_{cc} = r_c^f + \frac{r_c^f.\left(1-r_c^f\right)^2.e^{-2(k+s)\delta}}{1-{r_c^f}^2.e^{-2(k+s)\delta}} \qquad \text{III.83}$$

$$Tr_{cc} = \frac{\left(1-r_c^f\right)^2.e^{-(k+s)\delta}}{1-{r_c^f}^2.e^{-2(k+s)\delta}} \qquad \text{III.84}$$

$$R_{cd} = \frac{\left(1-r_{dd}^b\right).\left(1-r_c^f\right).e^{-(k+s)\delta}}{[A_1-(k+s)^2].\left[1-{r_c^f}^2.e^{-2(k+s)\delta}\right]}.\frac{N}{D} \qquad \text{III.85}$$

$$Tr_{cd} = \frac{\left(1-r_{dd}^b\right).\left(1-r_c^f\right).e^{-(k+s)\delta}}{[A_1-(k+s)^2].\left[1-{r_c^f}^2.e^{-2(k+s)\delta}\right]}.\frac{N'}{D'} \qquad \text{III.86}$$

Les expressions de A_1, N, N', D et D' se retrouvent dans (Maheu, Letoulouzan, et Gouesbet 1984) et (Debout 2007), elles sont fonctions des coefficients de réflexion et de k, s, ζ, γ et δ. On note que $r_c^f = r_{cc}^f + r_{cd}^f$.
Dans l'*expression (III.84)*, en général $e^{-2(k+s)\delta} \ll 1$ et Tr_{cc} s'exprime comme une loi de Beer-Lambert avec un coefficient d'extinction $\alpha_{ext} = k + s$.

Lorsque l'illumination est considérée comme diffuse, le modèle à 4 flux permet de retrouver le cas de K-M avec la correction de Saunderson intégrée *(§III.2.3.3)*. Le flux interne est alors majoritairement diffus et semi-isotrope et les composantes collimatées sont négligées.

III.2.3.5 Correction de l'incidence collimatée au lieu de l'incidence diffuse pour K-M

La théorie de K-M impose que les flux incident et observé soient tous deux diffus, ce qui est expérimentalement difficile. (Murphy 2006) modifie le modèle à 2 flux en considérant une incidence collimatée mais une propagation diffuse de la lumière au sein de l'échantillon. Il l'applique à un ensemble {lit de poudre + substrat} comme schématisé en *Figure III-23*. Le modèle prend alors en compte la réflexion à l'interface air/échantillon comme dans la correction de *Saunderson*. Les coefficients de réflexion r_{cd}^f, r_{cc}^f, r_{dd}^b et r_{dd}^s entrent en jeu et les conditions aux limites à z=0 et z= δ sont exprimées selon :

$$\begin{cases} I_{d,0} = (1 - r_{cc}^f - r_{cd}^f) I_{c,0} + r_{dd}^b J_{d,0} \\ J_d(\delta) = r_{dd}^s I_d(\delta) \end{cases} \qquad \text{III.87}$$

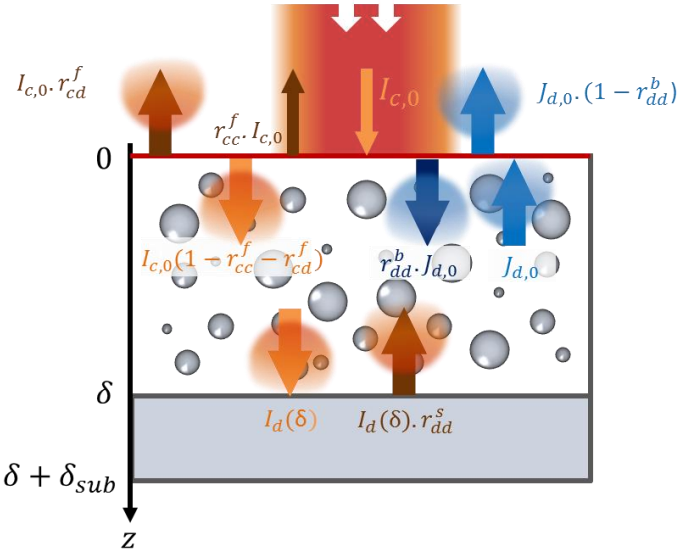


Figure III-23 : Bilan des flux présents à l'interface suivant la correction de Saunderson pour le modèle à 2 flux, sous un flux incident collimaté selon (Murphy 2006).

Les équations différentielles s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{dI_d}{dz} = -(S+K).I_d + S.J_d \\ \frac{dJ_d}{dz} = (S+K).J_d - S.I_d \end{cases} \qquad \text{III.88}$$

Les solutions de ce système d'équations combinées aux conditions aux limites exprimées par la *relation (III.87)* permettent de remonter à la relation suivante :

$$J_{d,0} = \frac{(1 - r_{cc}^f - r_{cd}^f).I_{c,0}.R_g^{KM}}{1 - r_{dd}^b.R_g^{KM}} \qquad \text{III.89}$$

où R_g^{KM} est exprimé par l'*équation (III.70)* grâce à une résolution hyperbolique du modèle à 2 flux avec $R_g = r_{dd}^s$:

$$R_g^{KM} = R_{h,g} = \frac{1 - r_{dd}^s.[a - b.\coth(bS\delta)]}{a + b.\coth(bS\delta) - r_{dd}^s}$$

De plus, la part collimatée de la réflectance R_{cc} de l'ensemble {lit de poudre + substrat} est définie uniquement par le rapport du flux réfléchi collimaté r_{cc}^f . $I_{c,0}$ à la surface z=0 sur le rayonnement incident $I_{c,0}$:

$$R_{cc} = r_{cc}^f \qquad \text{III.90}$$

Par ailleurs, la réflectance diffuse R_{cd} de l'ensemble {lit de poudre + substrat} est la somme de la composante diffuse de la réflexion du rayon incident $r_{cd}^{f}.I_{c,0}$ et de la part retrodiffusée à z=0, $(1-r_{dd}^{b}).J_{d,0}$ par rapport au flux incident $I_{c,0}$:

et

$$R_{cd}=\frac{r_{cd}^{f}.I_{c,0}+(1-r_{dd}^{b}).J_{d,0}}{I_{c,0}} \qquad \text{III.91}$$

La combinaison des *équations (III.89) et (III.91)* résulte en :

$$R_{cd}=r_{cd}^{f}+\frac{(1-r_{dd}^{b}).(1-r_{cc}^{f}-r_{cd}^{f}).R_{g}^{KM}}{1-r_{dd}^{b}.R_{g}^{KM}} \qquad \text{III.92}$$

Cette équation est similaire à celle obtenue par Saunderson *-équation (III.82)-* de la réflectance diffuse pour une illumination diffuse. En l'inversant, on est en mesure d'exprimer la réflectance de K-M en fonction de la réflectance R_{cd} mesurée expérimentalement :

$$\boldsymbol{R_{g}^{KM}=\frac{(R_{cd}-r_{cd}^{f})}{(1-r_{dd}^{b}).(1-r_{cc}^{f}-r_{cd}^{f})+(R_{cd}-r_{cd}^{f}).r_{dd}^{b}}} \qquad \text{III.93}$$

Il est possible d'appliquer cette démarche à une couche d'épaisseur semi-infinie ou autoportée (ou sur un fond noir). Dans ce dernier cas, $r_{dd}^{s}=R_{g}=0$ et on retrouve les *équations (III.74) et (III.75)* pour R^{KM} et Tr^{KM}.

D'un point de vue pratique, on mesure expérimentalement R_{cd} et $R_{cd,\infty}$, puis avec le calcul des réflexions aux interfaces r_{cd}^{f}, r_{cc}^{f}, r_{dd}^{b} et r_{dd}^{s} on obtient R_{g}^{KM} et R_{∞}^{KM}. Ceci permet ensuite par application du modèle à 2 flux de calculer les propriétés radiatives effectives K et S de manière indépendante. Pour le modèle à 4 flux, afin d'obtenir les valeurs des propriétés radiatives intrinsèques k et s, en plus des coefficients r_{cd}^{f}, r_{cc}^{f}, r_{dd}^{b} et r_{dd}^{s} calculés pour le modèle à 2 flux, il faut aussi calculer r_{cc}^{b}, r_{cd}^{b}, r_{cc}^{s} et r_{cd}^{s} et si l'illumination de l'échantillon est diffuse, r_{dd}^{f}.

Dans ce même contexte, (Vargas et Niklasson 1997) ont comparé pour une incidence collimatée, et un milieu à épaisseur infinie, le cas étendu du modèle de K-M *(équation III.92)* avec l'approche à 4-flux de Maheu *(Figure III-23)*. L'équation de Maheu *(III.94)* a été exprimée en fonction de l'*équation (III.92)* du modèle de K-M corrigée. La différence entre ces deux modèles repose sur un facteur correctif *F.* Les auteurs démontrent que *F* est fonction de l'épaisseur optique, du paramètre de taille des particules et de l'indice de réfraction.

$$R_{cd}=r_{cd}^{f}+\frac{(1-r_{dd}^{f}).(1-r_{cc}^{f}-r_{cd}^{f}).R^{KM}}{1-r_{dd}^{b}.R^{KM}}.F \qquad \text{III.94}$$

Les deux modèles sont alors définis comme équivalents dans des conditions limitées. Il est démontré que le modèle étendu de K-M sous incidence collimatée est une bonne approximation seulement dans le cas d'échantillons optiquement épais qui contiennent des particules peu ou non absorbantes, et pour les échantillons contenant des particules très dispersives de taille supérieure à la longueur d'onde du laser. Ces limites peuvent plus simplement être contournées à travers l'utilisation du modèle plus complexe à 4-flux.

III.2.3.6 Expression des coefficients de réflexion aux interfaces

Les coefficients de réflexion aux interfaces sont définis suivant la nature collimatée ou diffuse du rayonnement et selon sa direction de propagation, entrante ou sortante à l'interface. Le coefficient de réflexion d'un rayonnement collimaté s'exprime par la relation : $r_c^f = r_{cd}^f + r_{cc}^f$. Pour une surface optiquement lisse, ce coefficient est appelé précisément coefficient de Fresnel et s'exprime pour la lumière non polarisée et pour un angle d'incidence θ_i par la relation suivante :

$$r_F(\theta_i) = \frac{1}{2}\left[r^{\perp}(\theta_i) + r^{/\!/}(\theta_i)\right] \qquad \text{III.95}$$

Dans notre cas, θ_i est choisi égal à 10° *(voir Chapitre IV)*. θ_r est l'angle réfléchi. Le détail des calculs est exprimé en *Annexe B* d'après (Murphy 2006).

Une surface est considérée optiquement rugueuse et d'après le critère de Rayleigh, *i.e* si la hauteur des irrégularités est supérieure à $\lambda/(8\cos\theta_i)$ soit 0,135 µm dans notre étude. Or les irrégularités mesurées sont de l'ordre de quelques µm. Les surfaces étudiées sont donc optiquement rugueuses. Dans ce cas, le calcul des coefficients de réflexion est plus complexe et dépend de la géométrie de formation des images et de l'illumination. (Murphy 2006) exprime les coefficients r_{cd}^f et r_{cc}^f à travers la fonction de distribution de la réflectance bidirectionnelle (BRDF), en prenant en compte les effets d'ombre. Le coefficient r_{cc}^f est négligeable dans cette étude car la surface est trop rugueuse et la grandeur r_{cd}^f est calculée par intégration du coefficient de Fresnel $r_F(\theta_r/2)$ sur toutes les directions de réflexion du demi-espace[3] :

$$r_{cd}^f = \frac{1}{\pi}\int_0^{\frac{\pi}{2}} r_F(\theta_r/2)GZDsin(\theta_r)\, d\theta_r \qquad \text{III.96}$$

Les différents paramètres sont définis en *Annexe B* d'après (Murphy 2006). Ils sont calculés au *Chapitre IV* à partir des mesures de rugosité des surfaces des échantillons par profilométrie optique ainsi que par le biais de n_{eff} et $k_{e_{eff}}$ des milieux étudiés.

Les coefficients de réflexion diffuse r_{dd}, quelle que soit la rugosité des surfaces, sont évalués en intégrant le coefficient de Fresnel $r_F(\theta_r/2)$ sur toutes les directions incidences du demi-espace :

$$r_{dd} = \int_0^{\frac{\pi}{2}} r_F(\theta_i)\, d\theta_i \qquad \text{III.97}$$

Plus précisément, pour les différents coefficients des systèmes étudiés, le calcul prend en compte les indices de réfraction complexe des milieux au passage de l'interface:

- $r_{dd}^b = r_{dd}(\tilde{n}_1 = \tilde{n}_{LDP}; \tilde{n}_2 = \tilde{n}_{air})$
- $r_{dd}^s = r_{dd}(\tilde{n}_1 = \tilde{n}_{air}; \tilde{n}_2 = \tilde{n}_{LDP})$

(Molenaar 1997) estime que la valeur de r_{dd}^b est difficilement calculable car elle dépend de la nature même du rayonnement au sein du matériau. Le caractère diffus isotrope du rayonnement incident ne garantit en rien que ce rayonnement reste diffus isotrope lors de la traversée du matériau. La grandeur r_{dd}^b est alors généralement encadrée par les valeurs limites :

- la diffusion totalement diffuse : $r_{dd}^b = r_{dd}^{b,max} = 1 - \frac{\left(1-r_{dd}^f\right)}{n^2}$
- la diffusion non diffusante : $r_{dd}^b = r_{dd}^{b,min} = r_{dd}^f$

[3] Le calcul est valable si la surface présente un caractère lambertien, *i.e* si le flux spectral émis par unité de surface et par unité d'angle solide (luminance) est identique dans toutes les directions du demi-espace.

Pour un matériau faiblement absorbant, c'est-à-dire d'indice d'extinction κ_e faible comme le cas des céramiques oxydes étudiés à la longueur d'onde d'intérêt, sous éclairement diffus isotrope et pour une surface plane, (Duntley 1942) exprime r_{dd}^f:

$$r_{dd}^f = \frac{1}{2} + \frac{(n-1)(3n+1)}{6(n+1)^2} + \left(\frac{n^2(n^2-1)^2}{(n^2+1)^3}\right)\ln\left(\frac{n-1}{n+1}\right) - \frac{2n^3(n^2+2n-1)}{(n^2+1)(n^4-1)} + \left(\frac{8n^4(n^4+1)}{(n^2+1)(n^4-1)^2}\right)\ln(n) \qquad \text{III.98}$$

Pour l'application aux dépôts de zircone (Debout 2007; Vargas 2002) et selon les méthodes à 2 et 4 flux, l'absence de réflexions interfaciales (cas où r_{dd}^b = 0) se traduit par une surestimation des valeurs du coefficient d'absorption k et une sous-estimation des valeurs du coefficient de diffusion s. L'augmentation de la valeur de r_{dd}^b s'accompagne d'une diminution de k et d'une augmentation de s, ce qui est corrélé à l'augmentation de la multidiffusion du rayonnement par les hétérogénéités. (Debout 2007) montre que ses échantillons présentent un caractère diffusant marqué et décide d'opter pour $r_{dd}^b = r_{dd}^{b,max}$ en notifiant que ce choix conduit à une surestimation de s et à une sous-estimation de k lorsque l'échantillon devient moins diffusant.

III.2.3.7 Lien entre les coefficients extrinsèques et intrinsèques

De nombreux articles se sont intéressés au lien entre les coefficients effectifs du modèle de K-M (K, S) et les coefficients intrinsèques (k, s) de la théorie de Mie. Les premiers sans signification physique, correspondent aux luminances dans le cas d'une diffusion multiple, et à l'inverse, les derniers traduisent les interactions rayonnement/hétérogénéité à l'origine de la diffusion. Les valeurs de K et S peuvent être corrigées par l'intermédiaire de paramètres ζ et γ afin de retrouver les valeurs intrinsèques k et s. Cette approche permet d'estimer l'influence de la taille ou de la forme des particules tout en conservant la simplicité de la théorie de K-M. Il faut alors définir de manière précise les relations entre K, S, ζ, γ, k et s.

On introduit alors le facteur d'asymétrie de diffusion g défini à partir de la théorie de Mie (diffusion et absorption de la lumière en milieu non absorbant). Il s'apparente à un cosinus moyen de l'angle du flux diffusé et s'exprime à partir de la fonction de phase de diffusion Φ(θ) :

$$g = \overline{\cos\theta} = \frac{1}{4\pi}\int_{4\pi} \Phi(\theta)\cos\theta \, d\Omega \qquad \text{III.99}$$

Il permet d'estimer la symétrie de diffusion d'une particule individuelle avec :

- **g > 0** : la diffusion se produit préférentiellement dans le sens direct
- **g < 0** : le rayonnement est majoritairement rétrodiffusé
- **g = 0** : le rayonnement est diffusé de manière symétrique dans les sens direct et indirect et la diffusion est isotrope si Φ(θ) = 1.

A travers la théorie de Mie, pour des centres de diffusion définis par une taille donnée et une forme sphérique de particule, le calcul de la fonction de phase de diffusion Φ(θ) et donc du facteur d'asymétrie g permettent par la suite de remonter au paramètre ζ avec :

$$\zeta = \frac{(1+g)\left(\sqrt{1+g^2} - 1 + g\right)}{2g\sqrt{1+g^2}} \qquad si\ g \neq 0\ ; \quad \zeta = 0{,}5 \quad si\ g = 0 \qquad \text{III.100}$$

Le calcul de g est précisément détaillé en *Annexe E* de (Debout 2007).

Pour un milieu parfaitement diffusant, (Kubelka 1948) établit premièrement que $\boldsymbol{K = 2k}$ et $\boldsymbol{S = 2s}$ car il estime que, la diffusion s'accompagne d'un doublement du chemin optique du rayonnement. Cette relation trouvée trop simpliste a été modifiée par (Mudgett et al. 1971) à l'aide d'une méthode à N flux. Ils montrent, en accord avec (Brinkworth 1971) que $\boldsymbol{S = 0{,}75s - k}$. Cette dernière expression est réécrite

comme $\boldsymbol{S = 0,75s.(1-g)}$ par (G. Phillips et W. Billmeyer Jr 1976) pour tenir compte de la distribution du flux diffusé dans tout l'espace et notamment dans les demi-sphères directe et rétrograde d'une sphère intégrante.

Pour des dépôts poreux de zircone, (Debout 2007) montre que le choix de la valeur de ζ fait varier de plusieurs ordres de grandeur s et n'altère que très peu k. La grandeur k est indépendante de la fonction de phase $\Phi(\theta)$ contrairement à s (puisque celle-ci n'intervient que sur les flux diffusés). Par passage du modèle de 2 à 4 flux, et pour un faisceau incident diffus, (Vargas 2002) montre qu'il est possible de retrouver $\boldsymbol{K = \gamma.k}$ et $\boldsymbol{S = \gamma.(1-\zeta).s}$. Il est alors courant de définir pour une diffusion symétrique $\boldsymbol{\zeta = \frac{1}{2}}$ et $\boldsymbol{\gamma = 2}$ de manière à ce que $S = s$ et $K = 2k$. On a alors γ qui varie linéairement avec ζ :

$$\gamma = 3 - 2\,\zeta \qquad \text{III.101}$$

III.2.3.8 Cas des mélanges

D'après (Torrent et Barrón 2008), la loi de Duncan définit les coefficients d'absorption K et de diffusion S d'un mélange de poudres comme la simple addition des coefficients respectifs de chacun des éléments du mélange, en fonction de leurs proportions relatives. Ainsi, il est possible d'écrire la fonction de K-M d'un mélange selon :

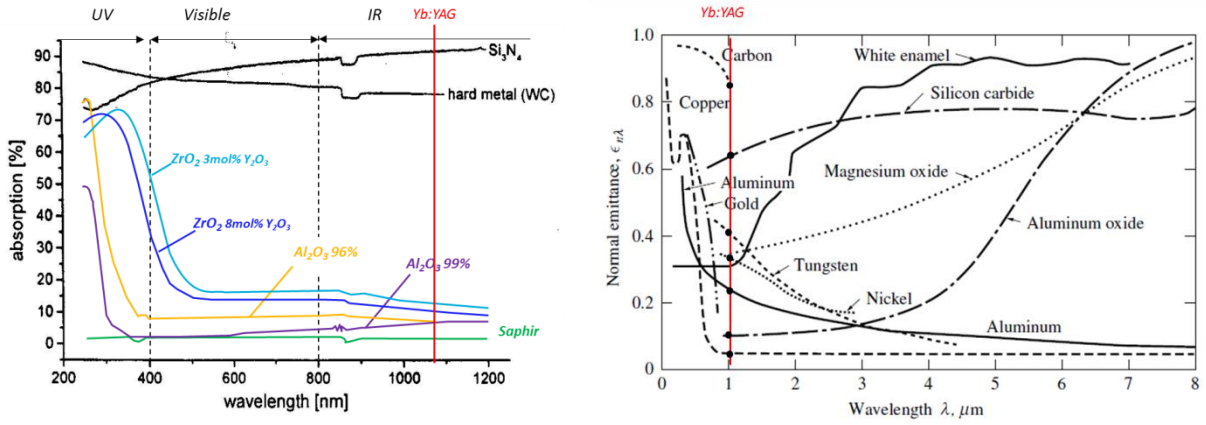
$$\boldsymbol{F\left(R_{\infty,M}^{KM}\right) = \left(\frac{K}{S}\right)_M = \frac{\left(1 - R_{\infty,M}^{KM}\right)^2}{2R_{\infty,M}^{KM}} = \frac{\sum x_i.K_i}{\sum x_i.S_i}} \qquad \text{III.102}$$

x_i étant la fraction massique du composé. Pour des mélanges très dilués, le coefficient d'absorption peut être défini par le composé majeur tel que :

$$F\left(R_{\infty,M}^{KM}\right) = \frac{1}{S}\sum x_i.K_i$$

III.3 Influence des caractéristiques des milieux sur les propriétés radiatives : état de l'art

Il a été montré que les propriétés optiques des céramiques oxydes dans le domaine de transparence sont fortement dépendantes de la composition chimique *(Chapitres I)*. Or, les poudres céramiques ne sont jamais totalement pures et la faible quantité d'impuretés suffit à influer sur les propriétés radiatives et optiques du matériau. Là encore, la littérature est peu fournie en données radiatives pour le domaine de semi-transparence et la nature des échantillons est rarement précisée. Notamment, la zircone peut être stabilisée par différents éléments chimiques et subir une réduction au cours de certains procédés comme dans le cas de la projection plasma (Debout 2007). Il est alors difficile de trouver une homogénéité dans les données récoltées *(Figure III-24 et Tableau III-5)*. Par comparaison, l'absorptivité A des monocristaux d'alumine et de zircone est inférieure à celle des échantillons présentant des impuretés ou défauts. Par exemple, l'absorptivité varie de 1% pour un monocristal d'alumine, à 6% puis 7,5% avec la diminution de la pureté. La même observation peut être faite pour la zircone : l'absorptivité vaut 1% pour le monocristal et 14% pour la zircone stabilisée à 3%m. d'yttrium. On remarque également, qu'à température ambiante pour les structures denses à λ=1 µm, l'absorptivité des céramiques oxydes est en général plus faible (entre 0 et 15%) que celle des métaux (entre 25 et 40%). Les absorptivités du SiC-β et du Carbone sont relativement élevées *(Figure III-24.b)*, ce qui justifie leur emploi comme absorbants au sein de nos mélanges de poudres.



a) b)

Figure III-24 : a) Absorptivité décrite en fonction de la longueur d'onde incidente pour différents matériaux denses (d'après Hellrung) b) Emittance spectrale normale de différents matériaux d'après (Modest 2013)

Tableau III-5 : Valeurs des coefficients de réflexion et d'absorption de la littérature pour λ=1 µm à température ambiante (sauf exception indiquée)

Matériau	R ou R_h (%)	A ou A_h (%)[4]	Référence
Fe	64	36	(Bass 1995; Bäuerle 1996)
Fe – LDP	*36*	*64*	(Tolochko et al. 2000)
Stainless Steel (SS)	66	34	(Boley et al. 2016)
SS 316L - LDP	*32*	*68*	
SS Nitronic 40	30	70	
SS Mo-45-HC	24	76	
Ni	72	28	(Bass 1995)
	65-85	15-35	(Modest 2013)
	67	33	(Bäuerle 1996)
	73	27	(Schneider et al. 2008; Boley et al. 2016)
	74,1	25,9	(Fischer et al. 2003)
Alliage Ni (4%Si 0.4%C 13%Cr 3%B) – LDP	*36*	*64*	(Tolochko et al. 2000)
Alliage Ni (15%Cr 3.1%Si 0.8%C) – LDP	*28*	*72*	
Inconel 625 – LDP	*33*	*67*	(Boley et al. 2016)
Co	73,3	26,7	(Fischer et al. 2003)
	70	30	(Schneider et al. 2008)
Co alloy (1%C 28%Cr 4%W) – LDP	42	58	(Tolochko et al. 2000)
Cr	63	37	(Schneider et al. 2008)
Co-Cr-Mo – LDP	*36*	*64*	(Boley et al. 2016)
Al_2O_3 monocristal	-	1	(Hellrung et al. 1999)
Al_2O_3 monocristal	91 (λ=1.15µm)	9	(Petrov 2009)
	82 à 1627°C (λ =1,15µm)	18 à 1627°C (λ =1,15µm)	
	22 à 2327°C (λ =1,15µm)	78 à 2327°C (λ =1,15µm)	
Al_2O_3 99%	-	6	(Hellrung et al. 1999)
Al_2O_3 96%	-	7,5	
Al_2O_3	-	5-10	(Modest 2013)
Al_2O_3 Substrat 99%pur 0.5mm	84 (R_d)	-	(Sola et Peña 2013)
Al_2O_3 – LDP	-	*3*	(Tolochko et al. 2000)
Al_2O_3 99%	80 à 1500°C	20 à 1500°C	(Zhang et Modest 1998)
	5 à 2500°C	95 à 2500°C	
ZrO_2(8%Y_2O_3) monocristal 2mm	23 (Tr=76%)	1	(Debout 2007)
ZrO_2(8%Y_2O_3)	-	11	(Hellrung et al. 1999)
ZrO_2(3%Y_2O_3)	-	14	
ZrO_2	-	10-20	(Modest 2013)
ZrO_2(8%Y_2O_3) Substrat 0.5mm	95 (R_d)	-	(Sola et Peña 2013)
ZrO2+2%Y2O3 (TZP) 1 mm	82 (Tr=15)	3	(Wahiduzzaman et Morel 1992)
ZrO2+2%Y2O3 (TZP) 10 mm	86 (Tr=0)	14	
ZrO2+5%Y2O3 (PSZ) 1 mm	81 (Tr=14)	5	
ZrO2+5%Y2O3 (PSZ) 10 mm	86 (Tr=0)	14	
ZrO_2(8%Y_2O_3) substrat fritté Pt19%, d_p =20-50µm	89 (λ=1.15µm)	-	(Akopov et al. 2001)
	67 à 1227°C (λ =1,15µm)	33 à 1227°C (λ =1,15µm)	(Petrov 2009)
	12 à 2827°C (λ =1,15µm)	88 à 2827°C (λ =1,15µm)	
SiC- α	20 (Tr=80%)	0	(Shaker 2017)
	-	86 à 1247°C	(Zhang et Modest 1998)
	-	73 à 2627°C	
SiC- α, 0.26mm	13,14 (Tr=0)	86,86	(Shayan et Poyraz, s. d.)
SiC dense	-	20	(Sani et al. 2014)
SiC-β	-	60-80	(Modest 2013)
SiC-β	15	-	(Laine et al. 1998)
SiC- β, 0.26mm	0,18 (Tr=0)	99,82	(Shayan et Poyraz, s. d.)
SiC-β – LDP	*20*	*78*	(Tolochko et al. 2000)
C	23	77	(Shaker 2017)
C graphite	10-20	80-90	(Modest 2013)
C graphite	5	95 à 1227°C<T<3227°C	(Zhang et Modest 1998)
MgO	-	20	(Modest 2013)
SiO_2 – LDP	-	*4*	(Tolochko et al. 2000)
Verre BK7 4mm	4 (Tr=96)	0	(Edmund Optics.fr)

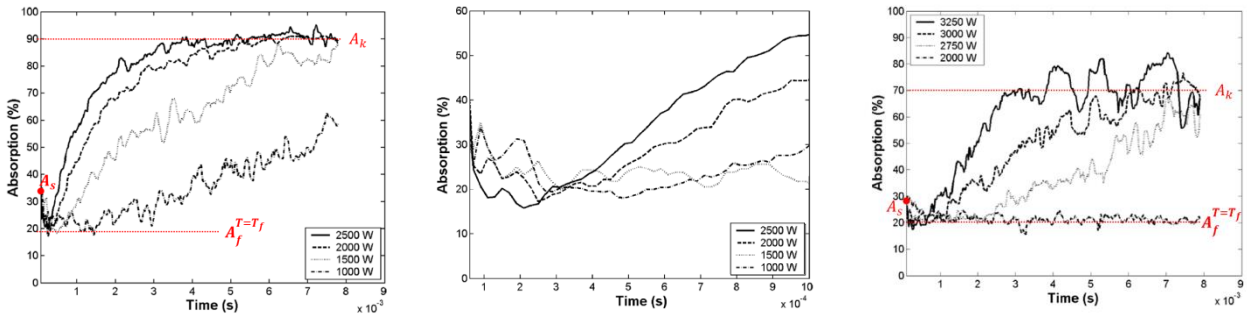
[4] *Par la suite, A et A_h seront confondues pour désigner l'absorbance d'un matériau, qu'il soit diffusant ou non. A_f est l'absorbance à l'état fondu pour $T \geq T_f$ et A_k en régime keyhole. A_s est l'absorbance d'un substrat massif, A_p d'un lit de poudre et A_{ps} d'un lit de poudre déposé sur un substrat. Les mêmes indices sont valables pour la réflectance R et la transmittance Tr.*

III.3.1 Température et paramètres de premier ordre

III.3.1.1 Matériaux denses (massifs)

Selon la théorie de Drude, au cours de l'irradiation laser sur les matériaux métalliques, l'absorptivité augmente avec la température, de manière linéaire jusqu'au point de fusion. A la fusion, il y a un saut brutal de l'absorptivité qui augmente suite à une modification de la densité électronique dans la bande de conduction. A partir du point de fusion (état liquide), l'absorptivité continue à augmenter avec la température (Prokhorov 1990). (Indhu et al. 2018) concluent que les mesures expérimentales présentes dans la littérature corroborent l'augmentation de l'absorptivité avec la température pour λ=1 µm. Ils soulignent également que l'absorptivité est dépendante de la rugosité, de la pression ambiante, de l'environnement, d'une possible couche d'oxyde et de la formation d'un plasma d'ions métalliques. Parmi les études citées, (Sainte-Catherine et al. 1991) observent une augmentation de l'absorptivité avec la température pour l'AISI 1045, le nickel et l'inconel 718, quel que soit l'état de surface brut, poli ou sablé. (Gunenthiram et al. 2017) montrent que pour une énergie linéique $E_l = 0{,}016\, J.mm^{-1}$ l'absorptivité d'un substrat massif d'acier 316L augmente entre l'état solide (A_s =42%) et sa fusion (A_f =58%).

(Pierron, Sallamand, et Matteï 2007) mesurent la réflectivité d'alliages massifs de magnésium et d'aluminium à l'aide d'une sphère intégrante. Ces mesures sont réalisées à différentes puissances en un point statique au cours d'une irradiation Nd:YAG *(Figure III-25)*. La valeur initiale de l'absorptivité dépend de la rugosité de surface qui peut piéger le rayonnement. Au cours du temps, l'absorptivité diminue premièrement jusqu'à un minium correspondant à la fusion et au lissage de la surface *(Figure III-25.b)*. Dans un second temps, l'échauffement du liquide est responsable de l'augmentation de la profondeur de pénétration puis de la génération d'une pression de recul avec l'amorce de la vaporisation du liquide. La cavité créée par la pression de recul piège le faisceau laser en induisant sa multi-réflexion, ce qui provoque l'accroissement de l'absorptivité avec une grande profondeur de pénétration. Au bout d'un certain temps, l'absorptivité se stabilise, ce qui signifie que la profondeur maximale de pénétration est atteinte. Ce palier correspond au régime keyhole. Le temps au bout duquel ce palier est atteint diminue avec l'augmentation de la puissance laser P car l'échauffement du bain est accéléré. Pour l'alliage de magnésium WE43 *(Figure III-25.a)*, le régime de keyhole est atteint à partir de P=2000W lorsque l'absorptivité atteint un maximum à $A_k = 90\%$. Concernant l'alliage d'aluminium 1050 dont la conductivité thermique est supérieure à l'alliage de magnésium *(Figure III-25.c)*, le keyhole se stabilise à plus haute puissance (P=3250W) et A_k =70%. Signalons que l'oscillation de l'absorptivité en régime keyhole est liée à la compétition entre la pression de recul et la tension de surface γ_{LV} (qui diminue avec la température). A 2000 W, l'allure de la courbe d'absorptivité ainsi que la morphologie du bain indique que le substrat est à peine fondu et $A_f^{T=T_f} = 20\% < A_k$.



a) b) c)

Figure III-25 : Mesures de l'absorptivité par sphère intégrante à différentes puissances laser Nd :YAG de substrats denses a-b) de magnésium WE43 et c) d'aluminium 1050 d'après (Pierron, Sallamand, et Matteï 2007)

Peu d'études ont été menées sur l'évolution avec la température des propriétés radiatives des céramiques oxydes dans le proche IR. Parmi elles, (Petrov 2009) montre que la réflectivité de l'alumine diminue avec la montée de la température pour des interactions laser à différentes longueurs d'onde *(Figure III-26.a et c)*. La réflectivité diminue avec la montée en température à l'état solide, puis de manière plus prononcée à partir du point de fusion. Enfin, la réflectivité augmente une fois le laser éteint et revient à une valeur légèrement inférieure à la valeur initiale *(Figure III-26.c)*. Selon l'auteur, ces observations rejoignent les quelques études précédentes ainsi que les observations de (Bityukov et Petrov 2013) qui indiquent que le matériau devient opaque avec la montée en température. (Zhang et Modest 1998) mesurent un accroissement de l'absorbance avec la température sur une alumine pure à 99% *(Figure III-27.a)*. (Akopov et al. 2001) observent les mêmes tendances pour des échantillons frittés de zircone yttriée (contenant environ 19% de porosité et des particules majoritaires de 20 à 50 µm de diamètre - *Figure III-26.b et d*). (Zhang et Modest 1998) mesurent également les variations de l'absorbance pour le SiC-α et le graphite à l'état solide. L'absorptivité du SiC-α diminue modérément entre 1200 et 2400°C *(Figure III-27 .d)* et celle du graphite reste constante jusqu'à 3100°C *(Figure III-27 .c)*.

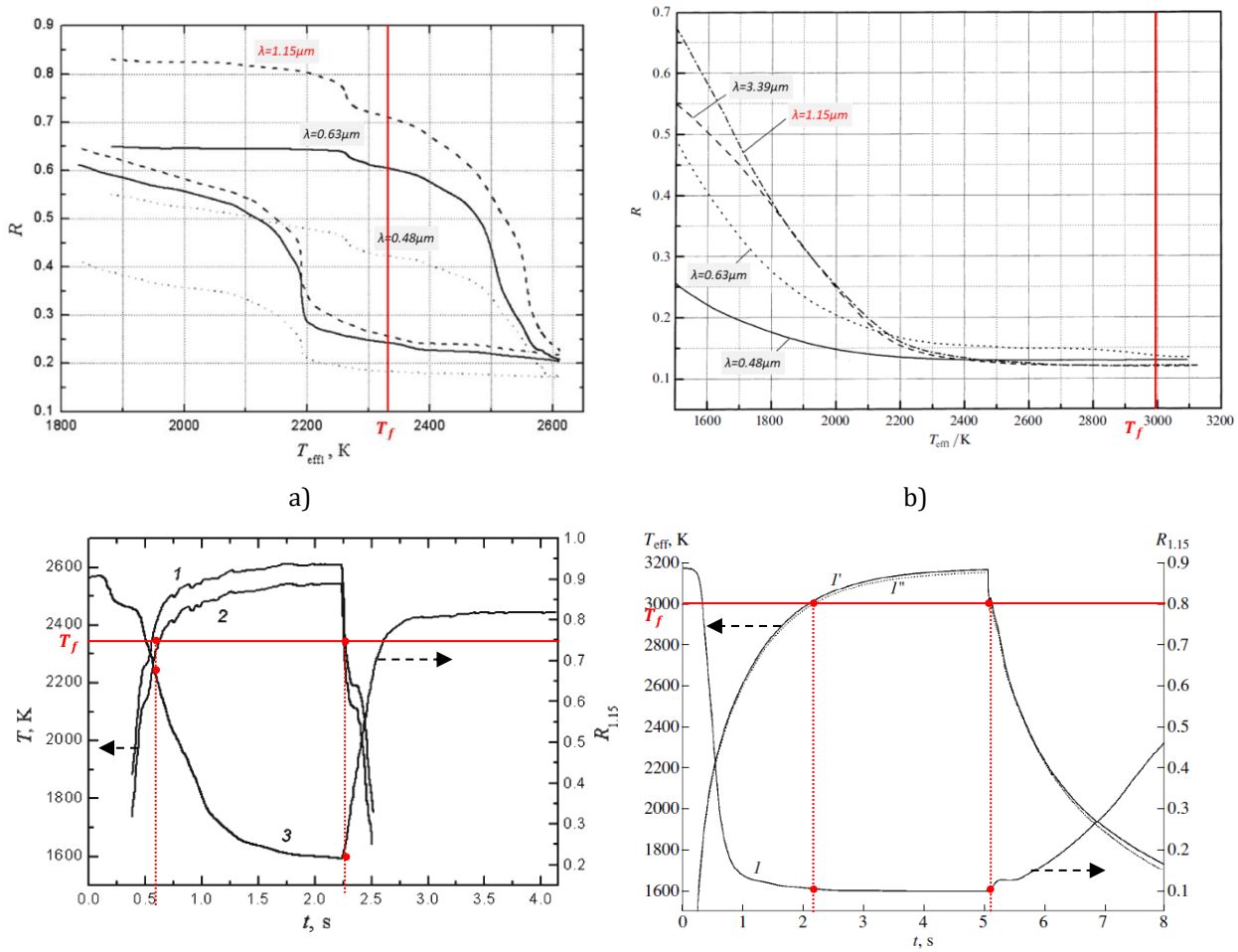


Figure III-26 : Evolution de la réflectivité en fonction de la température à 0.12 $W.mm^{-2}$ pour a) Al_2O_3 et b) ZrO_2 et en fonction du temps pour c) Al_2O_3 et d) ZrO_2 selon (Akopov et al. 2001; Petrov 2009)

(Petrov 2009) observe une augmentation importante de l'absorptivité pour l'alumine à la fusion et une diminution rapide à la solidification *(Figure III-26.c)*. L'origine de ce saut a été déjà discuté au *§III.1.2.* Or, le suivi de la température locale pendant une chauffe rapide *(Figure III-27.b)* ne permet pas d'observer un saut brutal de l'absorptivité à la température de fusion (2315 K). En effet, l'alumine semble surchauffer à 2600 K avant de fondre. La fusion opère donc sur une large gamme de température et n'est peut-être même pas encore terminée quand le laser est éteint. A la solidification, une fois le laser éteint, un plateau

est identifiable à 2300 K et est représentatif de la solidification à l'équilibre de l'alumine. Suivant l'intensité d'irradiation, l'initiation de la fusion peut opérer entre 2300 K et 2600 K, selon (Petrov 2009).

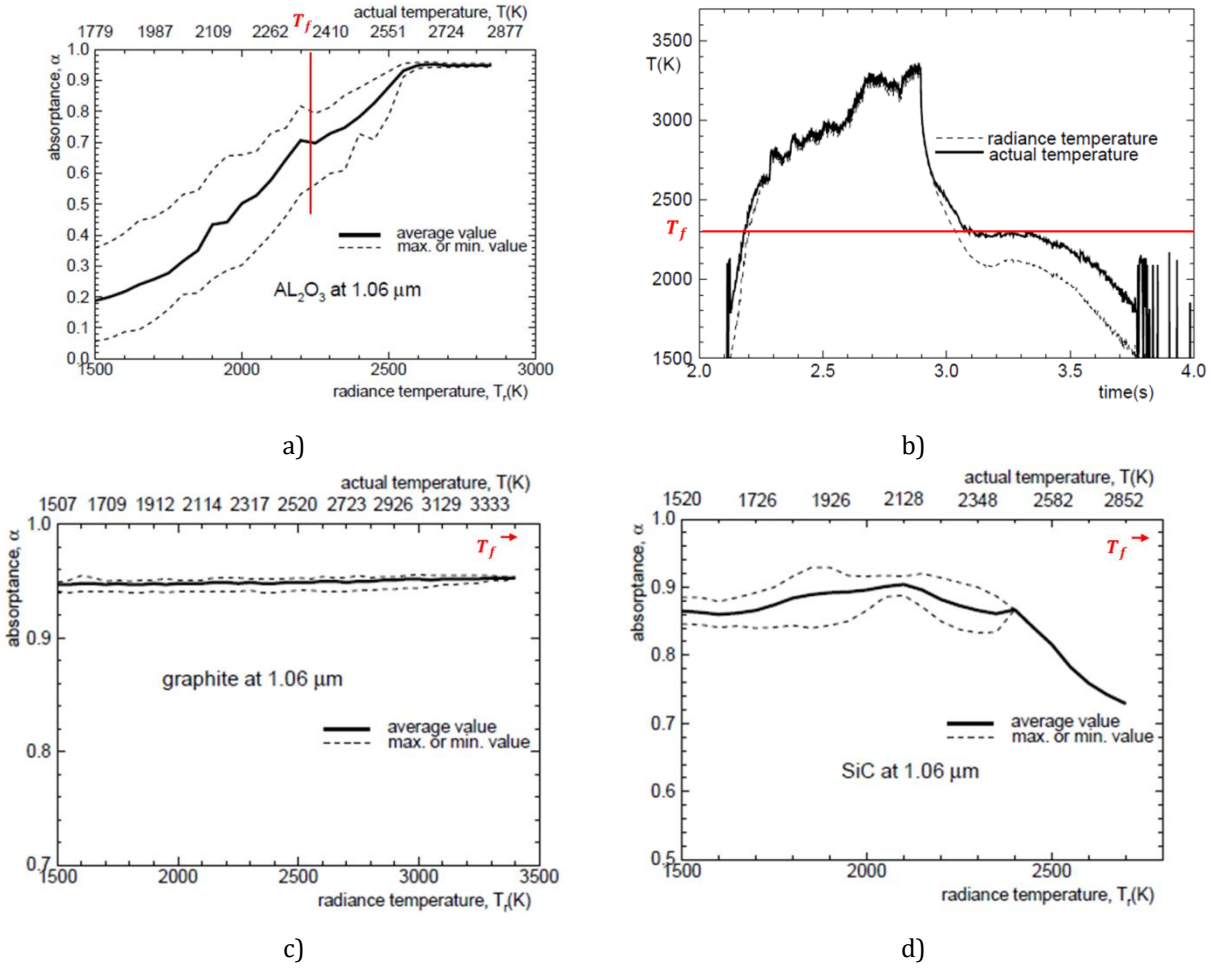


Figure III-27 : Evolution de l'absorptivité en fonction de la température pour a) Al_2O_3 , c) graphite et d) SiC- α b) Evolution de la température de Al_2O_3 au cours de la chauffe selon (Zhang et Modest 1998) associée à a)

Très peu de travaux suivent la variation des propriétés radiatives au cours de la fabrication laser. On peut toutefois citer (Harrison et al. 2017) qui ont suivi le signal réfléchi au cours de la découpe laser métallique. Ils identifient quatre domaines d'interaction laser-matière *(Figure III-28)*. Initialement, lorsque le laser rencontre la surface du matériau (de 0 à t_1), le signal réfléchi est élevé. Puis, quand le rayonnement fond le matériau (à partir de t_1), l'absorptivité augmente (et respectivement, la réflectivité diminue) avec la montée de la température causant une évaporation. Il y a alors formation d'un keyhole qui engendre des réflexions multiples et qui s'identifie par un signal oscillant, jusqu'au perçage complet du matériau (t2-t3). A partir de ce perçage, le signal réfléchi reste stable jusqu'à l'arrêt de l'émission laser.

Les enregistrements de (Harrison et al. 2017) ont démontré que le signal mesuré dépend de la vitesse de découpe laser. Plus la découpe est rapide, plus la réflectance est élevée. Les auteurs estiment que l'angle de découpe augmente avec la vitesse *(Figure III-29.a)*, ce qui oriente la réflexion vers le haut de la pièce. Pour maximiser la productivité, le temps d'interaction pour traverser et couper la pièce doit être court et donc la vitesse de coupe doit être la plus élevée possible. Cependant, pour de trop grandes vitesses, l'angle de découpe est trop grand, l'ablation n'atteint pas le bord inférieur de la pièce, et la matière ne peut pas être éjectée. Si on considère que seul le volume sous le faisceau est fondu, l'avant du laser est toujours en contact avec une partie non fondue de la pièce à découper. Plus la vitesse augmente, plus cette zone est grande *(Figure III-29.b)*. Si on transpose cette hypothèse au LBM, l'augmentation de la vitesse de balayage

induirait l'augmentation de l'angle du front de fusion et de la zone du laser en contact avec la partie en amont du front de fusion, à savoir le lit de poudre (Gusarov et Smurov 2010). La réflectivité mesurée serait alors une moyenne entre l'état non fondu et la zone en dépression du liquide ou keyhole.

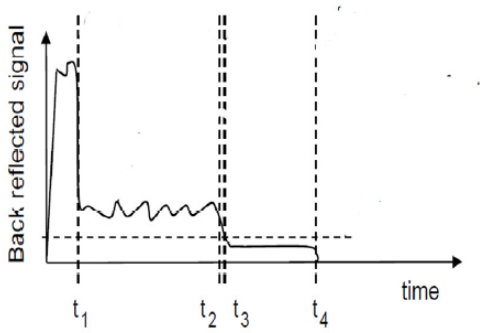
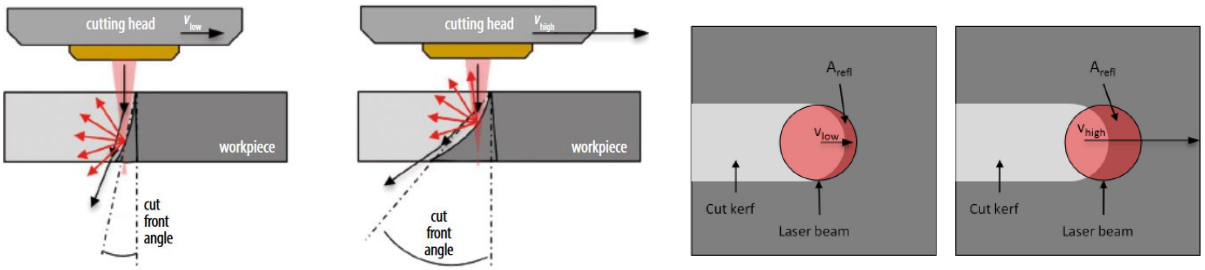


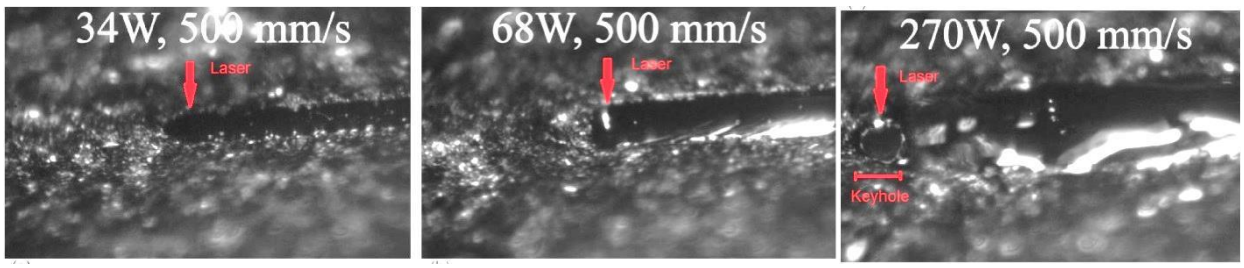
Figure III-28 : Signal de réflexion type acquis lors de découpes laser métalliques pour un faisceau incident perpendiculaire, d'après (Harrison et al. 2017)



a) b)

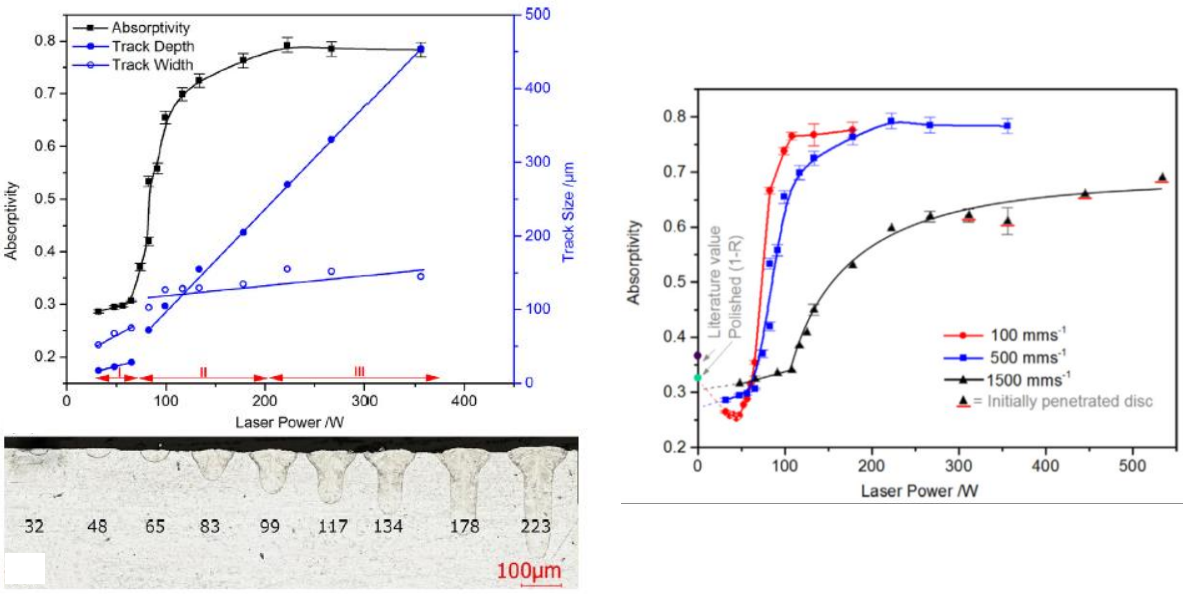
Figure III-29 : Effet de la vitesse lors de la découpe laser : a) vue transverse en coupe, b) vue du dessus d'après (Harrison et al. 2017)

Les mesures calorimétriques de (Trapp et al. 2017) des bains formés à partir d'un **substrat dense** en acier 316L *(Figure III-31.a)*, rappellent les régimes d'interaction laser-matière définis au *Chapitre I*. La profondeur de pénétration augmente avec la puissance laser et avec l'initiation du keyhole à partir d'une puissance critique, ce qui provoque une augmentation brutale de l'absorptivité jusqu'à sa saturation. Ils distinguent alors un premier régime de conduction (I) à faible puissance associé à une section de bain de forme hémisphérique ; puis un second régime transitoire (II) où l'absorptivité s'accroît fortement, suivi à plus forte puissance par un troisième régime (III) dit de keyhole pour lequel l'absorptivité sature à 78% et dont la section de bain a une forme en « clou », évasée en haut et étroite en bas. Ces différents régimes ont été observés par caméra rapide *(Figure III-30)*. Les mesures à différentes vitesses *(Figure III-31.b)* montrent le même enchaînement de régimes. On note alors qu'après fusion l'absorptivité de l'état fondu A_f augmente avec l'énergie linéique (élévation de P et diminution de V).



a) b) c)

Figure III-30 : Imagerie par caméra rapide des bains de fusion pour
a) $E_l = 0{,}068\ J.mm^{-1}$ *et* $A_f = 29\%$ *b)* $E_l = 0{,}136\ J.mm^{-1}$ *et* $A_f = 31\%$ *c)* $E_l = 0{,}54\ J.mm^{-1}$ *et* $A_f = 78\%$ *, d'après (Trapp et al. 2017)*

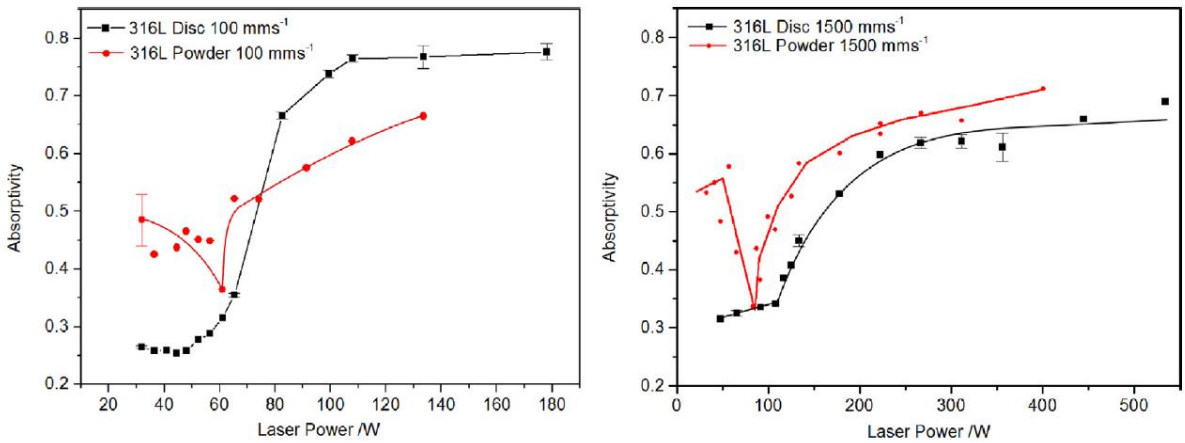


a) b)

Figure III-31 : Pour des substrats massifs d'Inox 316L a) Variation de l'absorptivité et des dimensions des bains en fonction de la puissance laser pour V=500 mm.s^{-1} associée aux coupes transverses de bains b) variation de l'absorptivité en fonction de la puissance pour différents V, d'après (Trapp et al. 2017)

III.3.1.2 Configuration LBM : lits de poudre déposés sur substrats denses

Les mesures comparatives de l'absorbance d'un lit de poudre par rapport à l'absorptivité d'un substrat dense en acier 316L effectuées précédemment par (Trapp et al. 2017) montrent que les substrats revêtus de particules de poudre voient leur absorptivité augmenter ($A_{ps} > A_s$) comme conséquence des réflexions multiples engendrées dans le lit de poudre *(Figure III-32)*. Cet effet est seulement notable aux faibles puissances. A plus forte puissance, l'écart du coefficient de réflexion entre les deux systèmes se réduit car l'amorce de la fusion provoque la diminution de l'absorptivité du substrat revêtu de poudre, puis la génération du keyhole mène à une brusque augmentation de l'absorptivité.
Les mesures de réflectance de (Gunenthiram et al. 2017) réalisées en statique (P=320W et t_{int}=10ms - sur une couche de poudre en acier 316L de 90 µm d'épaisseur) indiquent de la même manière, que $R_{ps} < R_s$ soit $A_{ps} = 73\% > A_s = 42\%$. Les tendances ont été confirmées pour différentes intensités laser.



a) b)

Figure III-32 : Variation de l'absorptivité (ou absorbance) d'un substrat dense revêtu ou non d'un lit de poudre en fonction de la puissance laser a) à V=100 mm.s^{-1} et b) à V=1500 mm.s^{-1}, d'après (Trapp et al. 2017)

III.3.2 Lien entre milieu granulaire et milieu dense

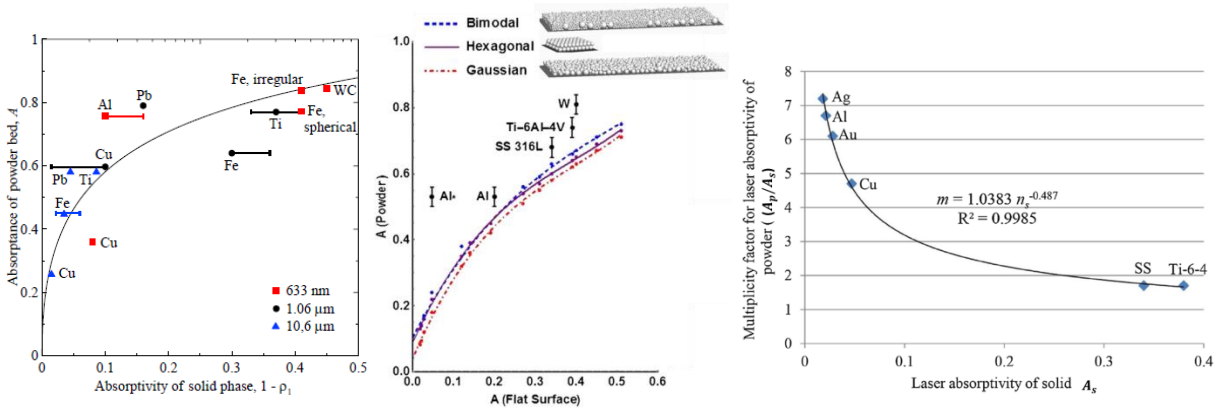
Les données récoltées en *Tableau III-5* indiquent à température ambiante (état non fondu) que l'absorbance des métaux à l'état granulaire est supérieure à l'absorptivité de l'état dense ($A_p > A_s$ et donc $R_p < R_s$). Les résultats de (Gusarov et Smurov 2010; Boley et al. 2016; Bajaj et al. 2019) présentés en *Figure III-33*, relient A_s et A_p pour différents matériaux métalliques. Plusieurs relations ont été proposées et sont présentées par les *équations III.103, III.104 et (III.105, III.106)*. Elles ont été appliquées à un ensemble de valeurs tirées de la littérature *(Figure III-34)* principalement pour des matériaux métalliques mais également quelques matériaux céramiques (oxydes et carbures). La relation de (Boley et al. 2016) a été tracée d'une part avec les coefficients originaux obtenus par les auteurs dans le cas de l'empilement hexagonal ; et d'autre part, sous la forme d'un polynôme d'ordre 3 *(équation III.104)*. La relation de Gusarov *(équation III.103)* semble convenir aux fortes valeurs d'absorptivité du substrat, celle de Boley aux fortes valeurs de A_s, et la relation qui décrit au mieux l'ensemble du domaine est la loi de Bajaj *(équations III.105, III.106)*.

$$A_p = \frac{3\sqrt{A_s}}{1 + 2\sqrt{A_s}} \qquad \text{III.103}$$

$$A_p = a_1 A_s^3 - a_2 A_s^2 + a_3\, A_s + a_4 \qquad \text{III.104}$$

$$\frac{A_p}{A_s} = b\, A_s^{-c} \qquad \text{soit} \qquad A_p = b\, A_s^{1-c} \qquad \text{III.105, III.106}$$

(a_i, b et c des constantes positives)



a) b) c)

Figure III-33 : Absorbance A_p des lits de poudre de matériaux opaques en fonction de celle de matériaux denses A_s de même nature a) d'après (Gusarov 2010) b) lignes continues issues de calculs numériques et points issus de mesures expérimentales d'après (Boley et al. 2016) c) rapport A_p/A_s en fonction de A_s d'après (Bajaj et al. 2019)

De plus, (Boley et al. 2016) montrent que le type d'empilement des particules n'affecte que légèrement les valeurs d'absorbance, avec des valeurs de A_p sensiblement supérieures pour les arrangements hexagonaux et bimodaux.

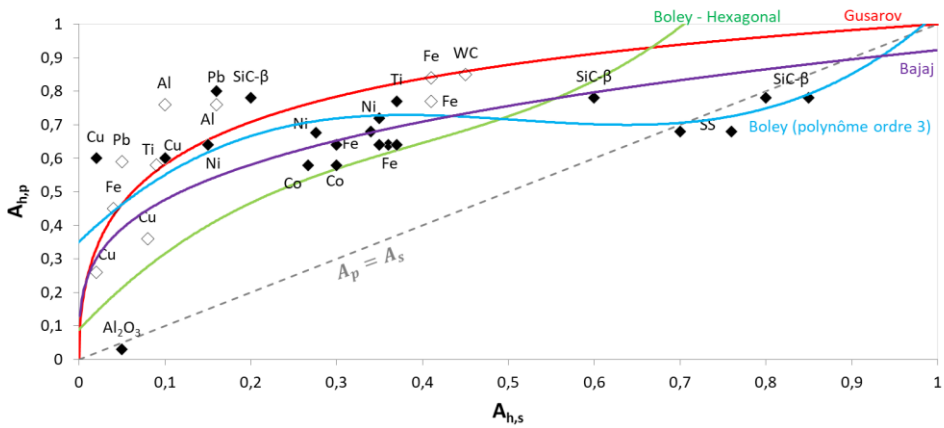
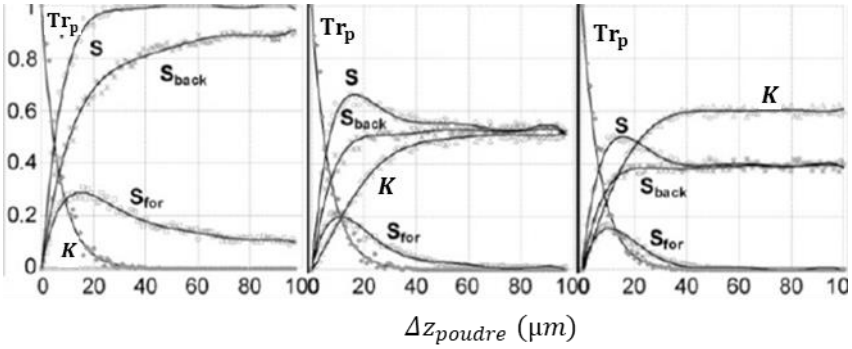


Figure III-34 : Absorbance du milieu granulaire A_p en fonction de l'absorptivité du milieu dense A_s issue de la littérature. En symbole plein ◆ λ=1,07µm, en symbole évidé ◇ λ≠1,07µm. Applications de différents modèles

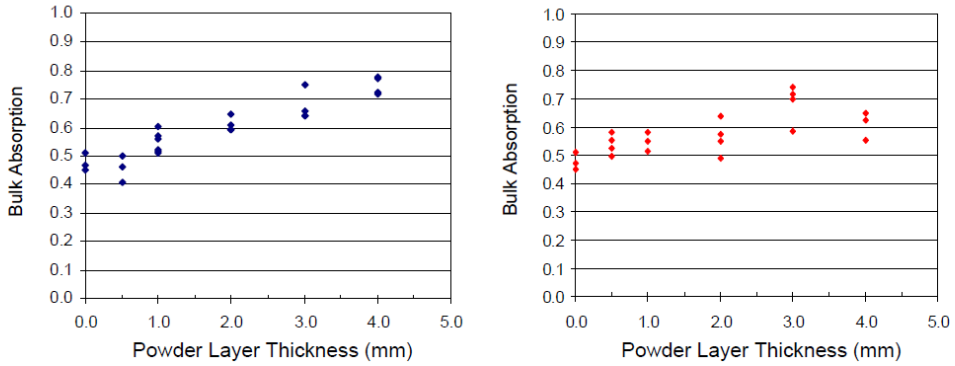
Ces observations sont complétées par les travaux de (Streek, Regenfuss, et Exner 2013) qui ont développé un algorithme statistique de suivi du rayonnement dénommé « ray tracing » permettant de décrire les prémisses de la dissipation d'énergie d'un faisceau laser pénétrant le lit de poudre (LDP), avant fusion. Ils calculent la dissipation initiale d'énergie d'après la forme et la distribution spatiale énergétique du faisceau laser irradiant le LDP. Ils définissent la part d'énergie absorbée, diffusée (ou réfléchie) et transmise par le LDP. Pour un matériau non absorbant (absorption intrinsèque du matériau A_{mat}=0), l'augmentation de Δz_{poudre} *(Figure III-35)* induit une augmentation rapide de la diffusion S (ou ici, la réflectance) et une diminution tout aussi rapide de la transmittance Tr_p jusqu'à une complète dissipation de l'énergie par le LDP. Si le matériau est absorbant ($A_{mat} \neq 0$), la décroissance de la transmittance reste inchangée mais l'absorbance K du LDP augmente avec Δz_{poudre} au détriment de la diffusion S. On a alors $R_p^{abs} < R_p^{trans}$. On remarque que pour ce cas absorbant, S croît jusqu'à atteindre un maximum puis diminue jusqu'à une valeur limite lorsque $Tr_p = 0$.



a) **A_{mat}=0** b) **A_{mat}=0,1** c) **A_{mat}=0,5**

Figure III-35 : Variations de K, Tr_p et S en fonction de Δz_{poudre}.
S_{for} est la diffusion en avant, S_{back} en arrière ou rétrodiffusion, d'après (Streek, Regenfuss, et Exner 2013)

(Martukanitz et al. 2004) mesurent par calorimétrie l'absorbance lors de l'irradiation laser du fer et de l'inconel 718. Ils montrent comme vu précédemment, d'une part que $A_p > A_s$, et d'autre part que A_p augmente avec Δz_{poudre} *(Figure III-36)*. Bien que l'absorptivité du liquide A_f est supérieure à A_s, elle reste toutefois, en fonction des conditions opératoires, inférieure à A_p due à la multi-réflexion du LDP ($A_p > A_f > A_s$).



a) b)

Figure III-36 : Absorbance du système {LDP + substrat} pour différentes épaisseurs de lit de poudre pour a) le fer pur b) l'Inconel 718 d'après (Martukanitz et al. 2004)

Pour les céramiques oxydes, les rares valeurs des propriétés radiatives de la littérature à la longueur d'onde d'intérêt sont très dispersées *(Tableau III-5)*. On note des absorbances faibles, et pour l'alumine $A_p < A_s$ (hors monocristal) mais aucune valeur n'est donnée pour la réflectance. Les mesures optiques mises en place dans le chapitre suivant permettront alors de donner des tendances claires.

III.3.3 Rugosité d'un substrat massif

(Rozenbaum 1999) montre en comparant les spectres de réflectance d'échantillons polis à ceux d'échantillons non polis de silice, qu'aucune influence de la rugosité n'est relevée dans la zone de semi-transparence (λ < 7 µm). La même conclusion est tirée pour l'alumine par (Gannon et Linder 1964) et (Cabannes 1966). **La rugosité d'un matériau homogène semble donc influer sur ses propriétés optiques seulement lorsque son absorbance est importante.** Pour des substrats métalliques denses notamment, (Sainte-Catherine et al. 1991) montrent que pour un acier AISI 1045 dense, l'absorbance varie en fonction de l'état de surface. L'état sablé absorbe plus que l'état brut. L'état poli, à l'inverse absorbe moins que l'état brut. Ces observations sont valables entre 400 et 1500 K. (Bergström 2008) montre que l'augmentation de la rugosité moyenne (*Sa* évaluée au profilomètre optique) au-dessus de 1,5 µm implique un accroissement de l'absorbance pour les aciers inoxydables, tandis que pour les aciers doux, il n'a pas relevé d'influences claires pour des valeurs de rugosité inferieures à 6 µm. Ces tendances rejoignent les observations faites sur les LDP absorbants : ils réfléchissent moins et absorbent plus que les substrats denses ($R_p < R_s \; soit \; A_p > A_s$) . Les rayons incidents subissent des réflexions multiples à travers la porosité du LDP avec une fraction absorbée à chaque réflexion. Le rayonnement se retrouve alors « piégé » par la porosité ce qui explique ses faibles valeurs de réflectance et donc l'augmentation de l'absorbance.

III.3.4 Taille des particules et compacité

Dans les milieux granulaires, le taux de porosité est directement lié à l'empilement des particules et donc à leurs tailles. Les particules jouent le rôle de diffuseurs. Plus petite est leur taille, plus le nombre d'interfaces susceptibles de réfléchir le rayonnement est élevée. Un nombre croissant de réflexions implique que le fraction transmise du rayonnement diminue, la part diffusée augmente et si le matériau est absorbant, la fraction absorbée augmente également (comme vu au paragraphe précèdent avec l'augmentation de Δz_{poudre}). Cet effet de taille est corroboré par diverses mesures des propriétés radiatives sur LDP de céramiques oxydes (Debout 2007). Il est également supposé qu'en dessous d'un diamètre critique de particule pour les matériaux non absorbants, c'est le régime de Rayleigh qui prédomine *(§III.2.1.1.)* : la diffusion s'atténue tandis que la transmittance augmente.

Pour les matériaux métalliques, par exemple, (McVey et al. 2007) ont déterminé expérimentalement les coefficients d'extinction $\alpha_{ext} = \sqrt{K(K+2S)}$ pour différentes distributions granulométriques du fer sous irradiation Nd:YAG. Ils montrent que α_{ext} diminue lorsque la taille moyenne des particules augmente. (Tolochko et al. 2000) constatent les mêmes tendances pour un alliage de nickel. (Gusarov et Smurov 2010) démontrent pour un LDP de sphères opaques mono-dispersées, que ce coefficient d'extinction α_{ext} est proportionnel à la fraction volumique de particules fv_p et inversement proportionnel à la taille moyenne des particules d_{50} ainsi qu'à la porosité du LDP ($P_t = 1 - fv_p$) :

$$\boldsymbol{\alpha_{ext} = \frac{3}{2}\frac{fv_p}{(1-fv_p).d_{50}}} \qquad \text{III.107}$$

(Y. Yang et al. 2018) vérifient que l'augmentation de la taille des particules d'AISi12 diminue l'absorbance *(Figure III-37)*. Cet effet se traduit effectivement par la diminution de la multi-réflexion (moins d'interfaces impactées), mais aussi du diamètre d'interaction et de la hauteur de la zone refondue H_{ZR}.

Les calculs de (Streek, Regenfuss, et Exner 2013) présentent l'avantage de séparer l'effet de la compacité de celui de la taille des particules alors que ces effets sont habituellement interdépendants *(Figure III-38)*. Pour un même Δz_{poudre}, là encore la diminution de la taille des particules ou de la porosité du LDP, augmente l'absorbance K du LDP et diminue sa transmittance Tr_p et sa diffusion S. L'absorbance K du LDP est donc inversement proportionnelle à la taille des particules et à la porosité du LDP (comme dans l'*équation III.107*). Les auteurs ont également simulé l'impact d'un rayonnement gaussien sur un LDP à l'échelle des particules comme présenté en *Figure III-39*, pour différentes compacités et absorbances à taille constante de particules. La distribution spatiale de la puissance absorbée est plus surfacique que volumique lorsque la compacité et l'absorption intrinsèque du matériau augmentent.

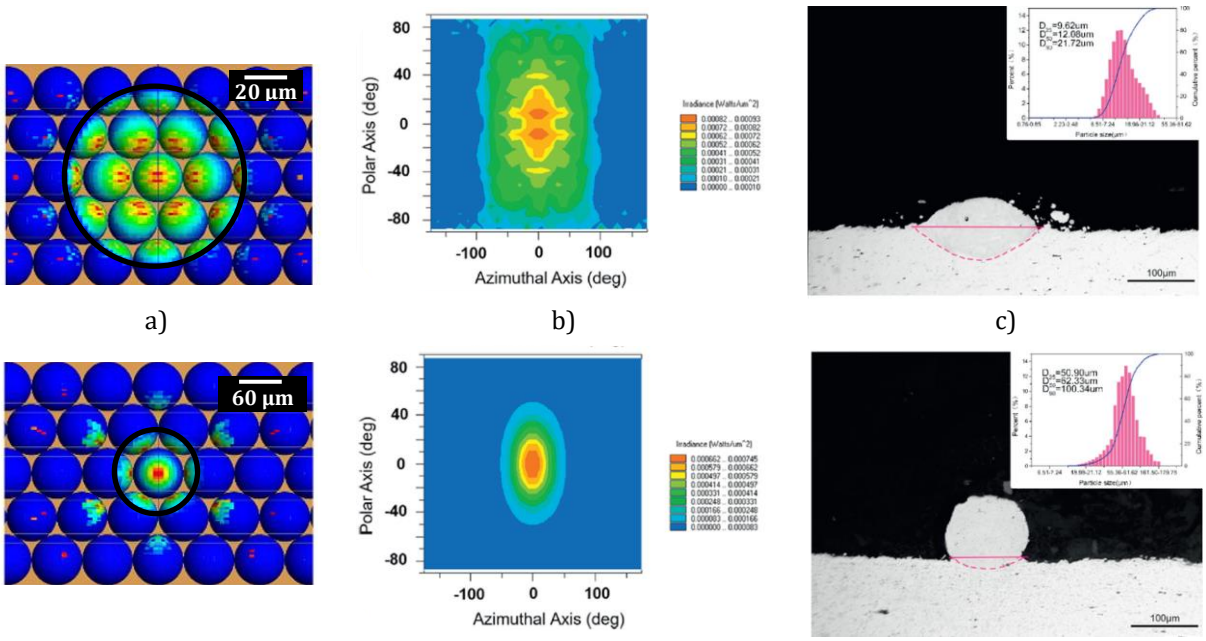


Figure III-37 : Comparaison pour deux tailles différentes de particules iso-dimensionnelles à d_{50}=20 µm (a-c) et d_{50}=60 µm (d-f) : a) et d) représentent l'irradiance absorbée à la surface du LDP ; b) et e) l'irradiance de la zone d'interaction puis c) et f) la section transverse de la zone fondue d'après (Y. Yang et al. 2018)

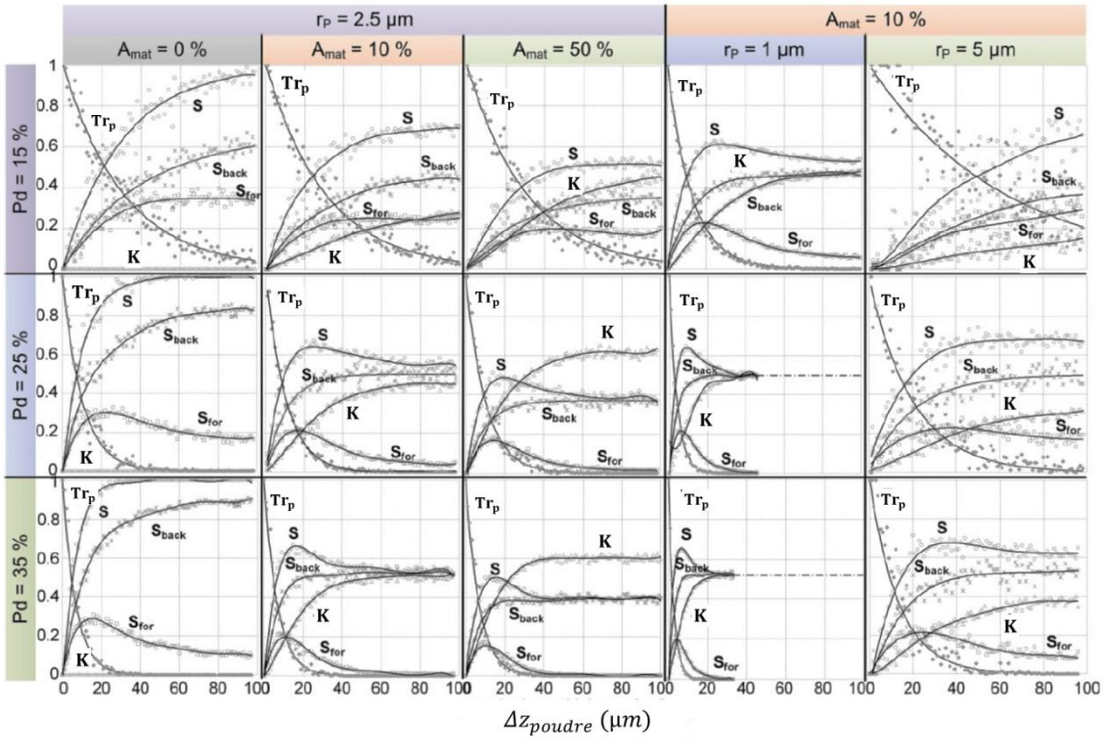


Figure III-38 : Simulation des propriétés radiatives : diffusion totale S, diffusion en avant S_{for} et en arrière S_{back}, absorbance K et transmissttance Tr_p pour différentes valeurs d'épaisseur de poudre, compacité Pd, diamètre moyen des particules ($d_{50} = 2\ r_p$) et absorption intrinsèque du matériau A_{mat}; d'après (Streek, Regenfuss, et Exner 2013)

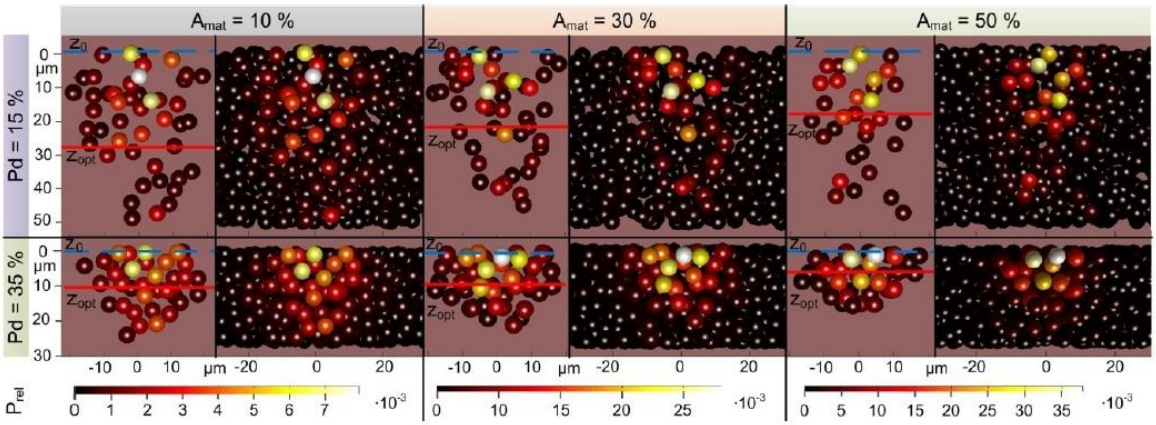


Figure III-39 : Simulation des sections irradiées par un faisceau Gaussien de rayon 12,5 µm au sein d'un LDP de compacité Pd constitué de particules de rayon 2,5 µm pour différentes absorptions intrinsèques du matériau A_{mat}. Chaque particule est colorée suivant l'échelle de puissance absorbée P_{rel} ; d'après (Streek, Regenfuss, et Exner 2013)

En stéréolithographie céramique (*CSL*) où sont dispersées des particules céramiques au sein d'une résine photosensible, (Griffith et Halloran 1994) définissent pour un matériau diffusant et pulvérulent, un coefficient d'extinction linéaire α_{ext} comme suit :

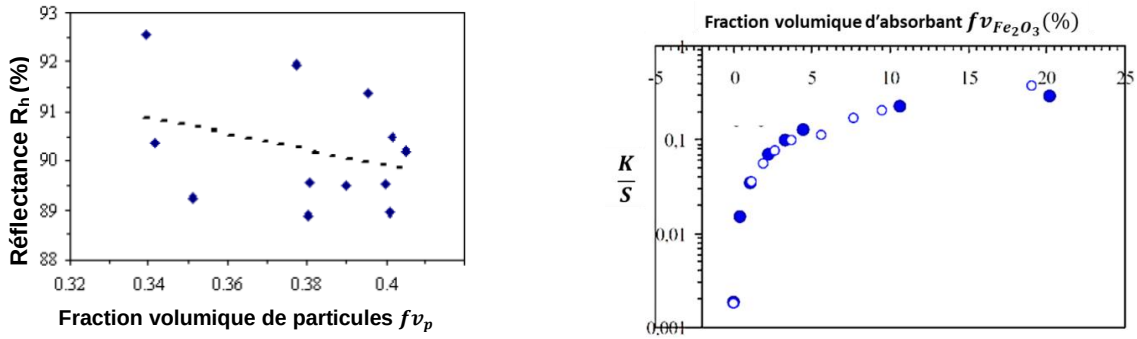
$$\alpha_{ext} = \frac{3}{2}\frac{f v_p}{d_{50}} \cdot Q_{ext} \qquad \text{III.108}$$

$$Q_{ext} = \frac{d_{ip}}{\lambda} \cdot \frac{\Delta n^2}{n_{mat}} = \frac{d_{ip}}{\lambda} \cdot \frac{(n_p - n_{mat})^2}{n_{mat}} \qquad \text{III.109}$$

avec Q_{ext} le facteur d'efficacité de l'extinction, d_{ip}la distance-inter particulaire moyenne, Δn l'écart entre l'indice de réfraction de la poudre $n_p$et celui de la matrice (résine) n_{mat}.

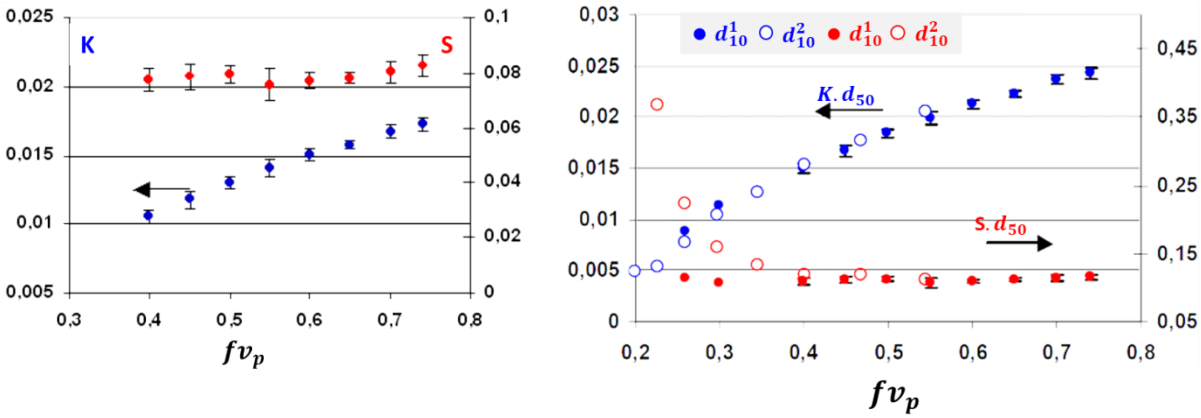
Les mesures présentées par (Kortüm 1969) sur des poudres de verre confirment également qu'en régime de diffusion multiple, la diffusion S est inversement proportionnel au diamètre des particules.

(Faure 2004) montre qu'indépendamment de la taille des particules d'alumine, une diminution de la réflectance totale hémisphérique R_h se produit pour des milieux granulaires plus denses malgré une forte dispersion des résultats et une faible variation de fv_p *(Figure III-40)*. Elle montre également que le coefficient d'absorption K du modèle à deux flux de Kubelka-Munk augmente de manière linéaire avec la compacité du LDP (donc avec fv_p), contrairement au coefficient de diffusion S qui en est indépendant *(Figure III-41.a)*. L'effet de la distribution granulométrique sur les propriétés radiatives du LDP (K et S) est visible en *Figure III-41.b*. L'effet de deux valeurs de d_{10} , pour une valeur de d_{90} constante, montre que seul S varie avec la largeur de la distribution granulométrique. S augmente rapidement aux faibles f_{vp} ($f_{vp} < 0{,}35$) et donc aux grandes largeurs de distribution granulométrique L'auteur explique ce phénomène par la forte probabilité qu'a un rayon émergeant d'une petite particule d'intersecter une sphère de plus grand diamètre *(Figure III-42)*. Dans son étude, l'auteur montre également que l'ajout d'un absorbant (Fe_2O_3 dont $\kappa_e = 3.10^{-3}$) à la poudre d'alumine augmente le rapport K/S *(Figure III-40.b)*. L'ajout d'un absorbant augmente donc le caractère absorbant du lit de poudre.



a) b)

Figure III-40 : Variation a) de la réflectance en fonction de la fraction volumique de particules b) de K/S en fonction de l'ajout de Fe_2O_3 à la poudre d'alumine avec une comparaison entre les valeurs expérimentales (cercles pleins) et les valeurs simulées (cercles évidés) d'après (Faure 2004)



a) b)

Figure III-41 : Variations en fonction de la fraction volumique de particules du LDP a) de K (en bleu) et de S (en rouge) b) de $K.d_{50}$ et de $S.d_{50}$ pour deux valeurs différentes de d_{10} i.e. de distribution granulométrique, d'après (Faure 2004)

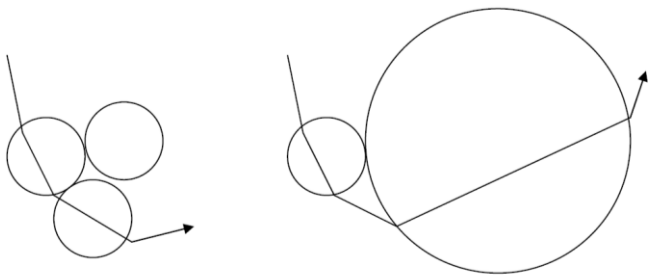


Figure III-42 : Schématisation de la variation de la diffusion S du lit de poudre engendrée par une variation de la distribution granulométrique des tailles de particules

III.4 Conclusion du Chapitre III

L'étude des propriétés optiques des matériaux homogènes (milieux denses) montre une nette différence entre les indices de réfraction complexes des céramiques oxydes semi-transparentes et des métaux absorbants à la longueur d'onde de travail. Les indices de réfraction issus de la littérature semblent légèrement diminuer avec l'augmentation de la température. Les coefficients d'absorption des céramiques sont nettement inférieurs à ceux des métaux. Leur valeur augmente avec la température et la présence d'impuretés, même en très faible quantité. Ces céramiques transparentes présentent un chauffage volumique, qui peut devenir surfacique (comme dans le cas des métaux) avec l'augmentation de leur température ou d'une quantité d'impuretés rendant ces céramiques absorbantes. C'est le cas lors d'ajouts d'absorbants en concentration suffisante ou en adaptant les paramètres du procédé LBM. Il faut noter cependant que les propriétés optiques des matériaux céramiques denses issues de la littérature sont rares et dispersées bien souvent suite à la présence ignorée d'impuretés.

Les lois de l'optique géométrique en adéquation avec les milieux homogènes ont été appliquées au cas d'une lame d'épaisseur finie et d'un multicouche, absorbant ou semi-transparent. Les propriétés radiatives sont alors liées au coefficient d'absorption α_{abs} dans le cas d'un milieu unique. Dans le cadre du LBM, ces lois s'appliquent aux substrats denses et aux bains fondus en statique (0D). Malgré la complexité du procédé, l'interaction laser avec plusieurs milieux homogènes permet d'appliquer également ces lois dans le cas multicouche au cas de la fusion du monocordon 1D, *i.e* au dépôt du lit de poudre fondu sur un substrat. Dans ce cas, les propriétés radiatives peuvent être décrites à l'interface bain liquide/substrat et sont reliées aux coefficients d'absorption de l'ensemble α_{abs}^{ps} pour les milieux semi-transparent et absorbant.

L'étude des propriétés optiques des matériaux hétérogènes (englobant les matériaux granulaires) à travers la théorie de Mie, met en avant la dominance du régime de diffusion multiple indépendante pour les lits de poudre (la diffusion de chaque particule ne dépend pas de la présence de particules voisines) de céramiques oxydes non fondus. La description de ces milieux peut alors se faire par résolution de l'ETR, notamment au travers des méthodes à deux ou quatre flux. Les propriétés radiatives sont liées aux coefficients d'absorption et diffusion effectifs K et S du modèle à deux flux de K-M. Ce modèle K-M est limité par l'hypothèse d'une incidence diffuse. Toutefois, la correction pour une incidence collimatée avec la prise en compte des réflexions aux interfaces (correction de *Saunderson*) permet de l'appliquer aux mesures des propriétés radiatives par une sphère intégrante sous incidence collimatée *(Chapitre IV).* Le modèle à quatre flux permet de lever les restrictions du modèle à deux flux. Il donne, avec des conditions aux limites et des paramètres γ et ζ judicieusement choisis, une bonne estimation des coefficients d'absorption et de diffusion intrinsèques k et s qui présentent l'avantage d'être directement reliés aux

propriétés radiatives des particules. Bien que cette méthode soit précise, elle est très calculatoire et ne sera pas retenue pour la suite. Néanmoins, les deux méthodes de résolution sont équivalentes sous certaines conditions. Ont été présentés le cas du milieu granulaire translucide ou autoporté (sans fond ou fond de verre transparent) ou sur un fond défini (fond de même nature, fond noir totalement absorbant ou fond blanc totalement réfléchissant), et le cas du milieu granulaire opaque (d'épaisseur semi-infinie). Ces cas sont complémentaires pour calculer K et S à travers le modèle à deux flux. En *Tableau III-6* sont résumés les différents cas rencontrés dans le chapitre et en *Figure III-43*, les démarches et combinaisons de calcul qui ont permis le traitement des mesures optiques réalisées au chapitre suivant.

L'effet des caractéristiques des milieux sur les propriétés radiatives est différente entre les métaux (absorbants) et les céramiques oxydes (transparentes ou semi-transparentes si présence d'impuretés) - *Tableau III-7*. Il faut retenir que les céramiques oxydes ont une interaction volumique vis-à-vis du rayonnement laser et elles deviennent opaques à l'état liquide. L'impact de la rugosité sur les propriétés optiques d'un substrat dense est faible, et la réflectance est supérieure à celle des métaux tandis que l'absorbance est inférieure. Le milieu granulaire induit une diffusion du rayonnement collimaté incident, ce qui rend l'absorption plus faible que pour le matériau dense de même nature. De plus, une forte épaisseur d'un lit de poudre, une faible compacité, et des particules de petites tailles ainsi qu'une grande largeur de distribution granulométrique renforcent davantage ce phénomène de diffusion. Dans le cas des matériaux absorbants, la multi-réflexion induite par la rugosité des particules et le lit de poudre, provoque en plus de l'augmentation du coefficient de diffusion S, une augmentation du coefficient d'absorption K.
Les propriétés radiatives étudiées pour les procédés laser sur les matériaux métalliques indiquent une augmentation de l'absorbance proportionnelle à P et à 1/V et l'importance de l'hétérogénéité d'un point de vue de l'optique des différents milieux en présence sous le faisceau laser (LDP, liquide et substrat). Il conviendra alors d'infirmer ou de confirmer ces tendances pour les céramiques oxydes par le biais des mesures optiques présentées au chapitre suivant.

Tableau III-6 : Résumé des différents cas étudiés pour l'expression des réflectances, transmittances et coefficients optiques

Conditions		Réflexion	Transmission	Coefficients d'absorption et de diffusion	Variables d'entrée et de sortie
Homogène : optique géométrique					
Mono-couche Milieu d'épaisseur finie	Substrat Lit de poudre (Bohren et Huffman 1983)	$R_h = R + \frac{R.Tr^2.(1-R)^2}{1-R^2.Tr^2} = R.(1+Tr.Tr_h)$	$Tr_h = \frac{(1-R)^2.Tr}{1-R^2.Tr^2}$	$\alpha_{abs}^{s} = -\frac{1}{\delta_{sub}}.\ln Tr_s$ *et* $\alpha_{abs}^{p} = -\frac{1}{\delta}.\ln Tr_p$	R_h, Tr_h, δ_{sub} *ou* δ ➔ Tr, R, α_{abs}
Multi-couche {Lit de poudre+substrat} ou {Liquide + substrat}	Absorbant ou épaisseur semi-infinie	$R_{h,ps}^{abs} = R_p + \frac{R_s.Tr_p^2.(1-R_p)^2}{1-R_s.R_p.Tr_p^2} = R_p + \frac{R_s.Tr_p.(1-R_p)}{(1-R_s)}.Tr_{h,ps}^{abs}$	$Tr_{h,ps}^{abs} = \frac{(1-R_s).(1-R_p).Tr_p}{1-R_s.R_p.Tr_p^2}$	$\alpha_{abs}^{ps} = -\frac{1}{(\delta+\delta_{sub})}.\ln Tr_{ps}^{abs}$	$R_{h,ps}^{abs}$, R_s, Tr_p, δ_{sub}, δ ➔ R_p, $Tr_{h,ps}^{abs}$, α_{abs}^{ps}
	Semi-transparent ou épaisseur finie (Kortüm 1969)	$R_{h,ps} = R_{h,p} + \frac{Tr_{h,p}^2.R_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}} = R_{h,p} + \frac{Tr_{h,p}.Tr_i.R_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}}$	$Tr_{h,ps} = \frac{Tr_{h,p}.Tr_{h,s}}{1-R_i.R_{h,s}}$	$\alpha_{abs}^{ps} = -\frac{1}{(\delta+\delta_{sub})}.\ln Tr_{ps}$	$R_{h,ps}$, Tr_{ps}, $R_{h,s}$, $Tr_{h,s}$, $Tr_{h,p}$ δ_{sub}, δ ➔ R_i, $R_{h,p}$, Tr_i, α_{abs}^{ps}
Hétérogène : modèle des flux					
***2 flux Kubelka-Munk*, Incidence diffuse**	**Cas Opaque** (Kubelka 1948)	$R_\infty^{KM} = 1 + \frac{K}{S} - \sqrt{\left(1+\frac{K}{S}\right)^2 - 1}$		$\frac{K}{S} = \frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{2R_\infty^{KM}}$	R_∞^{KM} ➔ K/S
	Cas Translucide sur fond (Kessler, Oelkrug, et Kessler 2009)	$R_g^{KM} = \frac{(1/R_\infty^{KM})(R_g - R_\infty^{KM}) - R_\infty^{KM}(R_g - \frac{1}{R_\infty^{KM}})e^{S\delta 2b}}{(R_g - R_\infty^{KM}) - (R_g - \frac{1}{R_\infty^{KM}})e^{S\delta 2b}}$		$S = \frac{1}{\delta b}coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - R_g)}{b(R_g - R_g^{KM})}\right)$ $K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{1-R_\infty^{KM^2}}.coth^{-1}\left(\frac{b^2 - (a - R_g^{KM})(a - R_g)}{b(R_g - R_g^{KM})}\right)$	R_g^{KM}, R_∞^{KM}, δ, R_g ➔ K, S
	Cas translucide couche autoportée (Kubelka 1948)	$R^{KM} = \frac{R_\infty^{KM}(e^{S\delta 2b} - 1)}{e^{S\delta 2b} - R_\infty^{KM^2}}$		$S = \frac{1}{\delta b}.coth^{-1}\left(\frac{1 - a.R^{KM}}{b.R^{KM}}\right)$ $K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{1-R_\infty^{KM^2}}.coth^{-1}\left(\frac{1 - a.R^{KM}}{b.R^{KM}}\right)$	R^{KM}, R_∞^{KM}, δ, $R_g = 0$ ➔ S, K
			$Tr^{KM} = \frac{(1-R_\infty^{KM})^2 e^{-bS\delta}}{1-R_\infty^{KM^2}.e^{-2bS\delta}}$	$S = \frac{1}{\delta b}.\left[sinh^{-1}\left(\frac{b}{Tr^{KM}}\right) + ln(R_\infty^{KM})\right]$ $K = \frac{1}{\delta}.\frac{(1-R_\infty^{KM})^2}{1-R_\infty^{KM^2}}.\left[sinh^{-1}\left(\frac{b}{Tr^{KM}}\right) + ln(R_\infty^{KM})\right]$	Tr^{KM}, R_∞^{KM}, δ ➔ S, K

***2 flux Kubelka-Munk*, Incidence collimatée**	**Correction avec les réflexions aux interfaces** (Murphy 2006)	$R^{KM} = \frac{(R_{cd} - r_{cd}^f)}{(1 - r_{dd}^b).(1 - r_{cc}^f - r_{cd}^f) + (R_{cd} - r_{cd}^f).r_{dd}^b}$ $R_g^{KM} = \frac{(R_{cd,g} - r_{cd}^f)}{(1 - r_{dd}^b)(1 - r_{cc}^f - r_{cd}^f) + (R_{cd,g} - r_{cd}^f)r_{dd}^b}$ $R_\infty^{KM} = \frac{(R_{cd,\infty} - r_{cd}^f)}{(1 - r_{dd}^b)(1 - r_{cc}^f - r_{cd}^f) + (R_{cd,\infty} - r_{cd}^f)r_{dd}^b}$			R_{cd} (ou $R_{cd,\infty}$ ou $R_{cd,g}$), $r_{cd}^f, r_{dd}^b, r_{dd}^f$ ➔ R_{KM} ou R_∞^{KM} ou $R_{cd,g}$
4 flux	**Incidence collimatée** **Cas autoporté** (Debout 2007)	$R_{cc} = r_c^f + \frac{r_c^f.(1 - r_c^f)^2.e^{-2(k+s)\delta}}{1 - {r_c^f}^2.\ e^{-2(k+s)\delta}}$ $R_{cd} = \frac{(1 - r_{dd}^b).(1 - r_c^f).e^{-(k+s)\delta}}{[A_1 - (k+s)^2].\left[1 - {r_c^f}^2.\ e^{-2(k+s)\delta}\right]}.\frac{N}{D}$ $R_{dd} = 0$	$Tr_{cc} = \frac{(1 - r_c^f)^2.\ e^{-(k+s)\delta}}{1 - {r_c^f}^2.\ e^{-2(k+s)\delta}}$ $Tr_{cd} = \frac{(1 - r_{dd}^b).(1 - r_c^f).e^{-(k+s)\delta}}{[A_1 - (k+s)^2].\left[1 - {r_c^f}^2.\ e^{-2(k+s)\delta}\right]}.\frac{N'}{D'}$ $Tr_{dd} = 0$		R_{cd}, Tr_{cd}, r_{dd}^b, $r_c^f, \delta, N, D, N', D', A_1$ ➔ k, s

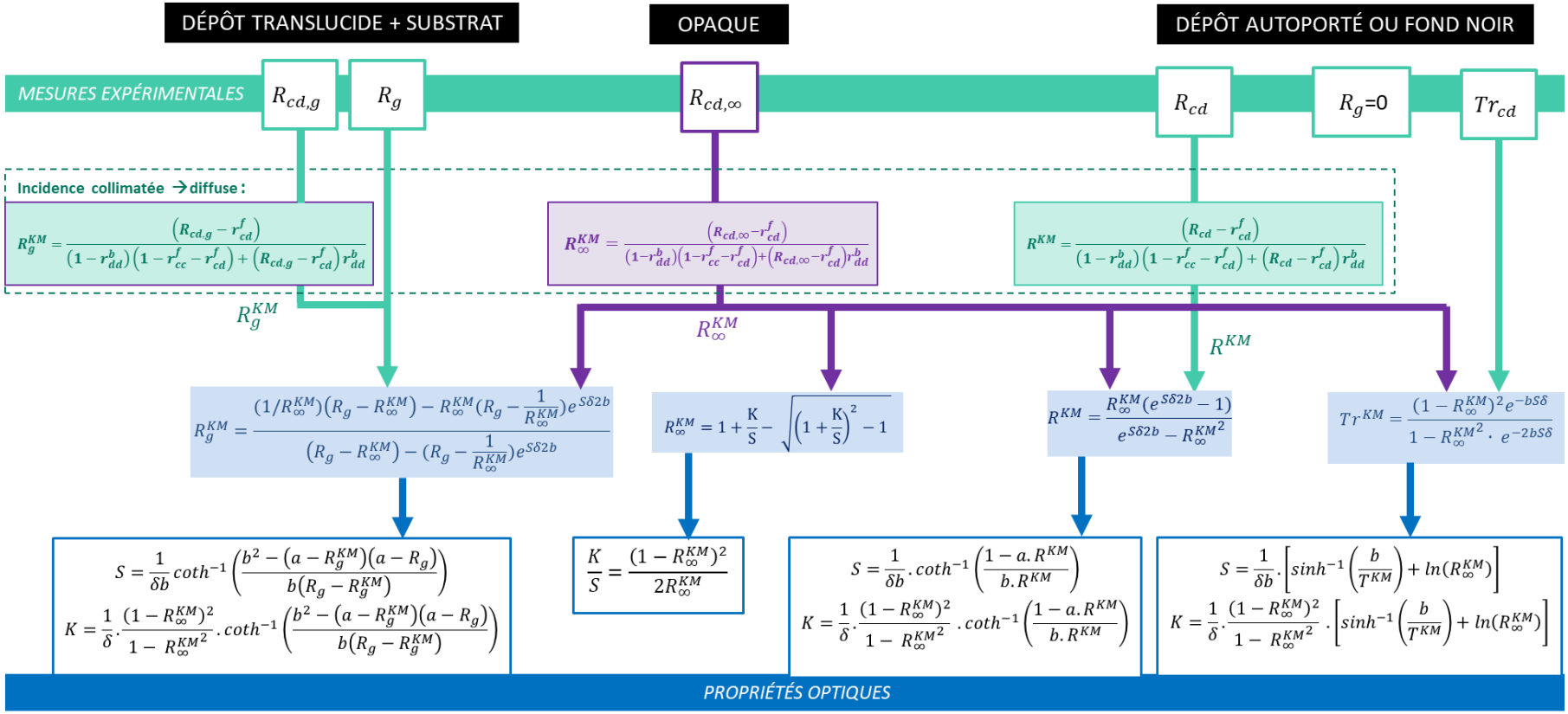


Figure III-43 : Lien entre les grandeurs radiatives mesurées et les coefficients K et S

Tableau III-7 : Résumé des variations des propriétés radiatives suivant les caractéristiques des milieux étudiés : denses, LDP ou mixtes

PARAMETRE	CERAMIQUES OXYDES	METAUX
Nature à T_{amb}	- $R_p^{oxydes} > R_p^{métaux}$ et $A_s^{oxydes} < A_s^{métaux}$ - $R_s^{oxydes} > R_s^{métaux}$ et $A_p^{oxydes} < A_p^{métaux}$ - Absorption plus volumique des oxydes par rapport aux métaux à absorption plus surfacique	
Rugosité croissante	- **Pas/peu d'influence de la rugosité**	- $\boldsymbol{A_s}$ ↗
Granulaire vs. dense	- $\boldsymbol{A_p \leq A_s}$	- $\boldsymbol{A_p > A_s}$ $(\boldsymbol{R_p < R_s})$ - $\boldsymbol{A_{ps} > A_s}$ $(\boldsymbol{R_{ps} < R_s})$
Δz_{poudre} croissant	- S ↗ rapidement et →1 - Tr_p ↘ rapidement et → 0	- A_p ↗, K ↗, S ↗ - le type d'empilement des particules affecte peu les valeurs de A_p
Température, temps d'interaction et puissance croissantes (0D)	- $\boldsymbol{R_s}$ ↘ **et** $\boldsymbol{A_s}$ ↗ à l'état solide, puis de manière plus prononcée à partir du point de fusion ➔**le matériau devient opaque** ➔$\boldsymbol{A_k > A_f > A_s \geq A_p}$	- $\boldsymbol{R_s}$ ↘ **et** $\boldsymbol{A_s}$ ↗ à l'état solide et liquide. Fluctuations du signal avec un keyhole instable puis stabilisation. ➔**valable quel que soit l'état de surface (brut, poli ou sablé)** ➔$\boldsymbol{A_k > A_p > A_f > A_s}$
Vitesse et énergie linéique (1D)	-	- Pour un bain de fusion : - R_h ↘ **et** A_h ↗ suivant E_l=P/V : l'angle d'inclinaison diminue - Hypothèse : $R_h$mesurée moyennée entre l'état non fondu (dense ou LDP) et la zone en dépression du liquide ou keyhole
Taille de particules décroissante	- S ↗, α_{ext}↗ - En dessous d'un rayon critique (régime de Rayleigh) : S↘, R_p↘ et Tr_p ↗ - Elargissement de la distribution granulométrique : S↘	- Multi-réflexion accrue - S↗, K↗, A_p↗, α_{ext}↗ - Tr_p ↘
Taux de porosité décroissant (LDP ou substrat)	- Absorption volumique→ surfacique - R_h ↘, S ↘ - Tr_h ↗, K ↗, α_{ext}↗	- Absorption volumique→ surfacique - α_{ext}↗, K ↗ - Tr_h ↘, S ↘
Autres paramètres	- A ↗ avec le taux impuretés - K/S ↗ avec l'ajout d'absorbants	- A varie avec la pression ambiante, l'environnement, la présence de couche d'oxyde et de la formation d'un plasma d'ions métalliques

CHAPITRE IV

DETERMINATION DES PROPRIETES OPTIQUES VIA DES MESURES RADIATIVES IN OPERANDO

Malgré l'existence de modèles numériques de l'absorption comme vu au Chapitre III, des mesures expérimentales directes sont utiles pour la compréhension de l'interaction laser-matière et pour le contrôle du procédé LBM qui est gouverné par la fusion et engendre des gradients thermiques importants. Parmi les mesures directes fréquemment utilisées, on note les mesures calorimétriques. Elles mesurent l'énergie absorbée par une couche de poudre induite par une source mobile. Dans ce cas précis, la majorité de l'énergie est absorbée par le bain liquide et non par la poudre et les pertes par radiation et convection ne sont pas comptabilisées, ce qui surestime l'absorption. Par ailleurs, il existe les mesures radiométriques qui collectent les propriétés radiatives, telles que les mesures d'émittance et de réflectance. La mesure par sphère intégrante de la réflectance sur le lit de poudre a déjà été mis en place notamment par (Tolochko et al. 2000; McVey et al. 2007) pour les métaux, et (Hagedorn 2013; Faure 2004) pour les céramiques. Signalons que cette méthode par sphère intégrante est difficile à mettre en place et couteuse. Dans le cas des céramiques transparentes au rayonnement laser, cette technique est toutefois très intéressante car, par combinaison avec une sphère intégrante en transmission, la caractérisation complète des propriétés optiques du matériau en question est alors possible.

Les mesures in operando par sphère intégrante réalisées dans cette thèse permettent l suivi de la réflectance R_h et de la transmittance Tr_h (et donc de l'absorbance A_h). Les mesures sont réalisées pour des lits de poudre (LDP) suspendus, des substrats seuls et des milieux mixtes (poreux/dense) tels que l'ensemble {LDP+Substrat}, caractéristiques du procédé LBM avec un suivi de la fusion et de l'évaporation. Ces mesures simultanées de R_h et Tr_h renvoient aux coefficients linéaires d'absorption α_{abs} pour les différents états de la matière et aux coefficients de diffusion S et d'absorption K (et donc au coefficient d'extinction α_{ext}) à travers les modèles optiques présentés au Chapitre III. Les mesures permettent également de caractériser la propagation du rayonnement à l'interface LDP/substrat et de préciser les mécanismes de transferts thermiques entre les deux milieux. Ces mesures complèteront également les modèles d'interaction laser-matière développés au Chapitre V.

Dans ce chapitre, il sera décrit premièrement le dispositif des mesures in operando développé. Dans un second temps, seront présentés les résultats des mesures en configuration 0D, 1D et 2D, pour les matériaux de réception (dits purs) et enfin pour les mélanges céramiques/absorbants. L'effet des paramètres du procédé est mis en avant ainsi que la nature du milieu granulaire ou dense, l'état solide ou liquide et les paramètres des lits de poudre tels que la compacité et la taille des particules. Concernant les mélanges, la nature et la teneur en absorbant sont investiguées. Aussi, pour comparaison, des mesures sur matériaux métalliques ont été réalisées, elles sont présentées en Annexe D.

Sommaire du chapitre IV

IV DETERMINATION DES PROPRIETES OPTIQUES VIA DES MESURES RADIATIVES IN OPERANDO 166

IV.1 DISPOSITIF DES MESURES RADIATIVES 168

IV.1.1 Mise en place 168

IV.1.2 Configurations de mesure 169

IV.1.3 Plan d'expériences 171

IV.1.4 Etude préliminaire 173

IV.2 MATERIAUX CERAMIQUES DE RECEPTION 174

IV.2.1 Formation d'un bain statique (0D) 174

IV.2.1.1 Régimes d'interaction statique 174

IV.2.1.2 Equivalence statique-dynamique 178

IV.2.1.3 Effet des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives 180

a) Puissance 180

b) Nature (dense ou granulaire) et état (solide ou fondu) du milieu 181

c) Epaisseur de poudre 184

d) Systèmes mixtes comparés aux systèmes isolés de même épaisseur 184

e) Systèmes mixtes décomposés 185

IV.2.1.4 Application des modèles optiques 186

a) Modèle homogène 186

b) Modèles hétérogènes pour les milieux uniques à l'état solide 187

c) Comparaison entre les modèles homogène et hétérogène 188

IV.2.2 Ligne de fusion (1D) 189

IV.2.2.1 Vitesse de balayage et régimes d'interaction dynamique 189

IV.2.2.2 Comparaison entre 1D et 0D à l'état solide 191

IV.2.2.3 Effet des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives 192

a) Energie linéique 192

b) Epaisseur de poudre 195

IV.2.2.4 Application des modèles optiques 196

IV.2.3 Compacité 198

IV.2.4 Taille des particules 200

IV.2.5 Conclusion pour les matériaux céramiques de réception 201

IV.3 MELANGES CERAMIQUES – ABSORBANTS 204

IV.3.1 Formation d'un bain statique (0D) 204

IV.3.1.1 Régimes d'interaction laser-matière 204

IV.3.1.2 Effets des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives 204

a) Puissance 204

b) Epaisseur de poudre 206

IV.3.1.3 Effet des absorbants 207

a) A l'état solide 207

b) A l'état fondu 209

IV.3.1.4 Equivalence statique/dynamique et domaine de stabilité 1D 210

IV.3.1.5 Application des modèles optiques 211

a) Modèle homogène: états solide et fondu 211

b) Modèle hétérogène pour les milieux granulaires à l'état solide 213

c) Comparaison des modèles homogène et hétérogène 213

d) Coefficients d'absorption des absorbants 215

IV.3.2 Lignes de fusion (1D) 215

IV.3.2.1 Régimes d'interaction laser-matière 215

IV.3.2.2 Propriétés radiatives 216

a) Absorbants éphémères 216

b) Mélange céramique-métal 218

c) Epaisseur de poudre 221

IV.3.2.1 Modèle optiques homogène 221

IV.3.3 Conclusion partielle pour les systèmes mélangés à des absorbants 223

IV.4 FORMATION D'UN DRAP : PARAMETRES 2D 226

IV.5 CONCLUSION DU CHAPITRE IV 229

IV.1 Dispositif des mesures radiatives

IV.1.1 Mise en place

(Jacquez et Kuppenheim 1955) présentent deux protocoles de mesure des propriétés radiatives par sphère intégrante. La première est la *méthode des comparaisons*, utilisée par exemple par (Faure 2004). Deux porte- échantillons permettent l'acquisition du ratio des signaux entre le blanc et l'échantillon. La seconde est la *technique de substitution*, que l'on a utilisée. Les mesures sont réalisées de manière consécutive, en premier les mesures du blanc puis ensuite, les mesures sur échantillon. Aussi, il faut préciser que l'acquisition est réalisée sur un bain de fusion dont la température n'est pas rigoureusement constante dans le temps et l'espace et donc que les valeurs récupérées sont moyennées suivant la gamme de température atteinte par le bain sous le faisceau laser. De plus, un seul laser est utilisé pour la chauffe et les mesures. Il s'agit de la méthode la plus simple à mettre en œuvre, étant donné l'espace de travail *in situ* restreint dans la machine de fabrication LBM. Signalons qu'il est néanmoins possible d'utiliser un laser de chauffe couplé à un second laser de mesure, à longueur d'onde différente du laser de chauffe (Zhang et Modest 1998) pour plus de précision.

La sphère intégrante récupère le signal hémisphérique (R_h ou Tr_h), à savoir émis dans toutes les directions lors de l'interaction du faisceau laser avec l'échantillon. Dans le cas des échantillons hétérogènes fortement diffusants à l'état solide comme c'est le cas de nos échantillons, $R_h \approx R_{cd}$ et $Tr_h \approx Tr_{cd}$, la composante réfléchie collimatée étant négligeable. Le signal est récupéré de manière diffuse à partir du rayonnement incident collimaté et doit être corrigé comme vu au *Chapitre III*, afin de retomber sur les valeurs du modèle à deux flux R^{KM} et Tr^{KM}. De préférence, une lumière incidente stable et spéculaire (faisceau collimatée) est souhaitée pour minimiser la divergence du faisceau. L'intérieur de la sphère est recouverte de *Spectraflect*, un revêtement à facteur de réflexion diffuse élevé (R_0=0,96 à λ=1,070µm). Plus une sphère est grande, plus précises seront les mesures. La sphère utilisée pour les mesures de la réflectance R_h est de dimension moyenne (Ø15,24 cm) et celle pour les mesures de transmittance Tr_h est de plus petite dimension (Ø7,5 cm). Ces diamètres sont définis par l'espace disponible dans la chambre et le piston de fabrication. Le montage mis en place au sein de l'enceinte de fabrication est présenté en *Figure IV-1*. L'échantillon est incliné selon un angle de 10° par rapport à la sphère et au rayonnement incident pour l'ensemble des mesures afin de récupérer le signal spéculaire à la fusion de l'échantillon.
Les mesures sur LDP nécessitent deux étapes : dans un premier temps, l'étalement de la poudre est réalisé de manière conventionnelle dans les mêmes conditions que pour une fabrication ; puis dans un second temps, les sphères intégrantes sont montées et l'échantillon est orienté à 10°. Des photodiodes (818-IR-détecteur germanium 780-1800 nm) permettent de récupérer et convertir les signaux lumineux émanant de l'échantillon en signaux électriques. Après amplification, l'enregistrement via le logiciel *NISignalExpress* permet le suivi au cours du temps sur une plage maximale de 7 secondes (à une fréquence d'acquisition de 50 kHz, soit un relevé toutes les 20 ms). Le facteur G représente le gain imposé par l'amplificateur. Un filtre coupe bande est utilisé pour filtrer le rayonnement laser à 1070 nm. Le signal de présence laser est également suivi en parallèle. Les détails de la calibration sont décrits en *Annexe C*.

Les signaux des échantillons sont acquis et pondérés par rapport au signal de référence (établi par la calibration sur le blanc pour la réflexion et à vide pour la transmission) de manière à calculer la réflectance R_h et la transmittance Tr_h :

$$R_h = \frac{U_R}{U_0} \cdot \frac{G_0}{G_R} \cdot R_0 \qquad \text{IV.1}$$

$$Tr_h = \frac{U_{Tr}}{U_0'} \cdot \frac{G_0'}{G_{Tr}} \cdot Tr_0 \qquad \text{IV.2}$$

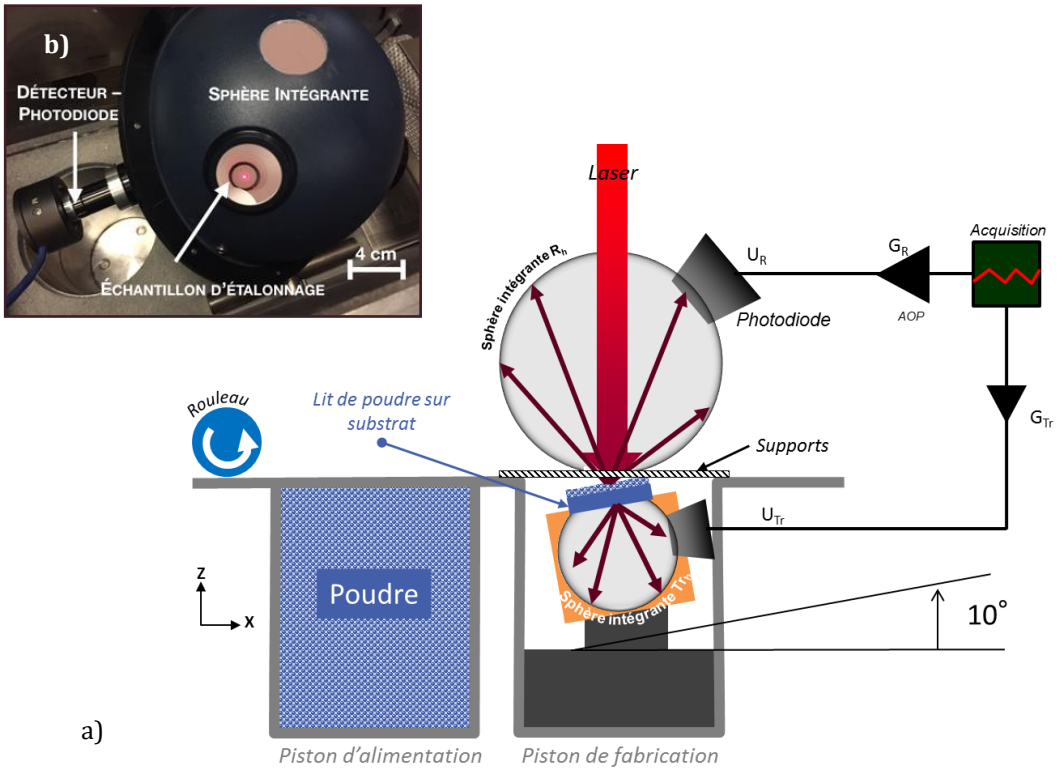


Figure IV-1 : a) Dispositif développé pour les mesures optiques simultanées en réflexion et en transmission et b) photo in-situ du montage vu du dessus

Un « premier pic » est identifiable sur les signaux enregistrés. Il est attribué au premier contact laser-matière par (Keller 2017) mais sa valeur n'est pas représentative, elle semble aléatoire et peut dépasser les 100% de réflexion, elle ne sera donc pas prise en compte.

IV.1.2 Configurations de mesure

Cinq types de mesures ont été entrepris *(Figure IV-2)*. A chacun d'entre eux correspondent des grandeurs mesurées. L'objectif final étant l'estimation des propriétés optiques au sein du système de fabrication par LBM {LDP+substrat}, il est utile de mesurer avant tout les propriétés radiatives de chacun des constituants de ce système : d'une part dans le lit de poudre seul, et d'autre part dans le substrat dense isolé *(Figure IV-2.a)*. Cette décomposition est d'autant plus nécessaire que les modèles optiques applicables aux milieux homogènes (substrat dense et liquide) et au milieu hétérogène (milieu granulaire) diffèrent *(§III.1)*.

Pour caractériser optiquement le milieu granulaire, sont utilisés d'une part des **compacts de poudre** ayant une épaisseur d'environ 4-5 mm *(Figure IV-2.b)*. Ils permettent des mesures sans support et possèdent le plus souvent une épaisseur considérée comme semi-infinie, *i.e.* qui ne transmet pas le rayonnement incident. D'autre part, sont utilisés des **lits de poudre dits « autoportés » ou « suspendus » déposés sur un substrat en verre** (saphir ou verre BK7 - *Figure IV-2.c*).Ils permettent de mesurer un signal transmis et de se rapprocher des conditions de fabrication avec toutefois une porosité au sein du LDP plus élevée que les compacts de poudre et une épaisseur de poudre amoindrie. En parallèle, ont été entreprises des mesures sur **fond blanc et fond noir** (dont les réflectances R_g ont été préalablement mesurées), de manière à valider les coefficients de diffusion S et d'absorption K *(Figure IV-2.d)* des lits de poudre. Par la suite, sont mesurées les valeurs de l'ensemble *(Figure IV-2.e)* constitué du **lit de poudre déposé sur un substrat de même nature** (et dont la réflectance R_g a été préalablement mesurée). Les mesures sont réalisées par irradiation en un point fixe statique (0D), en cours de fabrication sur des lignes de fusion (1D) et enfin en cours de fabrication sur des draps (2D).

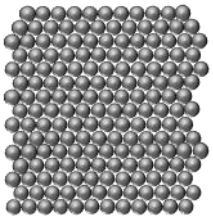
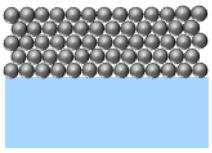
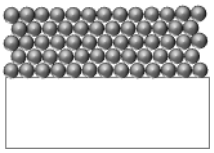
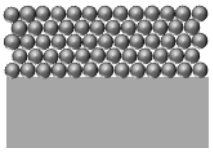
					
	a) Substrat dense	b) Compact de poudre ou LDP épais – épaisseur semi-infinie	c) Lit de poudre sur verre BK7- autoporté	d) Lit de poudre sur substrat noir/blanc	e) Lit de poudre sur substrat dense – configuration LBM
Valeurs mesurées	$\begin{cases} R_{h,s} \\ Tr_{h,s} \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,p} \\ Tr_{h,p} \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,p} \\ Tr_{h,p} \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,ps} \\ R_g \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,ps} \\ Tr_{h,ps} \end{cases}$
Valeurs corrigées	$\begin{cases} R^{KM} \\ Tr^{KM} \end{cases}$	$\begin{cases} R^{KM} \\ Tr^{KM} \end{cases}$ ou $\begin{cases} R_{\infty}^{KM} \\ si\ Tr_{h,p} = 0 \end{cases}$	$\begin{cases} R^{KM} \\ Tr^{KM} \end{cases}$ ou $\begin{cases} R_{\infty}^{KM} \\ si\ Tr_{h,p} = 0 \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,ps} = R_g^{KM} \\ si\ R_g = 1\ (blanc) \end{cases}$ ou $\begin{cases} R_{h,ps} = R^{KM} \\ si\ R_g = 0\ (noir) \end{cases}$	$\begin{cases} R_{h,ps} = R_g^{KM} \\ R_g = R_{h,s} \end{cases}$

Figure IV-2 : Les différents types de mesures optiques réalisées, grandeurs mesurées et corrigées pour les échantillons hétérogènes

La mesure des propriétés radiatives sur un substrat en verre *(Figure IV-2.c)* a été déclinée en « manip coin ». Cette technique, déjà utilisée par (Vinson 2015) consiste à déposer une épaisseur de poudre Δz_{poudre} variable sur un substrat afin de faire varier directement ce paramètre procédé important pour la construction, en une seule manipulation, ce qui permet de gagner un temps considérable. Pour les mesures de propriétés radiatives, cette « manip coin » est d'autant plus intéressante car il sera possible de suivre l'évolution de R_h et Tr_h avec la variation de l'épaisseur de poudre, ce qui peut inclure le cas opaque ($Tr_{h,p}$ =0 à Δz_{poudre} élevé) et le cas à épaisseur de poudre très faible *(Figure IV-3)*. Ceci pourra par ailleurs permettre la mesure des propriétés radiatives du liquide directement au contact du verre. Les LDP déposés varient de 1 à 6 mm en moyenne afin de limiter la part de signal transmis et de ne pas endommager la sphère de transmission et son détecteur.

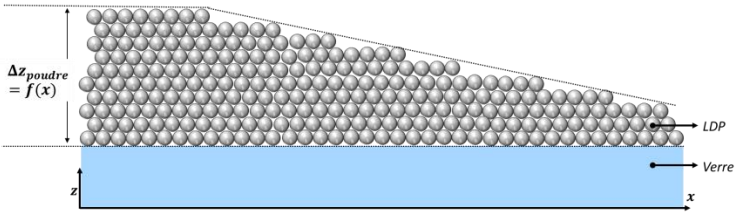


Figure IV-3 : Schématisation de la « manip coin » sur substrat en verre

On note également qu'une « manip coin » a été mise en place pour le cas du substrat seul *(Figure IV-2.a)*. Dans ce cas, c'est l'épaisseur du substrat δ_{sub} qui varie.

Le traitement des signaux des **milieux hétérogènes** (lit ou compact de poudre), sera effectué selon les combinaisons dérivées de la méthode de résolution à deux flux de **Kubelka-Munk** décrites en *Figure III.43*, selon la combinaison de R_{∞}^{KM} (d'une épaisseur semi-infinie) avec :

- R_g^{KM} et $R_g = R_{h,s}$ du système {LDP+susbtrat}
- R_g^{KM} et $R_g = 1$ du système {LDP+fond blanc}
- R^{KM} $(R_g = 0)$ des systèmes {LDP+verre} ou {LDP+fond noir}
- Tr^{KM} du système {LDP+verre}

Ces combinaisons permettent le calcul des coefficients K, S et α_{ext} associés à ces systèmes hétérogènes. Il est possible d'appliquer ces modèles au substrat dense diffusant comme c'est le cas des céramiques oxydes à la longueur d'onde de travail.
Les **milieux homogènes** (substrat dense et liquide) sont traités par les lois de l'**optique géométrique** mettant en relation R_h et Tr_h. La grandeur descriptive de ces systèmes est le coefficient d'absorption α_{abs}. Néanmoins, il est possible d'assimiler un milieu hétérogène à un système homogène équivalent *(§III.1.3.3)*. Il sera alors possible d'évaluer l'écart entre les modèles homogène et hétérogène.

IV.1.3 Plan d'expériences

Les mesures optiques ont été réalisées premièrement pour les **céramiques oxydes dites « pures »** soit dans leur état de réception et non mélangées à des absorbants *(Tableau IV-1)*.

Tableau IV-1 : Liste des échantillons en céramique « pure » réalisés pour l'étude optique

Nature	Susbtrat dense	Compact de poudre : milieu granulaire semi-infini	Lit de poudre (sur verre) : milieu granulaire semi-infini et/ou autoporté	Système mixte : lit de poudre sur substrat
Al_2O_3 pure	**SA** δ_{sub} =2,3 – 4,2 mm	**CA** $\begin{cases}\delta_{sub} = 3{,}7mm \\ fv_p = 65{,}3\%\end{cases}$ **CA** $\begin{cases}\delta_{sub} = 5{,}0\ mm \\ fv_p = 64{,}3\%\end{cases}$ **CA fritté** $\begin{cases}\delta_{sub} = 5{,}0\ mm \\ fv_p = 77{,}5\%\end{cases}$	**PA** $\begin{cases}\Delta z_{poudre} = 0{,}9 - 2{,}8\ mm \\ fv_p = 42{,}4\%\end{cases}$	**PA_SA** $\begin{cases}\Delta z_{poudre} = 96\ \mu m \\ \delta_{sub} = 4{,}25\ mm\end{cases}$
Al_2O_3-ZrO_2 Eutectique 60-40	**SAZ** δ_{sub} =2 – 3,7 mm	**CAZ** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}2\ mm \\ fv_p = 66{,}4\%\end{cases}$ **CAZ** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}3\ mm \\ fv_p = 65{,}3\%\end{cases}$ **CAZ** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}4\ mm \\ fv_p = 63{,}9\%\end{cases}$ **CAZ fritté** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}8\ mm \\ fv_p = 83{,}8\%\end{cases}$	**PAZ** $\begin{cases}\Delta z_{poudre} = 3{,}7 - 5{,}8\ mm \\ fv_p = 44{,}4\%\end{cases}$	**PAZ_SAZ** $\begin{cases}\Delta z_{poudre} = 95\ \mu m \\ \delta_{sub} = 3{,}75\ mm\end{cases}$
Al_2O_3-ZrO_2 ≈80-20	-	-	***CZTA*_20** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}7\ mm \\ d_{50} = 20\mu m \\ fv_p = 65{,}5\%\end{cases}$ ***CZTA*_50** $\begin{cases}\delta_{sub} = 4{,}6\ mm \\ d_{50} = 50\mu m \\ fv_p = 63{,}5\%\end{cases}$	-

Puis, dans un second temps, les mesures ont été réalisées pour les **mélanges de ces céramiques avec les absorbants** éphémères (carbone et SiC-β) et permanent (Inconel 625) pour différentes teneurs *(Tableau IV-2 et Tableau IV-3)*.

Enfin, des mesures complémentaires ont été effectuées sur les **métaux** Haynes 188 et Inconel 625, à savoir des matériaux absorbants à la longueur d'onde du laser utilisé. Elles sont utiles à la compréhension de l'interaction laser-matière particulière des céramiques oxydes *(Tableau IV-3)*.

Tableau IV-2 : Liste des échantillons en céramique mélangée à des absorbants réalisés pour l'étude optique

Nature	Lit de poudre (sur verre) : milieu granulaire semi-infini et/ou autoporté	Système mixte : lit de poudre sur substrat
Mélange Al_2O_3 + 0,1%m.C	**PA+0,1C** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 1{,}4 - 3\ mm \\ fv_p \approx 38{,}2\% \end{cases}$	**PA+0,1C_SA** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 58\ \mu m \\ \delta_{sub} = 3{,}65\ mm \end{cases}$
Mélange Al_2O_3 + 0,5%m.C	-	**PA+0,5C_SA** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 60\ \mu m \\ \delta_{sub} = 4{,}1\ mm \end{cases}$
Mélange Al_2O_3 + 0,1%m. SiC-β	**PA+0,1SiC** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 1{,}3 - 3{,}1\ mm \\ fv_p \approx 39{,}2\% \end{cases}$	**PA+0,1SiC_SA** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 92\ \mu m \\ \delta_{sub} = 4{,}0\ mm \end{cases}$ **PA+0,1SiC_SA** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 108\ \mu m \\ \delta_{sub} = 4{,}1\ mm \end{cases}$
Mélange Al_2O_3 + 0,5%m. SiC-β	-	**PA+0,5SiC_SA** $\{\Delta z_{poudre} = 69\ \mu m$
Mélange Al_2O_3 + 1%m. SiC-β	-	**PA+1SiC_SA** $\{\Delta z_{poudre} = 47\ \mu m$
Mélange Al_2O_3 + C à 2% de liant délianté	**PA_EMSE2** $\{\Delta z_{poudre} = 0{,}9 - 2{,}7\ mm$	**PA_EMSE2_SA** $\{\Delta z_{poudre} = 61\ \mu m$

Tableau IV-3 : Liste des échantillons en céramique-métal et en métal réalisés pour l'étude optique

Nature	Substrat	Compact de poudre : milieu granulaire semi-infini	Lit de poudre (sur verre) : milieu granulaire semi-infini et/ou autoporté	Système mixte : lit de poudre sur substrat
Mélange Al_2O_3 + 10%v. (26%m.) Inconel 625		**CA+INCO 9010** $\begin{cases} \delta_{sub} = 4{,}6\ mm \\ fv_p = 60{,}9\ \% \end{cases}$	**PA+INCO** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 1{,}6 - 3{,}2 mm \\ fv_p \approx 41{,}6\% \end{cases}$	**PA+INCO_SA+INCO** $\begin{cases} \Delta z_{poudre} = 119\ \mu m \\ \delta_{sub} = 4{,}6\ mm \end{cases}$
Mélange Al_2O_3 + 32%v. (50%m.) Inconel 625		**CA+INCO 6832** $\begin{cases} \delta_{sub} = 4{,}1\ mm \\ fv_p = 72{,}8\% \end{cases}$	-	-
Mélange Al_2O_3 + 65%v. (70%m.) Inconel 625		**CA+INCO 3565** $\begin{cases} \delta_{sub} = 4{,}0\ mm \\ fv_p = 68{,}4\% \end{cases}$	-	-
INCONEL 625		**C_INCO** $\begin{cases} \delta_{sub} = 5{,}2\ mm \\ fv_p = 72{,}6\% \end{cases}$	-	-
HAYNES 188	**SHA188 sablé** $\delta_{sub} \approx 5\ mm$ **SHA188_poli miroir** $\delta_{sub} \approx 5\ mm$	**C_HA188** $\begin{cases} \delta_{sub} = 4{,}7\ mm \\ fv_p = 76{,}1\% \end{cases}$	-	**PHA188_SHA188** $\{\Delta z_{poudre} = 119\ \mu m$

Des pointés laser (configuration statique 0D) ont été réalisés pour un temps d'interaction $t_{int} = 2\ s$ et des puissances allant de 2 à 30 W pour la plupart des systèmes, et jusqu'à 154 W pour le substrat d'alumine {SA} qui ne fond que difficilement. Des lignes de fusion (configuration dynamique 1D) ont également été réalisées avec différentes puissances laser, vitesses de balayage et énergies linéiques résumées dans le *Tableau IV-4*. Des mesures sur draps (configuration 2D) ont étés menées sur les systèmes les plus stables, à savoir les plus intéressants pour la construction de pièces : {PAZ_SAZ} et {PA+0,1C_SA}. Les essais ont été réalisés pour deux puissances P42 et P84 à une vitesse V100 et pour les taux de recouvrement τ_r = {0,2 ; 0,3 ; 0.4 ; 0,8}. La stratégie de balayage employée a consisté à réaliser des allers-retours entre chaque monocordon.

Tableau IV-4 : Plan d'expérience établi pour les mesures dynamiques. Variation de la puissance laser P en Watt, de la vitesse de balayage V en mm.s^{-1} et de l'énergie linéique exprimée en J.mm^{-1}

Vitesse / Puissance	V50	V100	V200	V300	V400	V500	V600	V800
P42	0,84	0,42 2D	0,21	0,14	0,105	0,084	0,07	0,0525
P63		0,63	0,315	0,21	0,1575	0,126	0,105	0,07875
P84	1,68	0,84 2D	0,42	0,28	0,21	0,168	0,14	0,105
P105		1,05	0,525		0,2625	0,21	0,175	
P126	2,52		0,63	0,42	0,315	0,252		0,1575
P168		1,68	0,84	0,56	0,42			0,21

Pour chacune des configurations étudiées (0D, 1D et 2D), on distingue l'état non fondu (solide), l'état fondu (noté « f » et correspondant au liquide reposant sur du solide sous-jacent), le keyhole (noté « k ») et dans le cas de la fusion sur un substrat en, le liquide seul (dernière goutte de liquide reposant sur le verre sous-jacent avant évaporation complète). Les états non fondus devraient être équivalents pour toutes les configurations. De plus, le premier cordon du drap 2D est équivalent au monocordon 1D pour les mêmes paramètres P et V *(Figure IV-4)*, mais également pour tous les monocordons du drap 2D lorsque le taux de recouvrement est nul ($\tau_r = 0$).

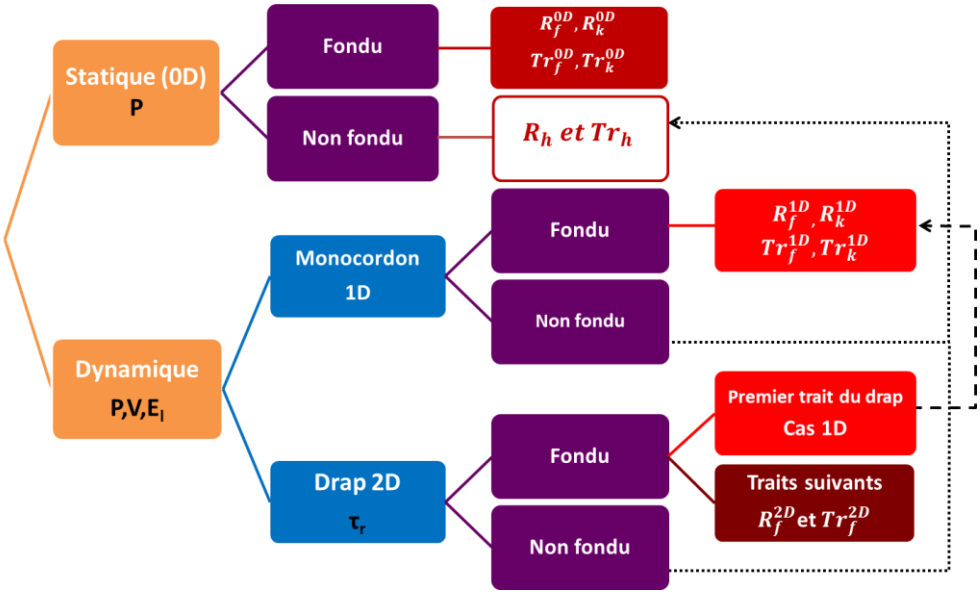


Figure IV-4 : Configurations possibles et grandeurs mesurées dans chacun des cas

IV.1.4 Etude préliminaire

Des essais sur un échantillon aux propriétés optiques connues a permis de tester la configuration de mesure et de s'assurer de sa validité. Le *Tableau IV-5* regroupe les résultats expérimentaux obtenus et les valeurs théoriques pour la mesure des substrats en verre BK7. Les valeurs mesurées semblent cohérentes avec les valeurs théoriques. On note par ailleurs que le coefficient d'absorption augmente très légèrement pour le verre sablé, suite au phénomène de multi-réflexion. Aussi, l'effet de la rugosité du verre BK7 à la longueur d'onde de l'étude reste négligeable. Les substrats en verre sablé pourront donc être utilisés pour déposer les lits de poudre et permettre ainsi une meilleure accroche que sur le substrat en verre lisse.

Tableau IV-5 : Résultats des mesures optiques sur verre BK7

	R_h	Tr_h	R	Tr	A	α_{abs} (mm^{-1})	κ_e	δ_{abs} (mm)	n
VALEURS EXPÉRIMENTALES									
Verre (δ=4,15 mm)	0,075 ±0,004	0,916 ±0,026	0,040	0,987	≈0	**3,2.10^{-3}**	**2,7.10^{-7}**	**316**	1,50
Verre sablé (δ=4,12mm)	0,094 ±0,003	0,761 ±0,025	0,057	0,854	0,089	**3,8.10^{-2}**	**3,3.10^{-6}**	**26**	1,70
VALEURS THÉORIQUES									
Verre (δ=4,15 mm) [Edmund optics®, (Victoria 2014)]	-	-	0,040	0,960	0,00	**3,0.10^{-3}**	**2,5.10^{-7}**	**333**	1,50

IV.2 Matériaux céramiques de réception

IV.2.1 Formation d'un bain statique (0D)

IV.2.1.1 Régimes d'interaction statique

Le suivi de la fusion laser en un point statique (0D) permet avant tout de définir de manière non équivoque les propriétés optiques des différents états de la matière. On suit alors l'évolution de R_h, Tr_h et après calcul de A_h en fonction du temps d'interaction, de la montée en température T, et ceci pour différentes puissances laser P. Quelle que soit la configuration des systèmes étudiés, l'interaction laser-matière peut évoluer selon **5 régimes** *(Figure IV-5)*, caractérisés par des propriétés radiatives spécifiques. Ces régimes sont semblables à ceux définis en découpe laser *(Figure III-28)*.

Les différents régimes sont identifiés pour les céramiques de réception à l'état dense ou granulaire *(Figure IV-6)*. Leurs durées respectives dépendent de l'échauffement et donc de la puissance laser. La variation de l'absorbance entre les 3 premiers régimes est nette *(Figure IV-7)*. La même tendance est relevée pour les matériaux métalliques à l'état dense et granulaire *(Annexe D-6 et D-7)*. Ces observations sont similaires à celles de (Pierron, Sallamand, et Matteï 2007) en *(Figure III-25)*. On ne s'intéressera pas aux premières µs d'interaction, le signal étant trop dispersé avec des artéfacts de mesure comme le « premier pic ». L'interaction laser-matière se décompose donc suivant les régimes indiqués ci-dessous *(Figure IV-5)* :

- **Régime non fondu (1)** : les propriétés radiatives d'un échantillon sont fonction de son épaisseur, son état de surface et pour les lits de poudre de l'empilement granulaire. Le temps d'interaction au bout duquel il y a passage du régime (1) au régime (2) diminue lorsque la puissance P augmente car l'échauffement du matériau est plus rapide *(Figure IV-6)*. A faible P, il est possible de ne jamais atteindre le régime (2), *i.e.* la fusion. C'est le cas à 5W pour le système {PAZ_SAZ} et entre 2 et 8 W pour le compact de poudre {CZTA_20}. Les valeurs des propriétés radiatives pourraient varier avec l'augmentation de la température du matériau même à l'état non fondu.

- **Fusion (2)** : l'absorbance augmente progressivement avec l'apparition du liquide, sa fraction volumique et le début de sa vaporisation. La présence de liquide diminue la réflexion et favorise l'absorbance du système : la fusion diminue la porosité du LDP et limite la multi-réflexion en plus de modifier les propriétés d'absorption intrinsèque du matériau. Ce régime transitoire (2) est d'autant plus court que P augmente (échauffement plus rapide). A forte puissance, il peut même être inexistant, ce qui s'apparente à un « saut » d'absorbance entre les régimes (1) et (3) (cas à 30W de la *Figure IV-6.b*).

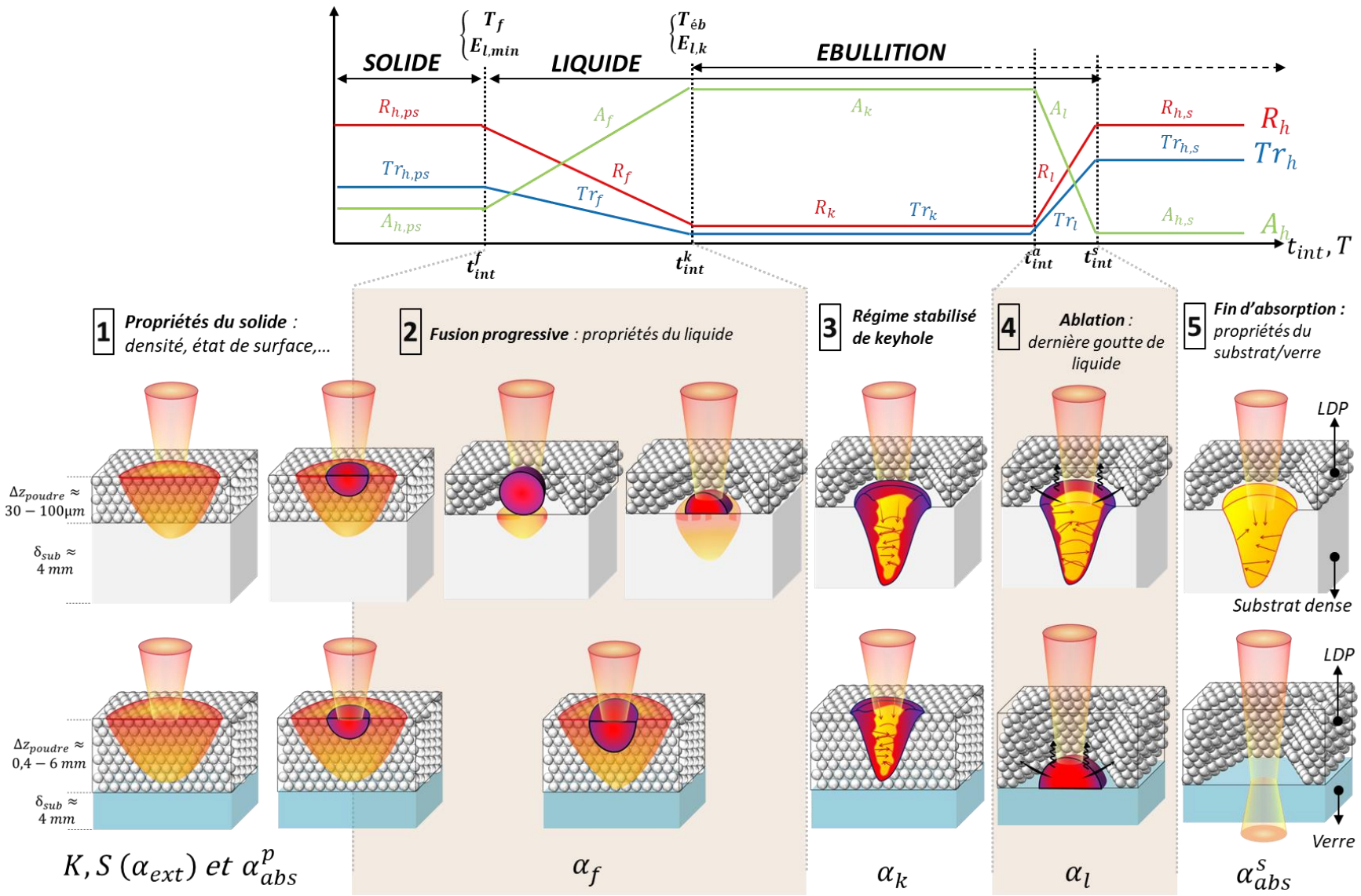
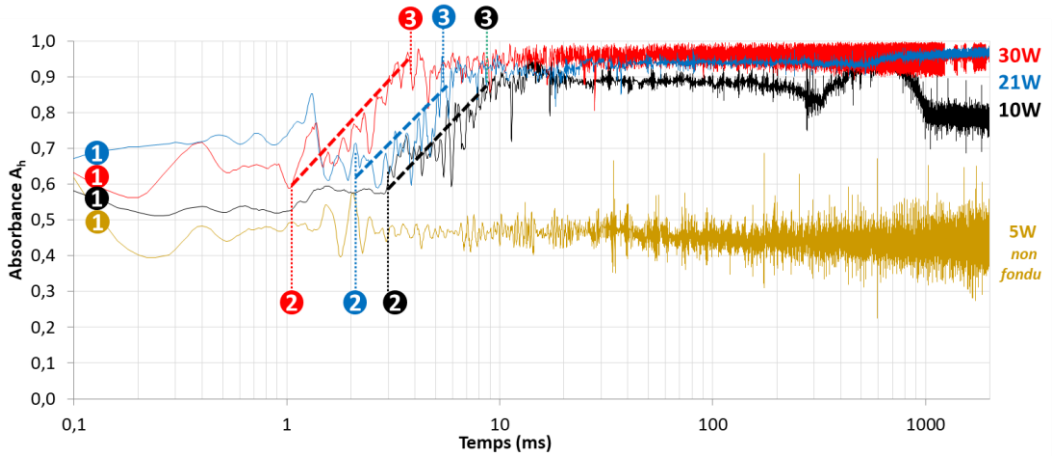
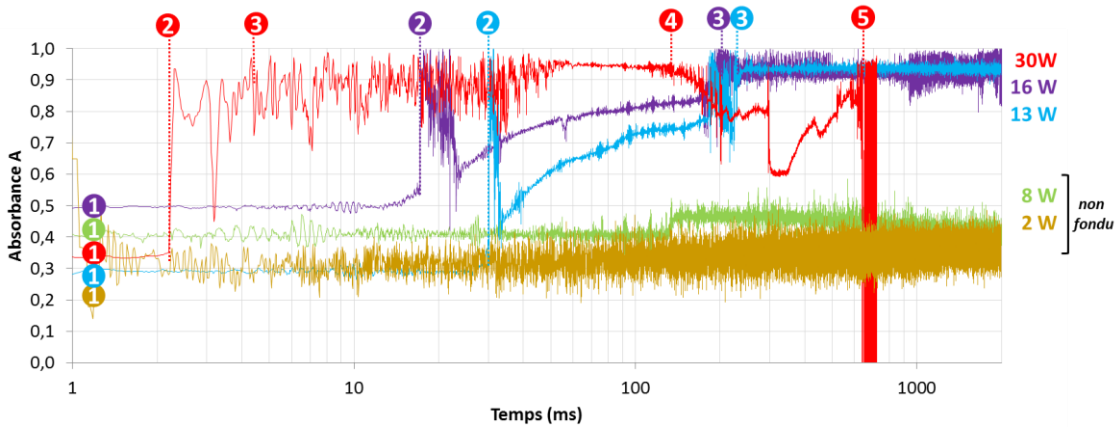


Figure IV-5: Variation relative de R_h, Tr_h et A_h en fonction du temps d'interaction et de la température T puis schématisation des différents régimes d'interaction laser-{LDP+substrat} et laser-{LDP+verre} ainsi que les propriétés optiques associées

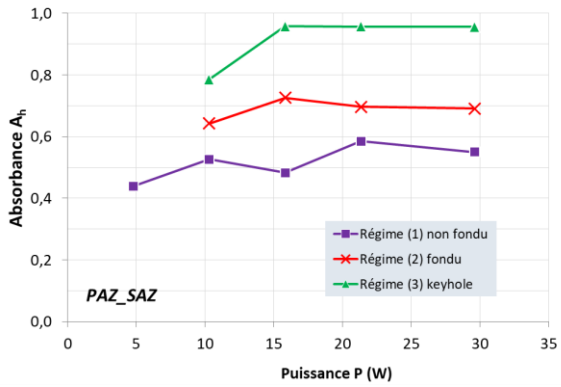


a)

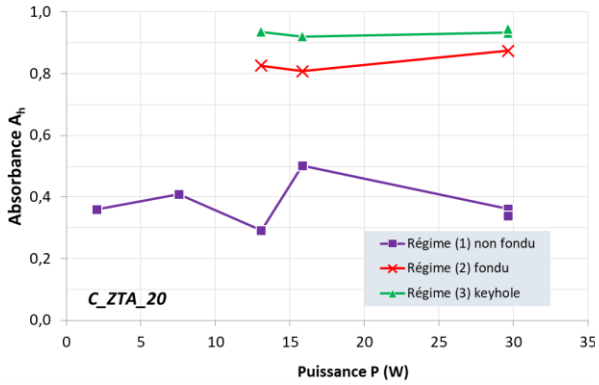


b)

Figure IV-6 : Variation de l'absorbance A_h au cours du temps et identification des régimes d'interaction laser-matière, pour a) {PAZ_SAZ} avec un Δz_{poudre} = 95 µm (ici Tr_h est négligeable donc A_h =1-R_h) et b) compact {CZTA_20} d'épaisseur δ_{sub} =4,7 mm (en Annexe D-1 se trouvent les tendances correspondantes à R_h et Tr_h)



a)



b)

Figure IV-7 : Variation de l'absorbance A_h selon les différents régimes pour a) {PAZ_SAZ} avec un Δz_{poudre} = 95 µm et b) compact {CZTA_20} d'épaisseur δ_{sub} =4,7 mm

- **Régime de keyhole (3)** : l'interaction laser-matière atteint les conditions requises pour la formation d'un capillaire de vapeur dans lequel le rayonnement reste piégé. Les propriétés radiatives R_h et Tr_h sont alors minimales et l'absorbance A_h est maximale. La forte absorption est induite par les multi-réflexions sur la paroi du capillaire et par la vapeur métallique comme décrit au *Chapitre I*. Dans certaines conditions, on peut identifier des oscillations propres à la déstabilisation du régime (3),

surtout dans le cas des matériaux métalliques pour lesquels les vapeurs sont plus absorbantes que celles des matériaux céramiques à la longueur d'onde de travail *(Annexe D –6.a)*. La durée de ce régime (3) est plus facilement identifiable pour les mélanges avec absorbants présentés au *§IV.3* par la transition entre les régimes (3)→(4). Cette durée augmente avec P, ce qui pourrait être lié à l'augmentation du volume de bain notamment avec la profondeur du capillaire de vapeur.

- **Ablation (4) :** l'augmentation de la température du liquide provoque l'évaporation marquée et l'éjection de liquide. Dans le cas du dépôt du LDP sur verre, on mesure alors les propriétés radiatives du liquide seul restant.

- **Interaction du rayonnement laser avec le substrat résiduel non fondu (5)** : l'ablation a conduit dans cette étude à trois cas de figure :
  - ***(i)*** **perçage complet** du substrat ou du compact de poudre : cas du 30 W sur la *Figure IV-6.b,* pour lequel A_h=0 correspondant à la consommation totale de l'épaisseur de l'échantillon.
  - ***(ii)*** interaction directe avec le **substrat en verre** : cas du Δz_{poudre} = 3,7 mm - *Figure IV-8*. Signalons néanmoins que dans ce cas, nous avons remarqué la fusion partielle du substrat en verre.
  - ***(iii)*** **fin du régime d'absorption** : dissipation du rayonnement dans le substrat solide résiduel, sans fusion. C'est le cas lors d'un dépôt de poudre absorbant sur un substrat transparent. Une fois l'absorbant consommé, après avoir permis la formation d'un bain, est atteinte une énergie critique (proportionnelle à P) au-delà de laquelle la fusion n'est plus entretenue *(§IV.3)*.

  Dans les cas (ii) et (iii), les valeurs mesurées correspondent donc respectivement aux propriétés optiques du verre ou du substrat massif résiduel.

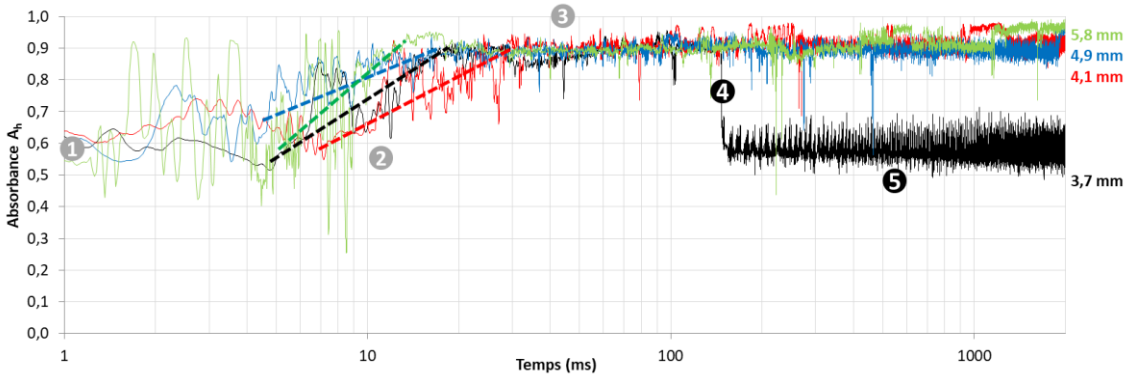


Figure IV-8 : Suivi en statique de l'absorbance A_h au cours du temps pour un LDP d'alumine-zircone déposé sur un substrat en verre {PAZ}, pour différentes épaisseurs de poudre Δz_{poudre}. (Tr_h est négligeable jusqu'au régime 4 – voir Annexe D-2 pour R_h et Tr_h)

Les régimes (4) et (5) ne sont que rarement observés en statique pour les systèmes relatifs aux matériaux céramiques à l'état de réception. C'est principalement le cas des LDP de faibles épaisseurs déposés sur le substrat en verre *(Figure IV-8)*. Le substrat d'alumine de réception {SA} est transparent au rayonnement laser et ne fond pas, même lorsqu'il est exposé à une forte intensité laser. Le système dit « pur » {PA_SA} ne fond que très difficilement (aux très fortes puissances ou suite à des contaminations - *Figure IV-9*).

Sur la *Figure IV-10* ci-dessous, on peut remarquer l'évolution des dimensions des bains formés par irradiation d'un compact de poudre d'alumine {CA}, de leur zone affectée thermiquement (*ZAT*) selon la puissance affichée. Le cas non fondu *(Figure IV-10.a)* présente une ZAT, probablement frittée.

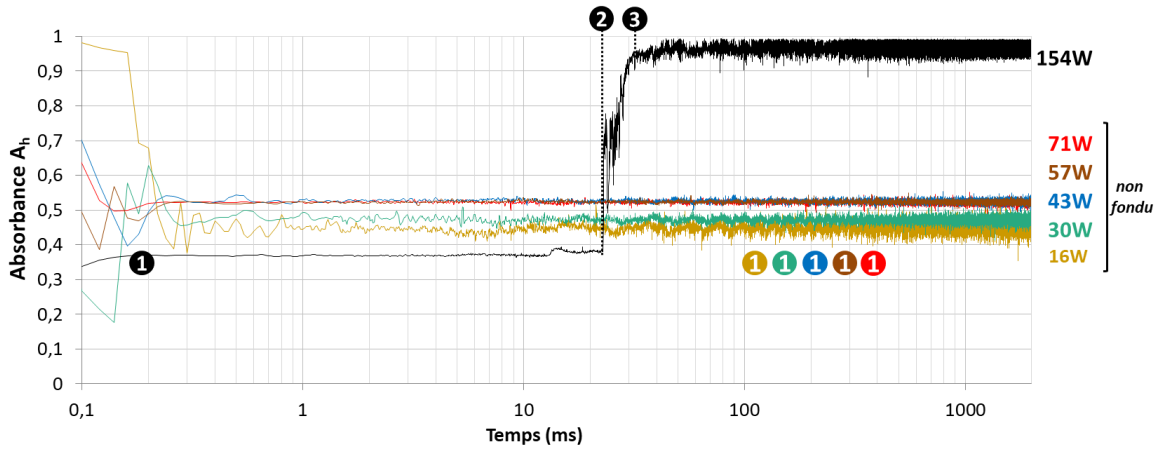
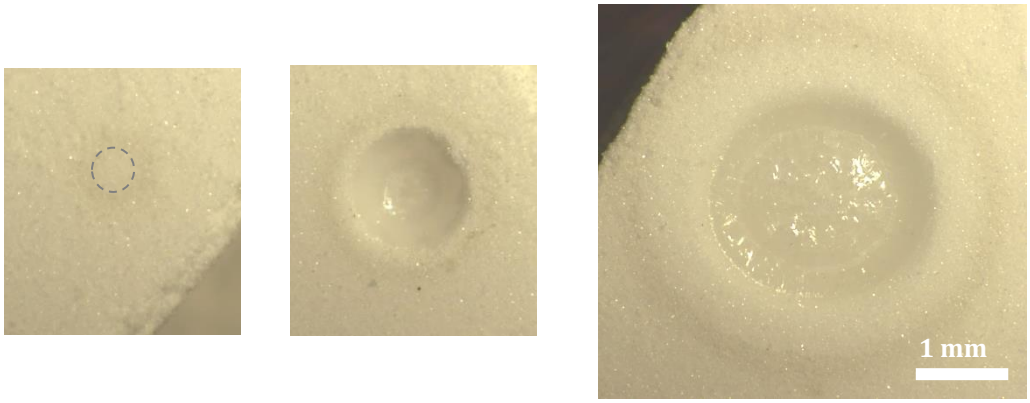


Figure IV-9 : Suivi en statique de l'absorbance A_h au cours du temps pour un LDP d'alumine déposé sur un substrat en alumine de réception {PA_SA} avec un Δz_{poudre} = 96 µm (R_h et Tr_h diminuent fortement au régime 3– voir Annexe D-3)



a) b) c)

Figure IV-10 : Bains issus des tirs statiques d'une durée de 2s sur {CA} d'épaisseur δ_{sub} = 5,1 mm a) 8W b) 16W c) 30W

IV.2.1.2 Equivalence statique-dynamique

A diamètre de faisceau Φ_L constant et à temps d'interaction t_{int} équivalent, il est possible de comparer les essais dynamiques (1D) avec les essais statiques (0D) de manière à redessiner au cours du temps l'évolution des bains en statique en évitant la multiplicité des essais. En effet, un bain correspondant à une ligne de fusion 1D de paramètres $\left(P_{1D}\,;V_{1D}=\frac{\Phi_L}{t_{int}}\,;\,E_{l,1D}\right)$ est associé à un point temporel unique de l'essai statique de paramètres $(P_{0D};\,t_{int})$. Cette équivalence est vraie pour le temps d'interaction t_{int} calculé qui donne une équivalence d'irradiance I entre la ligne de fusion (1D) et le tir statique (0D) :

On pose : $$I_{0D}=I_{1D}$$

Ce qui équivaut à : $$\frac{4\,P_{0D}}{\pi\Phi_L^2}=\frac{4\,E_{l,1D}}{\pi\Phi_L t_{int}}$$ En simplifiant : $$\frac{P_{0D}}{\Phi_L}=\frac{E_{l,1D}}{t_{int}}$$

Alors : $$\boldsymbol{t_{int}=\frac{E_{l,1D}.\Phi_L}{P_{0D}}=\frac{P_{1D}.\Phi_L}{V_{1D}.P_{0D}}} \qquad \text{IV.3}$$

Ainsi, il est possible de faire correspondre les bains d'une ligne de fusion 1D à un temps d'interaction précis du tir statique 0D *(Figure IV-11)*. Cette superposition permet de valider les correspondances des domaines présentés au paragraphe précédent. Les bornes inférieures et supérieures (P_{0D},t_{int}) du régime

(2) identifiées sur un tir stationnaire (0D) permettent de calculer via la formule ci-dessus, les valeurs limites d'énergie linéique $E_{l,1D}$ définissant le domaine de fabrication 1D stable, pour Φ_L et Δz_{poudre} fixés. Par exemple, pour le système {PAZ_SAZ} à Δz_{poudre} = 96 µm et $\Phi_L = 70\ \mu m$, les couples (P_{0D}, t_{int}) correspondant aux bains (B) de la *Figure IV-11* sont appropriés pour une construction stable. En se reportant aux bornes du régime (2), il est possible de définir un domaine de stabilité 1D, pour $P_{0D} = 10W$:

$$(P_{0D} = 10W;\ t_{int}^{f} = 3\ ms < t_{int} < t_{int}^{k} = 9\ ms; E_{l,min} = 0{,}43\ J.mm^{-1} < E_{l,1D} < E_{l,k} = 1{,}29\ J.mm^{-1})$$

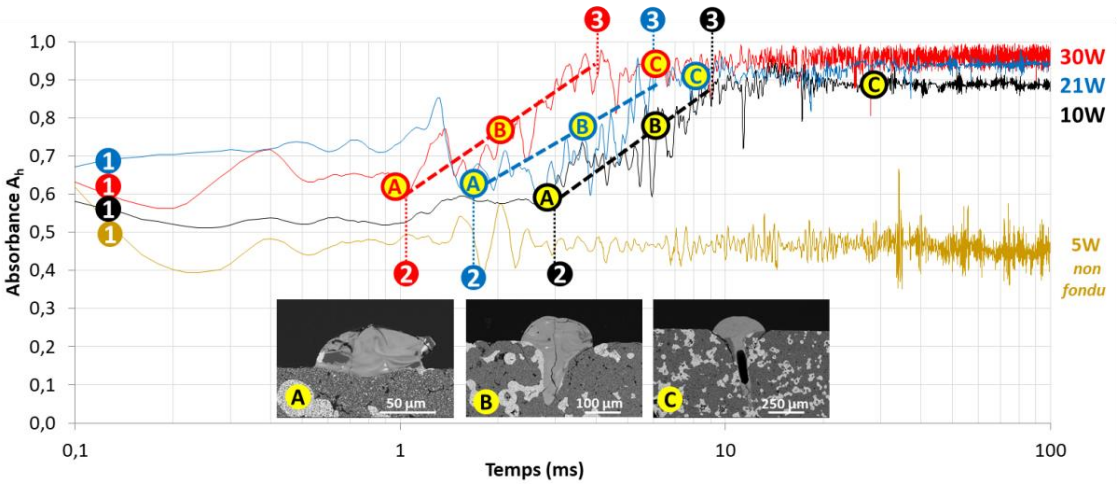


Figure IV-11 : Suivi au cours du temps de l'absorbance du système {PAZ_SAZ} à Δz_{poudre} = 95 µm pour différentes puissances et correspondance des coupes de lignes de fusion 1D : (A) amorce de fusion (B) fusion (C) keyhole

L'identification des régimes d'interaction laser-matière pour les différentes puissances passe par la détermination des temps d'interaction t_{int}^{f} et t_{int}^{k} correspondant à l'initiation des régimes de fusion (2) et de keyhole (3) respectivement, et de la fenêtre temporelle de fusion hors keyhole $\Delta t_{int}^{f} = t_{int}^{k} - t_{int}^{f}$. Ces valeurs permettent le calcul des énergies linéiques limites $E_{l,min}$ *et* $E_{l,k}$ *(Tableau IV-6)*. On remarque que la fusion et le keyhole s'amorcent d'autant plus rapidement que la puissance est forte. $E_{l,min}$ semble quasi-indépendante de la puissance P. La fenêtre de fusion hors keyhole est d'autant plus grande que la puissance est faible car l'échauffement du matériau y est moins rapide. Il est alors possible d'identifier un domaine de stabilité 1D à partir de la seule mesure radiative d'un tir statique. Cette étude pourrait également être appliquée pour l'étude de la variation de Φ_L. On note que dans le cas de l'alumine pure {PA_SA}, la valeur de $E_{l,min}$ est très élevée. Ceci s'explique par le caractère fortement non absorbant de ce système et par sa sensibilité à la présence d'impuretés internes ou externes au matériau qui influencent son échauffement *(Chapitre I)*. Expérimentalement, il a en effet été observé que le seuil d'énergie pour la fusion de l'alumine pure est très dispersé d'un échantillon à un autre.

Tableau IV-6 : Domaines de stabilité 1D pour les configurations de fabrication {LDP+Substrat} des échantillons purs avec Φ_L = 70 µm

			Valeurs mesurées		Valeurs calculées		
Echantillon	Δz_{poudre} (µm)	P_{0D} (W)	t_{int}^{f} (ms)	t_{int}^{k} (ms)	$\Delta t_{int}^{f} = t_{int}^{k} - t_{int}^{f}$ (ms)	$E_{l,min} = \frac{P_{0D}.t_{int}^{f}}{\Phi_L}$ ($J.mm^{-1}$)	$E_{l,k} = \frac{P_{0D}.t_{int}^{k}}{\Phi_L}$ ($J.mm^{-1}$)
PAZ_SAZ	95	10	3,0	9,0	6,0	0,44	1,33
		16	1,8	7,2	5,4	0,41	1,63
		21	1,5	6,0	4,3	0,52	1,82
		30	1,0	3,0	1,2	0,44	1,33
PA_SA	96	154	21,4	31,4	10,0	47,0	69,0

IV.2.1.3 Effet des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives

On s'intéresse majoritairement aux propriétés radiatives des régimes (1)-*non fondu* et (2)-*fondu hors keyhole*. On cherche d'une part à établir vis-à-vis de ces propriétés, l'effet de la puissance laser P, de l'épaisseur du lit de poudre Δz_{poudre} et d'autre part à comparer les propriétés des états non fondu/fondu/liquide et dense/granulaire pour les différentes céramiques de réception de l'étude. On rappelle que les valeurs radiatives mesurées et calculées pour le régime (2) correspondent à des valeurs moyennes entre le liquide et le solide, car la partie liquide repose soit sur le lit de poudre soit sur le substrat solide sous-jacent, selon la configuration étudiée.

a) Puissance

A l'encontre de la littérature (Samant, Du, et Dahotre 2009), la variation de la puissance P (et donc de la vitesse d'échauffement) ne semble que très peu affecter les propriétés radiatives du **régime (1)** en configuration de tir statique *(Figure IV-12)* Cet effet peut être lié à la semi-transparence des échantillons et à une dissipation rapide des calories. Il faudrait néanmoins approfondir et affiner les mesures car la dispersion rencontrée ne permet pas une analyse suffisamment précise de l'effet de P. Seul le système {*PAZ_SAZ*} légèrement impur, semble suivre une légère augmentation de l'absorbance avec un accroissement de la puissance. Concernant le **régime (2)** *(Figure IV-13)*, là encore les tendances sont peu claires. Les données semblent toutefois indiquer une augmentation de l'absorbance avec *P* notamment pour le substrat {SAZ}. Pour les matériaux métalliques, l'effet de la puissance ne présente toutefois pas de tendances plus claires *(Annexe D-7)*.

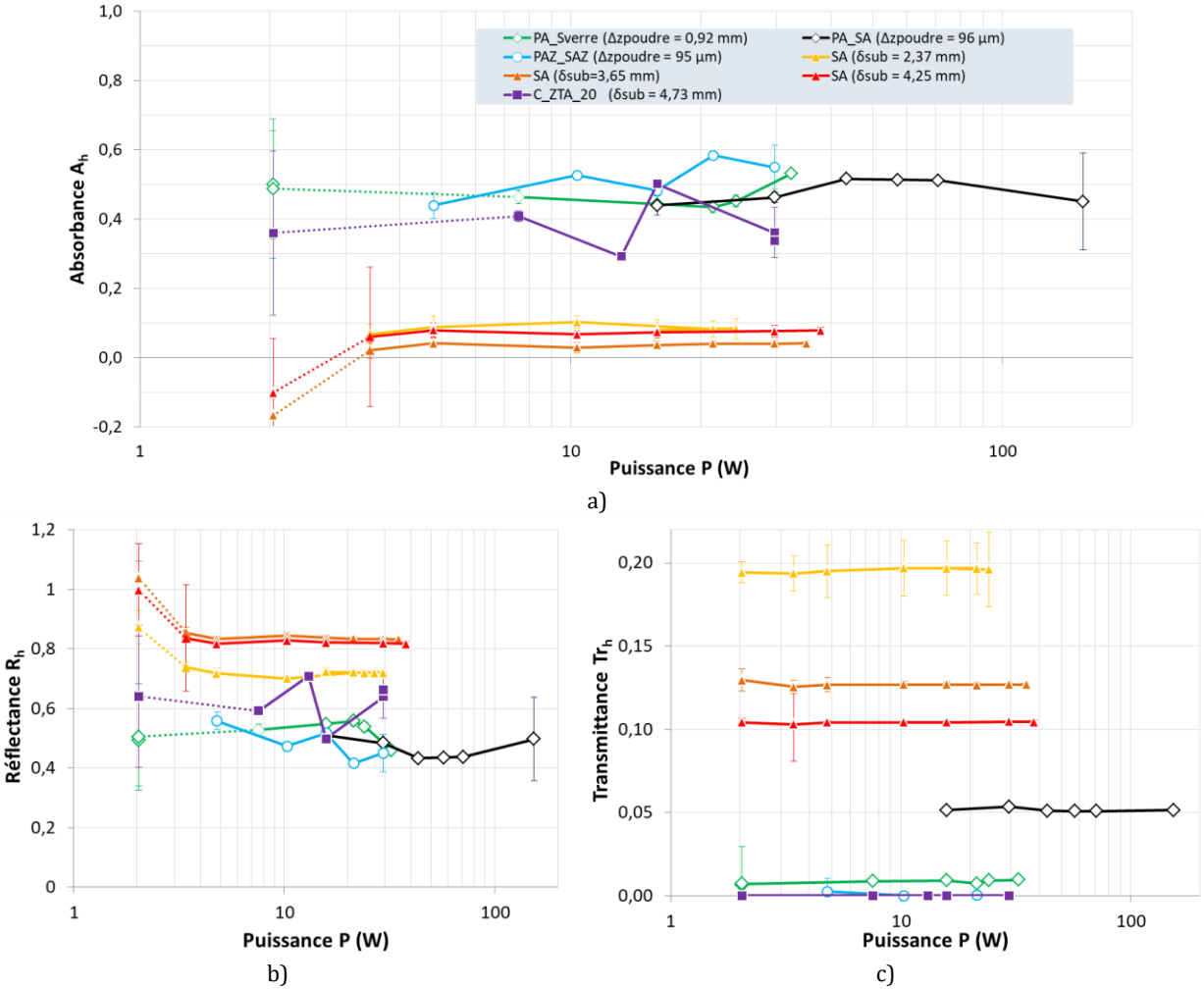


Figure IV-12: Propriétés radiatives des systèmes céramiques de réception en fonction de la puissance laser P en tir statique

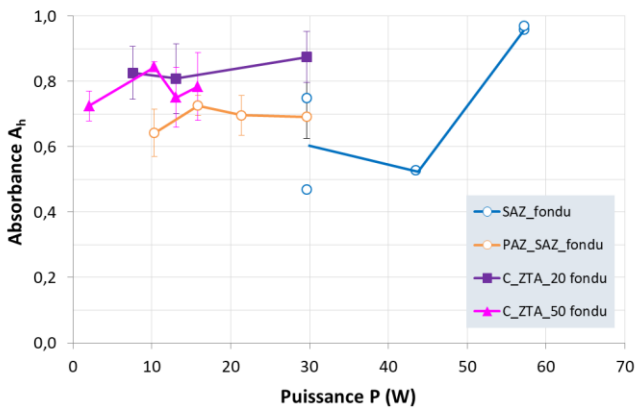


Figure IV-13: Absorbance des systèmes céramiques de réception à l'état fondu en fonction de la puissance laser P en tir statique

Les acquisitions à faible puissance (2 W) correspondent au domaine « instable » du laser, ce qui explique vraisemblablement les valeurs aberrantes et les grandes incertitudes sur les propriétés radiatives. Pour notre étude, P sera choisie hors de ce régime instable, soit $P > 2\ W$. De plus, on note que les incertitudes et la dispersion des valeurs sont plus importantes pour les mesures en réflexion *(Figure IV-12.b)*. Il faut souligner que les valeurs de réflectance mesurées peuvent être affectées par la géométrie du système de mesure et ce, malgré la calibration corrigeant les variations du signal selon la direction x *(§IV.1.1)*. La perte de flux réfléchi sortant par l'ouverture supérieure de la sphère de réflexion induit des variations du signal. Ces variations sont liées à l'angle d'incidence, à la rugosité de surface et à la porosité de l'échantillon. Cet effet n'est pas retrouvé pour le signal transmis *(Figure IV-12.c)* car il n'y a pas de possibilité de perte par une ouverture de la sphère intégrante. Une autre source d'erreur est le vieillissement du revêtement des sphères, et ce particulièrement pour la réflexion avec le dégagement de fumées et les éjections de particules solides ou liquides (éjectas) issues de l'irradiation du laser avec les LDP.

b) Nature (dense ou granulaire) et état (solide ou fondu) du milieu

La *Figure IV-14* regroupe l'ensemble des mesures radiatives effectuées en statique pour les systèmes alumine et alumine-zircone de réception. On observe les tendances suivantes en moyennant les valeurs mesurées :

$\boldsymbol{A_f > A_{h,ps} > A_{h,p} \geqslant A_{h,s}}$ et réciproquement $\boldsymbol{R_f < R_{h,ps} < R_{h,p} \leqslant R_{h,s}}$

L'état fondu absorbe le mieux, et le système mixte absorbe mieux que les systèmes isolés (substrat et LDP). Les valeurs de transmission sont négligeables devant la réflexion. C'est donc principalement la réflectance qui définit l'absorbance ici. De plus, les valeurs mesurées de $R_{h,s}$ sont proches de celles issues de la littérature pour les massifs [Pour rappel, $R_h(Al_2O_3) \approx 0{,}84 - 0{,}91$ *et* $R_h(ZrO_2) \approx 0{,}8 - 0{,}9$]. L'absorption de l'alumine-zircone est toujours égale ou supérieure à celle de l'alumine (R_h et Tr_h sont par contre inférieures) et ceci pour chaque type de milieu (dense ou granulaire), ce qui est cohérent avec le taux d'impuretés supérieur de l'$Al_2O_3 - ZrO_2$ *(Chapitre II)*.

La *Figure IV-15.a* propose une classification des propriétés radiatives à **l'état solide** de ces mesures. Si on s'intéresse au cas de l'**alumine** dont l'absorption intrinsèque est très faible, le substrat dense {SA} absorbe très peu le rayonnement incident. Il subit de fortes pertes par réflexion et transmission *(Figure IV-17.a)*. Toutefois, le lit de poudre {PA} piège le rayonnement et voit son absorbance augmenter par rapport au substrat dense ($\boldsymbol{A_{h,p} > A_{h,s}}$) *(Figure IV-17.c)*. Bien que la réflectance ne varie pas fortement entre ces deux échantillons ($R_{h,p} \leq R_{h,s}$), la transmittance est fortement réduite dans le LDP {PA} ($Tr_{h,p} < Tr_{h,s}$). Le cas de l'**alumine-zircone** est plus complexe. Au regard de la quantité d'impuretés, le substrat est intrinsèquement plus absorbant que le LDP *(Chapitre II)*. Or, les mesures radiatives indiquent que $A_{h,p} \approx A_{h,s}$ et $R_{h,p} \approx R_{h,s}$ mais on retrouve tout de même que $Tr_{h,p} < Tr_{h,s}$ comme pour l'alumine.

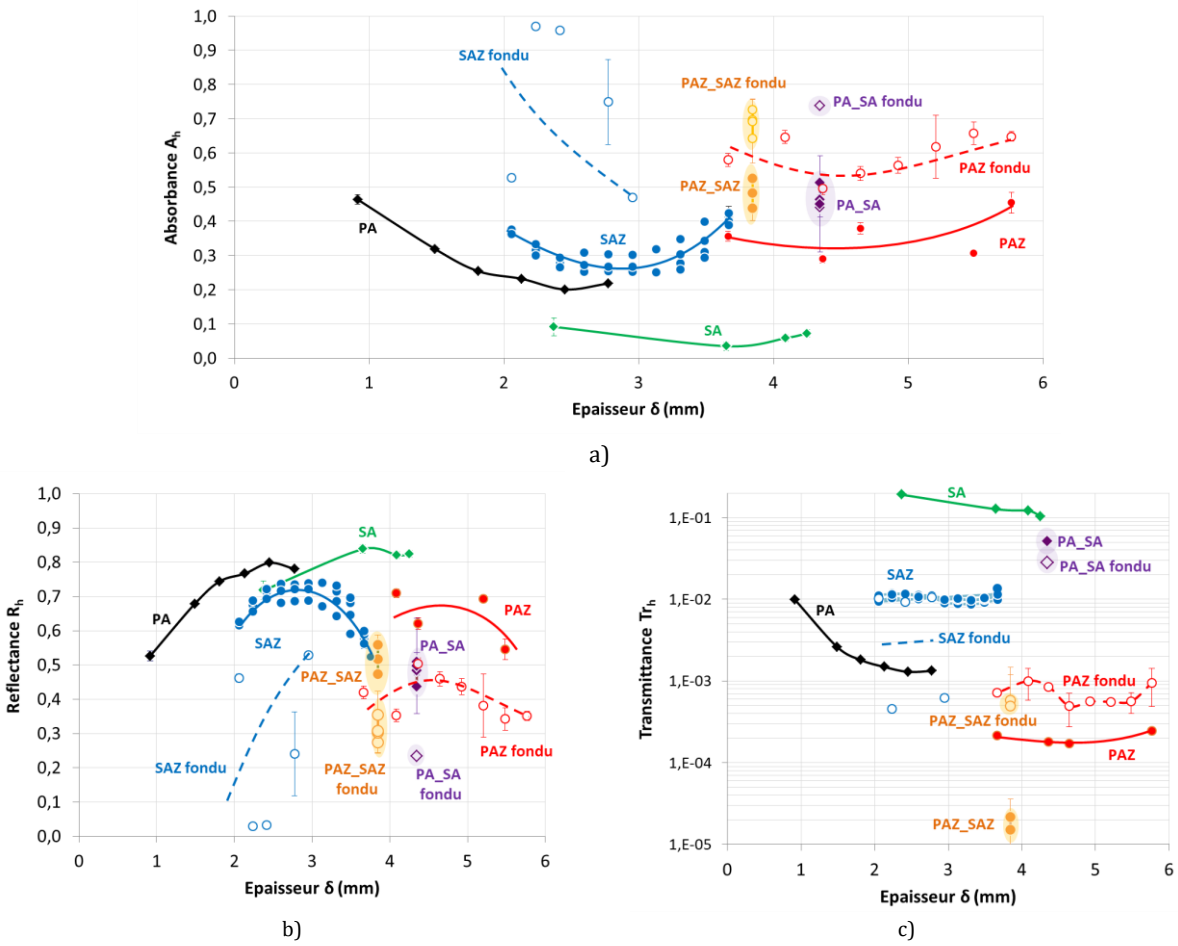


Figure IV-14 : Propriétés radiatives des systèmes de réception en fonction de l'épaisseur (de poudre et/ou du substrat). Pour {PA_SA}, Δz_{poudre} = 96 µm et δ_{sub}= 4,25 mm ; pour {PAZ_SAZ} Δz_{poudre} = 95 µm et δ_{sub}= 3,75 mm.

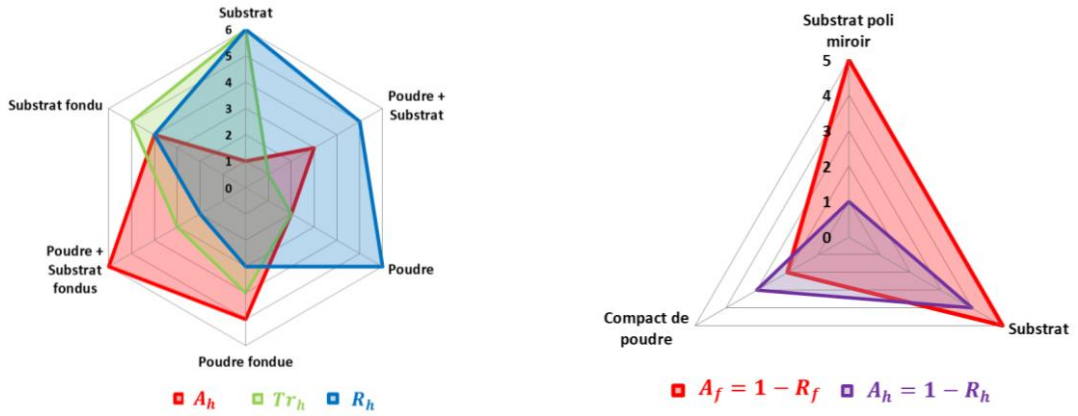


Figure IV-15 : Classification des propriétés radiatives en fonction des différents milieux à l'état non fondu de 1-faible à 6-élevé a) céramiques de réception de type alumine b) métaux

Les absorbances des lits de poudre $A_{h,p}$ et des échantillons denses $A_{h,s}$ semblent s'éloigner des modèles et de la valeur de la littérature *(Figure IV-16)*. Néanmoins, pour l'alumine (plus transparente que l'alumine zircone) les valeurs mesurées sont plus proches des modèles que les valeurs recueillies dans la littérature et $A_{h,p} > A_{h,s}$.

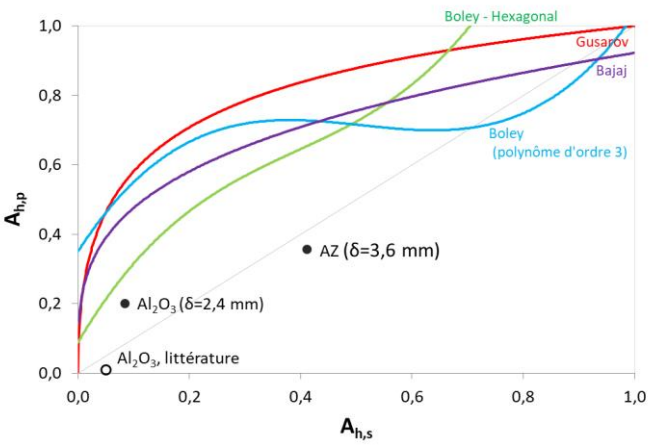
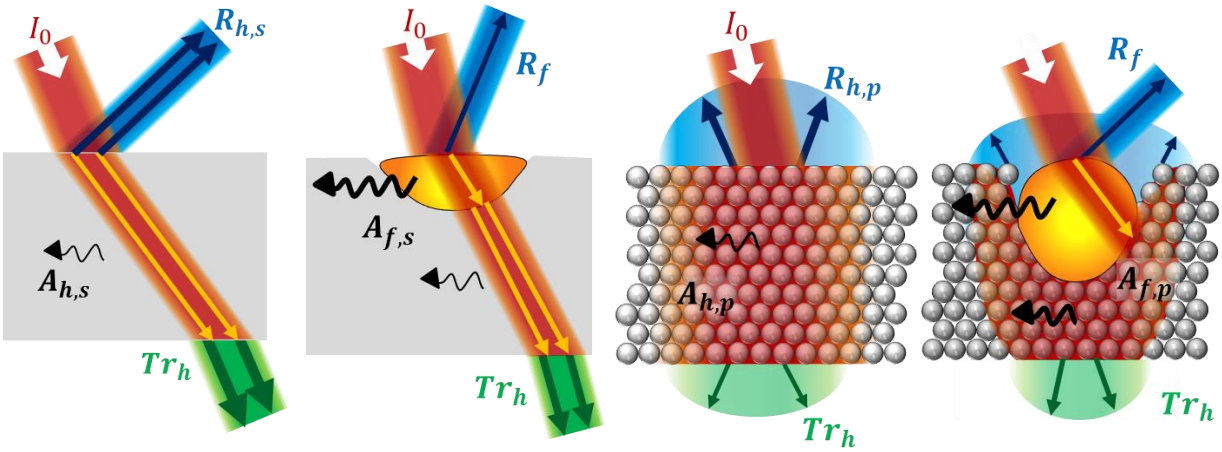


Figure IV-16 : Absorbances mesurées du milieu granulaire $A_{h,p}$ en fonction de celle du milieu dense $A_{h,s}$ pour les systèmes purs

Il est possible de comparer les propriétés radiatives des **états fondus** des milieux denses et granulaires de l'alumine-zircone, ce qui n'est pas le cas pour l'alumine car elle ne fond que très difficilement pour ces milieux. Bien que l'état fondu, soit une moyenne entre les états liquide et solide, cet état fondu absorbe de manière significative le rayonnement incident quelle que soit la nature (dense ou granulaire) de l'échantillon. Pour le **substrat massif** $\boldsymbol{A_{f,s} > A_{h,s}}$, et pour le **milieu granulaire**, de la même façon $\boldsymbol{A_{f,p} > A_{h,p}}$ *(Figure IV-17)*. En plus d'être liée à la forte absorption intrinsèque du liquide, l'augmentation de l'absorption du LDP à l'état fondu vis-à-vis de l'état solide est liée à la réduction de la multi-réflexion. Ceci induit également une meilleure transmission au sein du LDP ($Tr_{f,p} > Tr_{h,p}$).



a) Substrat dense b) Substrat dense fondu c) LDP d) LDP fondu

Figure IV-17 : Propriétés radiatives à l'état solide et fondu des substrats denses et des LDP pour les matériaux céramiques à réception

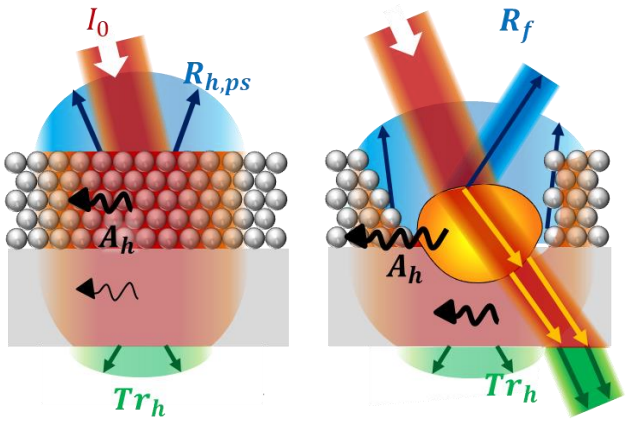
Les résultats des mesures d'absorbance pour les **matériaux métalliques** sont résumés en *Figure IV-15.b*. Concernant les massifs *(Annexe D-6.a et-7.a)*, on retrouve $\boldsymbol{A_{f,s}^{métal} > A_{h,s}^{métal}}$, là encore suite à l'augmentation de l'absorption intrinsèque du liquide. Par contre, pour les milieux pulvérulents, à l'inverse des matériaux céramiques, il y a diminution de l'absorbance à la fusion, ce qui résulte de la réduction de la multi-réflexion : $\boldsymbol{A_{f,p}^{métal} < A_{h,p}^{métal}}$ *(Annexe D-6.b et7.c-d)*. Dans le cas d'un substrat poli miroir *(Annexe D-7.b)*, l'absorption à l'état solide est très faible puisque la majorité du signal incident est réfléchie ($\boldsymbol{A_{h,s\,poli}^{métal} \ll A_{f,s\,poli}^{métal}}$). Ainsi, l'échauffement rapide dans un milieu absorbant rugueux ou granulaire amorce la fusion à plus faible puissance par rapport à une surface polie. Pour résumer $\boldsymbol{A_{h,s,poli}^{métal} \ll A_{h,s}^{métal} < A_{f}^{métal} < A_{h,p}^{métal}}$. Ces résultats se recoupent parfaitement avec la littérature *(§III.3.2)* : **la multi-réflexion dans un LDP augmente d'autant plus l'absorbance que le système est absorbant.**

c) Epaisseur de poudre

L'influence de l'épaisseur de poudre est visible sur la gamme étudiée pour l'alumine *(Figure IV-14)*. Le substrat d'Al_2O_3-ZrO_2 étant plus absorbant que celui de l'alumine, il aurait fallu déplacer la gamme d'étude vers de plus petites épaisseurs, tout comme pour le LDP {*PAZ*} qui n'est étudié que pour un Δz_{poudre} > 3,8 mm.
Lors de l'épaississement du LDP d'alumine, R_h augmente et Tr_h diminue : la multi-réflexion sur les particules d'alumine non absorbantes s'accroit par le nombre d'interfaces supplémentaires. **L'absorption intrinsèque des particules étant quasi-nulle, l'accroissement de la multi-réflexion suite à l'augmentation de Δz_{poudre} doit être compensée par une diminution de l'absorbance du LDP.** A l'inverse, pour les milieux absorbants traités dans la littérature *(Figure III.35.b-c et Figure III.36)*, l'absorbance du LDP augmente avec Δz_{poudre}: Tr_h diminue plus rapidement que R_h n'augmente avec Δz_{poudre}. Les pertes du rayonnement incident par multi-réflexion sont alors compensées par l'absorption du LDP.

d) Systèmes mixtes comparés aux systèmes isolés de même épaisseur

Les systèmes mixtes {LDP+substrat} *(Figure IV-14, Figure IV-15.a et Figure IV-18.a)* possèdent une absorbance améliorée par rapport à chacun des constituants de même épaisseur globale ($\delta = 4{,}26\ mm$) pris isolément : $\boldsymbol{A_{h,ps} > A_{h,p} \geqslant A_{h,s}}$ et de même pour l'état fondu $\boldsymbol{A_{f,ps} > A_{f,p} \geqslant A_{f,s}}$. De plus, l'absorption intrinsèque du liquide implique que, $\boldsymbol{A_{f,ps} > A_{h,ps}}$ suite à la diminution de la multi-réflexion comme pour les systèmes isolés.



a) LDP+Substrat b) LDP+Substrat fondu

Figure IV-18 : Propriétés radiatives à l'état solide et fondu des substrats denses et des LDP pour les matériaux céramiques à réception

A l'état non fondu pour l'**Al_2O_3**, la très faible épaisseur de couche de poudre ($\Delta z_{poudre} = 96\ \mu m$) déposée sur un substrat dense massif épais de 4,25 mm, fait néanmoins écran au substrat et permet de piéger quelque peu le rayonnement par multi-réflexion. La différence de réflectance entre le substrat dense et le système mixte reste faible $(R_{h,ps} \leq R_{h,s})$ mais l'écart en transmittance n'est toutefois pas négligeable ($Tr_{h,ps} < Tr_{h,s}$). La faible épaisseur de poudre qui fait alors un peu écran favorise l'absorption : $A_{h,ps} > A_{h,s}$. On observe les mêmes tendances pour l'**Al_2O_3-ZrO_2**.

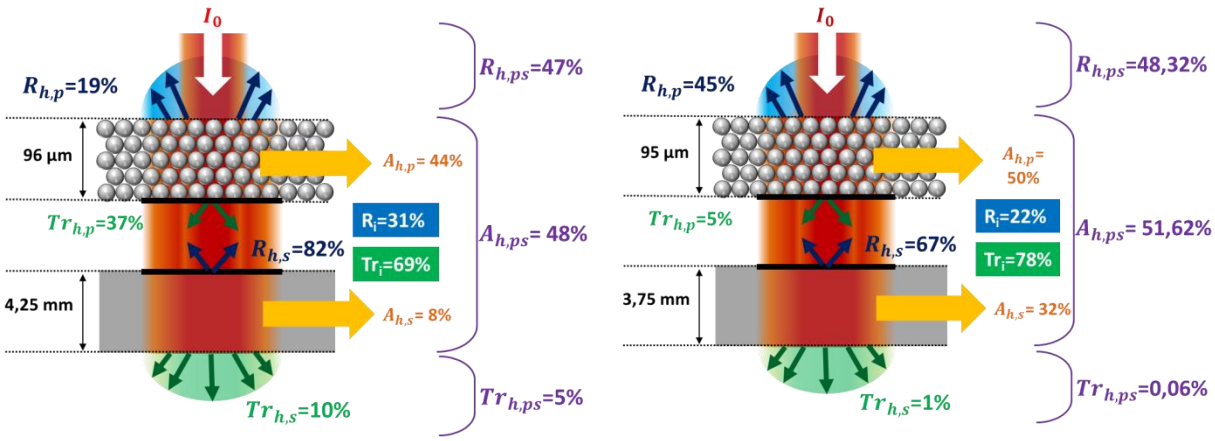
Par rapport au LDP isolé et épais (si on considère que sa valeur de réflectance arrive à saturation pour $\Delta z_{poudre} \geqslant 2{,}5$ mm), le système mixte {LDP+substrat} à fine épaisseur de poudre possède une faible multi-réflexion ($R_{h,ps} < R_{h,p}$). Une fois le rayonnement arrivé à l'interface, la transmission à travers le substrat y est plus facile, c'est ce qui explique que $Tr_{h,ps} > Tr_{h,p}$. Pour l'**Al_2O_3-ZrO_2**, on a la même tendance, $R_{h,ps} < R_{h,p}$. Néanmoins, le substrat {SAZ} étant bien plus absorbant que le substrat d'alumine {SA}, une

fois que le rayonnement a traversé le LDP, il traverse plus difficilement {SAZ} que {SA}, ce qui explique que $Tr_{h,ps} < Tr_{h,p}$ pour l'Al_2O_3-ZrO_2.

e) Systèmes mixtes décomposés

Etant donné la transparence des céramiques oxydes et l'interaction laser-matière de type volumique, la question est de savoir si l'amorce de la fusion se réalise au sein du LDP, à l'interface LDP/substrat voire même aux deux endroits à la fois. Aussi, la compréhension de l'effet de l'interface sur les propriétés radiatives du système permet de mettre en avant l'intérêt du choix et de la préparation du substrat, ou de l'état de la couche précédemment fondue, lors de la fabrication 3D.
Les équations *(III.51)* et *(III.52)* permettent le calcul des propriétés radiatives à l'interface {LDP+substrat} Tr_i et R_i, en combinant les mesures obtenues sur LDP, substrat et pour l'ensemble {LDP+substrat}. Ainsi pour des tirs statiques en phase solide, les bilans des irradiances sont établis en *Figure IV-19* pour {PA_SA} et {PAZ_SAZ}.

Pour les deux matériaux concernés, la réflectance du **LDP isolé d'épaisseur égale à celle déposée sur le substrat** est inférieure ou égale à celle du système global ($R_{h,ps} \geqslant R_{h,p}$), ce qui traduit un effet de l'interface avec la contribution de la réflectance du substrat $R_{h,s}$. Pour l'**Al_2O_3**, le LDP réfléchit peu et transmet raisonnablement le rayonnement. Cependant, la forte réflectivité du substrat contribue à une forte augmentation de la réflexion de l'ensemble $R_{ps}^{A}(\delta = 4{,}26\ mm) = 47\% > R_{p}^{A}(\delta = 96\ \mu m) = 19\%$. Puis, comme le substrat n'absorbe que très peu, le signal transmis à travers l'ensemble de plus de 4,25 mm d'épaisseur n'est pas négligeable ($Tr_{h,ps}^{A} = 5\%$). Pour l'**Al_2O_3-ZrO_2**, les absorbances du LDP, du substrat et de l'ensemble sont supérieures à l'Al_2O_3. En effet, à l'inverse de l'alumine, le LDP réfléchit beaucoup et transmet très peu, probablement par suite du phénomène de multi-réflexion accentué par le caractère absorbant intrinsèque de l'Al_2O_3-ZrO_2 qui est supérieur à celui de l' Al_2O_3. A l'interface, le substrat {SAZ} réfléchit assez bien mais moins que l'alumine et ne contribue donc pas fortement à augmenter la réflectance globale ($R_{h,ps}^{AZ} = 48{,}32\%$). Le substrat {SAZ} étant bien plus absorbant que l'alumine ($A_{h,s}^{A} < A_{h,s}^{AZ}$), il ne permet quasiment pas une transmission globale ($Tr_{h,ps}^{AZ} < Tr_{h,ps}^{A}$).



a) b)

Figure IV-19 : Bilan des propriétés radiatives pour les constituants à réception isolés et combinés a) Al_2O_3 b) Al_2O_3-ZrO_2

En résumé, les absorbances $A_{h,ps}$ des deux systèmes étudiés sont proches mais issues de deux mécanismes d'interaction laser-matière différents. D'une part, l'Al_2O_3 est un système absorbant par le lit de poudre uniquement avec une transmission globale $Tr_{h,ps}$ non négligeable et un fort effet d'interface lié à la nature du substrat sous-jacent. D'autre part, l'Al_2O_3-ZrO_2 est un système absorbant par le LDP et le substrat avec une faible transmission globale $Tr_{h,ps}$ et un faible effet de l'interface. C'est donc la multi-réflexion du lit de poudre qui contrôle la réflexion de l'ensemble pour l'Al_2O_3-ZrO_2 tandis que c'est la

réflexion à l'interface pour l'Al_2O_3. Plus la quantité de rayonnement atteignant le substrat est élevée, plus l'interface est réfléchissante (Al_2O_3), et plus la multi-réflexion du système global sera augmentée ainsi que légèrement l'absorption. **Plus le système est absorbant, moins l'effet de l'interface est donc marqué.**

Par ailleurs, les essais ont montré que le système d'alumine ne fondait que très difficilement avec une configuration de tir statique 0D et que la stabilité géométrique était bien meilleure pour l'alumine-zircone *(Chapitre VI)*. Dans le cas des matériaux céramiques, la réflexion à l'interface LDP/substrat (R_i) liée à la réflectance du substrat $(R_{h,s})$ et à la part de transmission du LDP $(Tr_{h,p})$ conditionnent donc majoritairement l'interaction laser-matière. Etant donné la part de rayonnement incident transmise au substrat, il serait donc possible d'amorcer la fusion du substrat par rayonnement avant celle du lit de poudre, à condition que le LDP d'épaisseur donnée soit suffisamment transparent et que le substrat soit absorbant. **Le choix du substrat est donc primordial, tout comme les propriétés des couches précédemment fondues lors de la fabrication 3D.**

IV.2.1.4 Application des modèles optiques

a) Modèle homogène

Il est possible de remonter au coefficient d'absorption linéaire α_{abs} d'un échantillon dense *(Figure IV-20)* à partir des mesures de R_h et Tr_h en calculant Tr et R comme décrit au *§III.1.3.2*. Par équivalence avec le modèle hétérogène, ce modèle est également appliqué aux LDP pour comparaison. Les résultats sont comme escompté, à l'image de l'absorbance *(Figure IV-14.a)*.

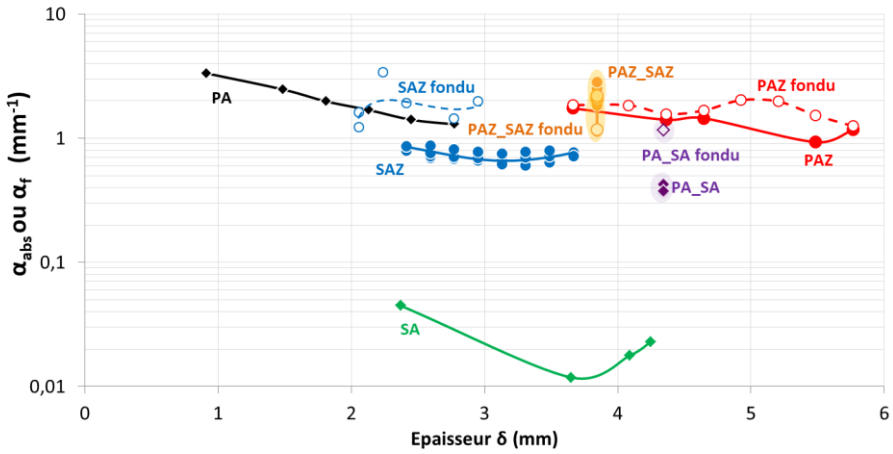


Figure IV-20 : Coefficients d'absorption des systèmes à réception, fondus ou non, en fonction de l'épaisseur du LDP poudre et/ou du substrat

Pour les **matériaux denses**, on mesure $\alpha_{abs}(SA) \approx 10^{-2}\ mm^{-1} < \alpha_{abs}(SAZ) \approx 0{,}5 - 1\ mm^{-1}$ *(Figure IV-20)*. Pour rappel, es valeurs correspondantes dans la littérature pour {SA} varient entre 10^{-2} mm^{-1} pour un monocristal et 1 mm^{-1} *(Tableau III-2)*. Pour {SAZ}, les valeurs calculées coïncident avec celles de la littérature pour des substrats de ZrO_2 ($10^{-1}\ mm^{-1}$). Pour ces échantillons, α_{abs} est par définition constant suivant l'épaisseur du substrat. Les dispersions rencontrées peuvent s'expliquer par l'hétérogénéité du substrat (pores, contaminations,…) notamment pour {SA} qui est faiblement absorbant et donc très sensible aux défauts et impuretés ; ou encore par les incertitudes de mesures en réflexion. D'après l'*équation III.37*, il est possible d'exprimer la valeur de α_{abs} à partir de Tr *(Figure IV-21)* : $\alpha_{abs}(SA) = 0{,}02\ mm^{-1}$ et $\alpha_{abs}(SAZ) = 0{,}73\ mm^{-1}$. Il semblerait que pour les **LDP**, les coefficients d'absorption α_{abs} soient supérieurs à ceux des matériaux denses *(Figure IV-20)*.

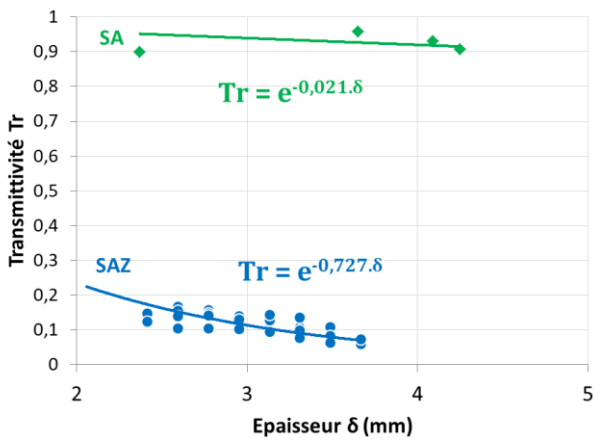


Figure IV-21 : Variation de la transmittivité des substrats denses et à réception en fonction de leur épaisseur

Pour les **systèmes mixtes :** le coefficient d'absorption du système mixte de l'alumine est moyenné entre les deux valeurs des systèmes isolés pour une même épaisseur ($\delta \approx 4{,}26\ mm$) et en extrapolant pour {PA} :

$$\alpha_{abs}(SA) < \alpha_{abs}(PA_SA) < \alpha_{abs}(PA)$$

Pour l'alumine-zircone, la valeur de α_{abs} pour le système mixte est supérieure aux valeurs des systèmes isolés pour une même épaisseur ($\delta \approx 3{,}76\ mm$) :

$$\alpha_{abs}(SAZ) < \alpha_{abs}(PAZ) \leq \alpha_{abs}(PAZ_SAZ)$$

Rappelons que l'absorption de {PAZ_SAZ} est fortement conditionnée par l'absorption du substrat et du LDP tandis que {PA_SA} l'est uniquement par l'absorbance du LDP.

A **l'état fondu**, toutes les valeurs des coefficients α_{abs} sont proches et supérieures à l'état non fondu et oscillent entre 1 et 3 mm^{-1} *(Figure IV-20)*. Or d'après la *Figure III.2*, les valeurs de α_{abs} à $T = T_f$ pour l'alumine monocristalline et des poudres pures varient aussi entre 1-3 mm^{-1} puis augmentent avec la température.

b) Modèles hétérogènes pour les milieux uniques à l'état solide

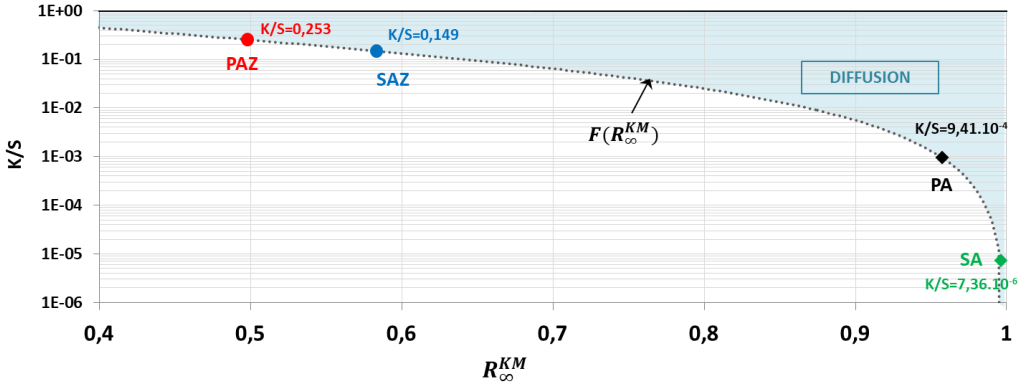
Pour aller plus loin dans la compréhension des phénomènes mis en jeu au sein des lits de poudre non fondus, il est désormais plus pertinent de s'intéresser aux coefficients d'absorption K et de diffusion S. Le calcul de K, S et K/S pour les milieux diffusants, non fondus est possible par le biais des modèles optiques énoncés à la *Figure III.43*. Il faut alors prendre en compte les corrections des coefficients de réflexion aux interfaces *(§III.2.3.6)* et les indices optiques effectifs pour les milieux poreux et/ou non monophasés n_{eff}, $k_{e,eff}$ (calculés au *§III.2.1.3*).

Pour les systèmes oxydes purs, $K/S < 1$ soit $S > K$ *(Figure IV-22.a)*, révélant leur caractère diffusant avec un coefficient de diffusion S qui prend le pas sur celui de l'absorption K. Le rapport $K/S(PA)$ est alors proche des valeurs issues de la littérature *(Tableau III-3)*. Les valeurs obtenues des coefficients S et K *(Figure IV-22.b)* sont proches des valeurs issues de la littérature *(Tableau III.3)*. Soit pour la poudre d'alumine $S(PA) \approx 10^4 m^{-1}$ *et* $K(PA) \approx 10^1 m^{-1}$.

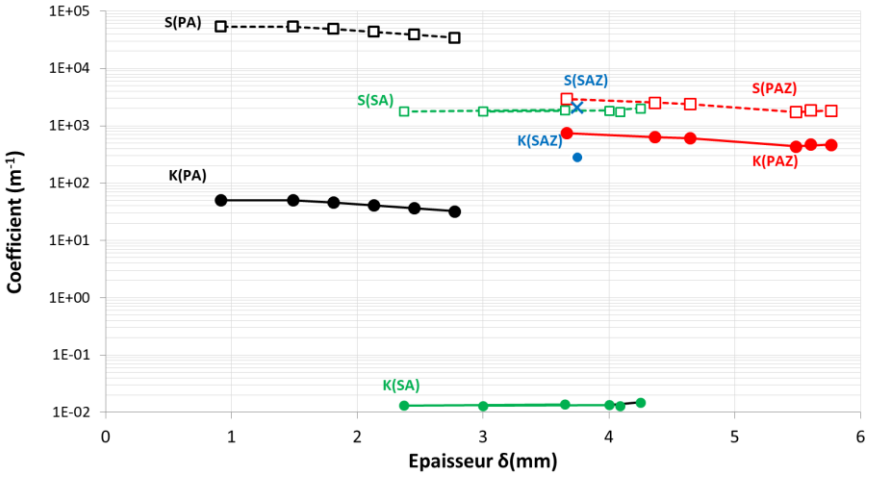
Les systèmes Al_2O_3 sont les plus diffusants et les moins absorbants indépendamment de l'épaisseur de poudre :

$$\boldsymbol{K/S(Al_2O_3) < K/S(AZ)\ ;\ S(AZ) \leq S(Al_2O_3)\ et\ K(AZ) > K(Al_2O_3)}$$

Pour les systèmes à base d'alumine, plus diffusants que l'alumine-zircone, le substrat massif est nettement moins absorbant et moins diffusant que le lit de poudre, $\boldsymbol{K(PA) \gg K(SA)}$ **et** $\boldsymbol{S(PA) > S(SA)}$. Pour l'alumine-zircone plus absorbant que l'alumine, la diffusion et absorption des deux milieux sont proches : $\boldsymbol{S(PAZ) \approx S(SAZ)}$ **et** $\boldsymbol{K(PAZ) \approx K(SAZ)}$.



a)



b)

Figure IV-22 : Variation de K/S en fonction de la réflexion semi-infinie (a) et de K et S en fonction de l'épaisseur des échantillons (poudre, substrat ou ensemble LDP+substrat) après application des modèles optiques par combinaison d'une épaisseur semi-infinie et des mesures en transmission d'un dépôt sur verre (b) (d'après les équations III .79 et III.80) .

c) Comparaison entre les modèles homogène et hétérogène

A partir des valeurs de K et S, on retrouve le coefficient d'extinction du modèle hétérogène α_{ext} *(relation III.67)*. Il est alors comparé au coefficient d'absorption α_{abs} issu du modèle homogène et présenté en *Figure IV-20.* La comparaison entre les deux coefficients révèle que le modèle hétérogène en transmission est très proche du modèle homogène *(Figure IV-23 et Tableau IV-7)*. Cette similitude est cohérente puisque le modèle homogène prend en compte Tr_h.

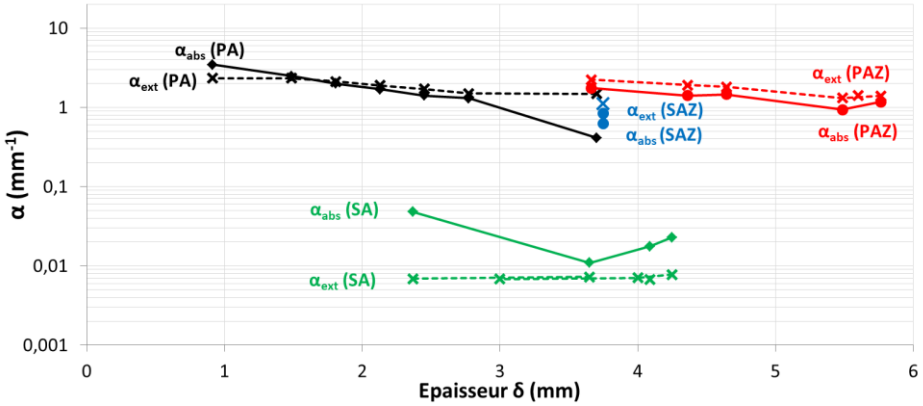


Figure IV-23 : Comparaison des coefficients d'absorption et d'extinction en fonction de l'épaisseur des LDP et des substrats pour l'alumine et l'alumine-zircone

Tableau IV-7 : Valeurs moyennes des coefficients d'absorption et d'extinction pour les systèmes céramiques oxydes à l'état pur de réception

Système	α_{ext} (mm^{-1})	α_{abs} (mm^{-1})
SA	0,007	0,021
SAZ	1,103	0,727
PA	1,904	1,814
PAZ	1,258	1,123
PA_SA	-	0,398
PAZ_SAZ	-	1,155

Expérimentalement, le substrat d'alumine {SA} ne fond pas même à forte puissance, ce qui explique que ce système présente les plus faibles valeurs d'absorbance, de K /S et de K. Son coefficient d'extinction $\alpha_{ext} \approx 7.10^{-3} mm^{-1}$ se rapproche de la valeur de la littérature pour un monocristal (10^{-2} mm^{-1}), ce qui est cohérent avec sa transparence au rayonnement laser. Toutefois, des différences d'interaction laser-matière se présentent entre les régimes statique (0D) et dynamique (1D). En effet, en régime dynamique, il devient possible de fusionner le substrat dense d'alumine {SA}.

IV.2.2 Ligne de fusion (1D)

Le suivi des propriétés radiatives des lignes de fusion (configuration dynamique 1D) qui constituent la brique de construction élémentaire d'une pièce 3D en LBM est essentiel pour comprendre l'interaction laser-matière qui régit ce procédé.

IV.2.2.1 Vitesse de balayage et régimes d'interaction dynamique

La fusion dynamique s'opère à la vitesse V de balayage du laser et se caractérise par l'énergie linéique $E_l = P/V$. Le suivi de la fusion se fait au cours du temps sur toute la longueur du cordon. En accord avec les régimes d'interaction laser-matière vus au *Chapitre I*, l'intensité des signaux radiatifs diffère. Pour tous les systèmes étudiés précédemment, la variation des propriétés radiatives avec l'énergie linéique *(Figure IV-24)* permet l'identification des régimes communs définis ci-après.

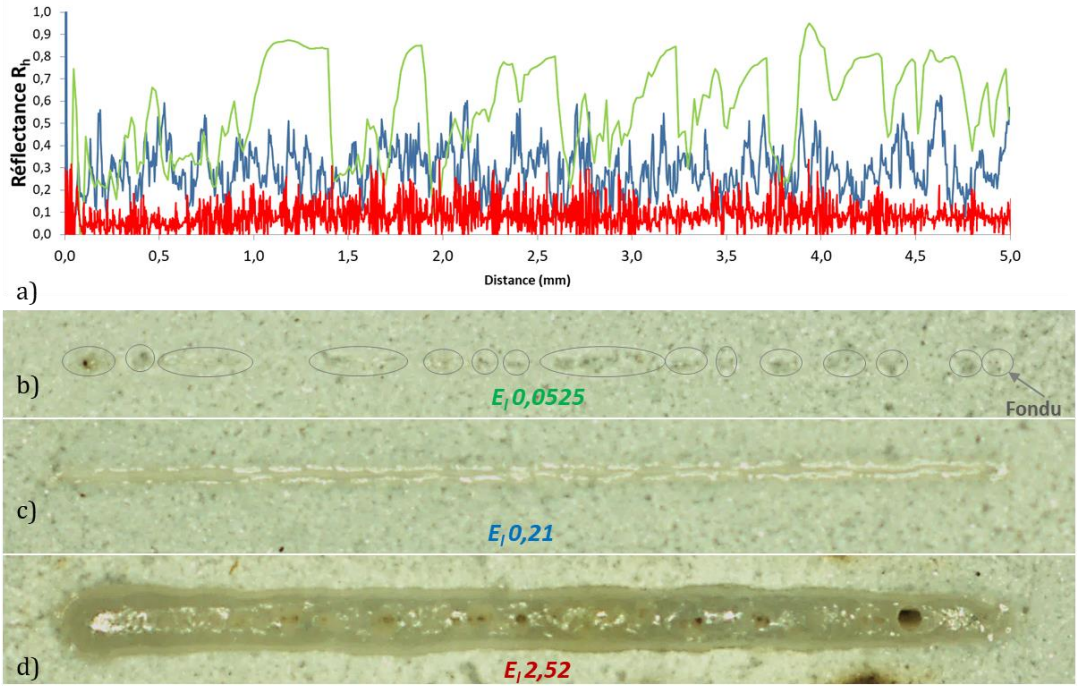


Figure IV-24 : a) Suivi de la réflectance R_h en fonction de la distance parcourue par le laser pour 3 énergies linéiques croissantes sur un compact d'alumine associée aux clichés optiques des lignes de fusion correspondantes à b)une fusion partielle c)une fusion continue et stable d) un régime keyhole

- **Régime non fondu (très faible E_l)**: Les signaux R_h et Tr_h sont rectilignes et peu dispersés *(Figure IV-25)*. Les propriétés radiatives sont fonction de la nature du matériau (dense ou granulaire, absorbant ou semi-transparent) et de son état de surface. On devrait retrouver les mêmes valeurs que celles du régime non fondu en statique.

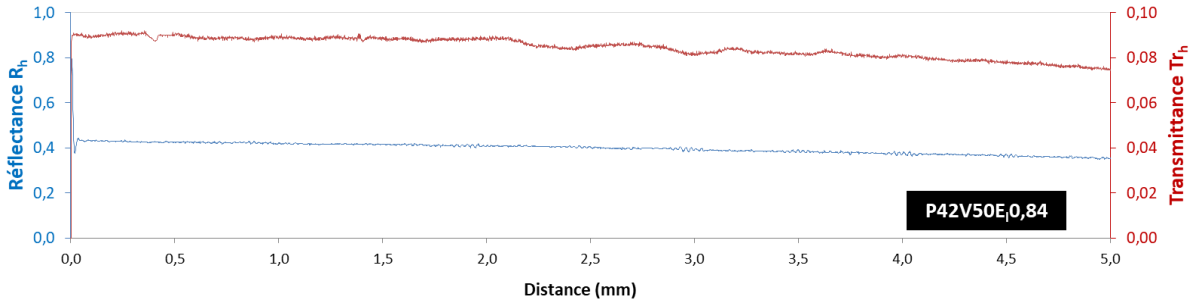
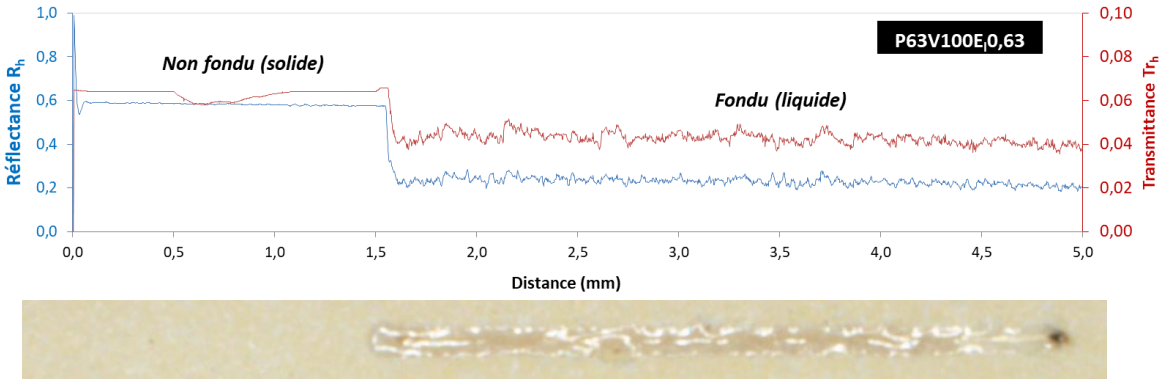
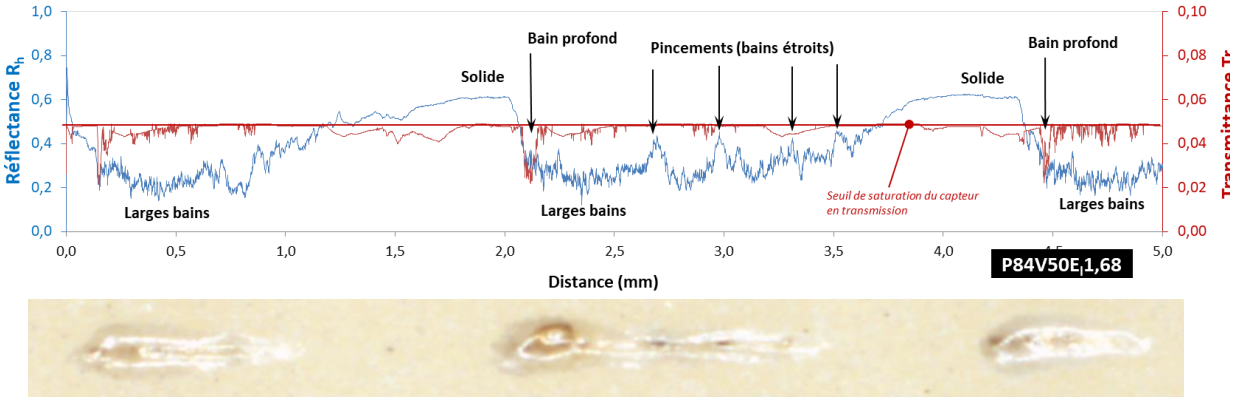


Figure IV-25 : Suivi des signaux R_h et Tr_h en fonction de la distance parcourue par le laser lors d'une ligne de fusion sur substrat dense {SA}

- **Régime partiellement fondu (faible E_l)** : les lignes de fusion sont discontinues *(Figure IV-26 et Figure IV-24.b)*. Il peut s'agir de discontinuités de *balling* (répétables et à fréquence donnée – voir le cas métallique en *Annexe D-8* et le cas céramique en *Figure IV-26.b*) ou d'hétérogénéités aléatoires d'absorption pour les matériaux quasi-transparents. C'est le cas par exemple, lors d'une ligne de fusion sur un substrat dense d'alumine {SA}. La diminution de la réflectance d'une portion de cette ligne est associée à une diminution de la transmittance *(Figure IV-26.a)*. Cette variation brutale des signaux peut alors être liée au changement d'état solide/liquide alors qu'une variation modérée de la réflectance s'apparente plus à un changement d'aire du bain voire de la pénétration du rayonnement en profondeur.



a) {SA}

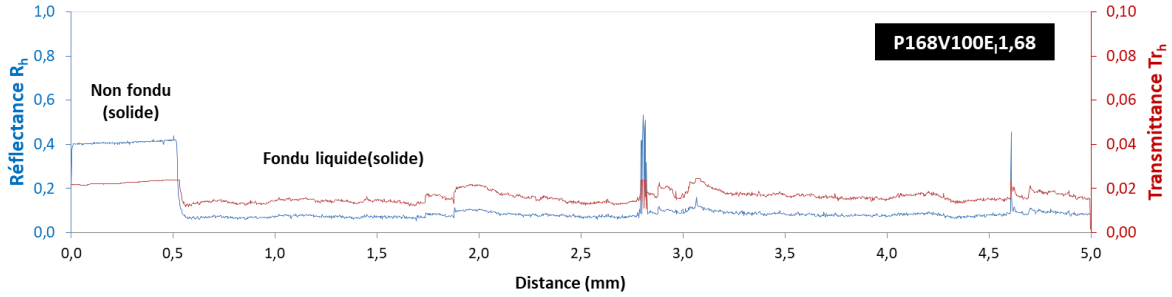


b) {PA_SA} - $\Delta z_{poudre} = 95\ \mu m$

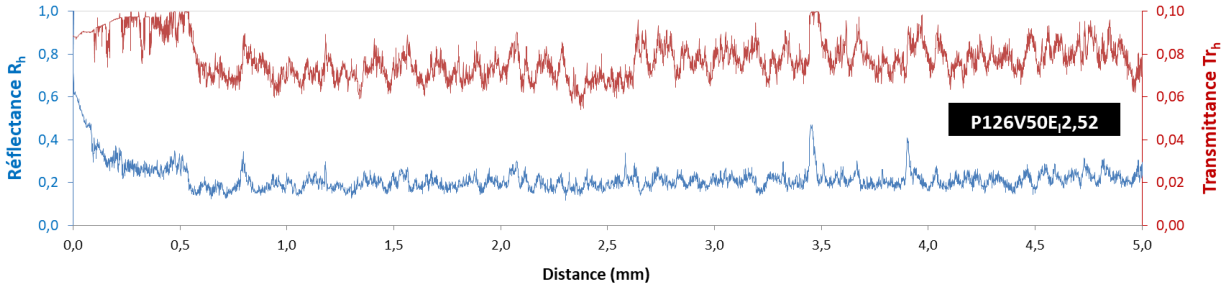
Figure IV-26 : Suivi des signaux R_h et Tr_h en fonction de la distance parcourue par le laser lors d'une ligne de fusion associée aux clichés optiques respectifs

- **Régime fondu (moyenne E_l)** : les lignes de fusion sont continues *(Figure IV-26.a –hors zone non fondue – et Figure IV-24.c).* On attribue aux signaux radiatifs une valeur moyenne sur toute la longueur du cordon, avec une dispersion associée. Les oscillations du signal peuvent être dues aux mouvements du liquide et aux variations de la quantité de liquide.

- **Régime keyhole (forte E_l)** : les signaux radiatifs présentent des instabilités similaires ou accentuées par rapport au régime fondu *(Figure IV-24.d et Figure IV-27)*. Les pics d'instabilité peuvent correspondre à la fermeture et ouverture du capillaire gazeux (voir le cas métallique en *Annexe D-8 et 9*).



a)



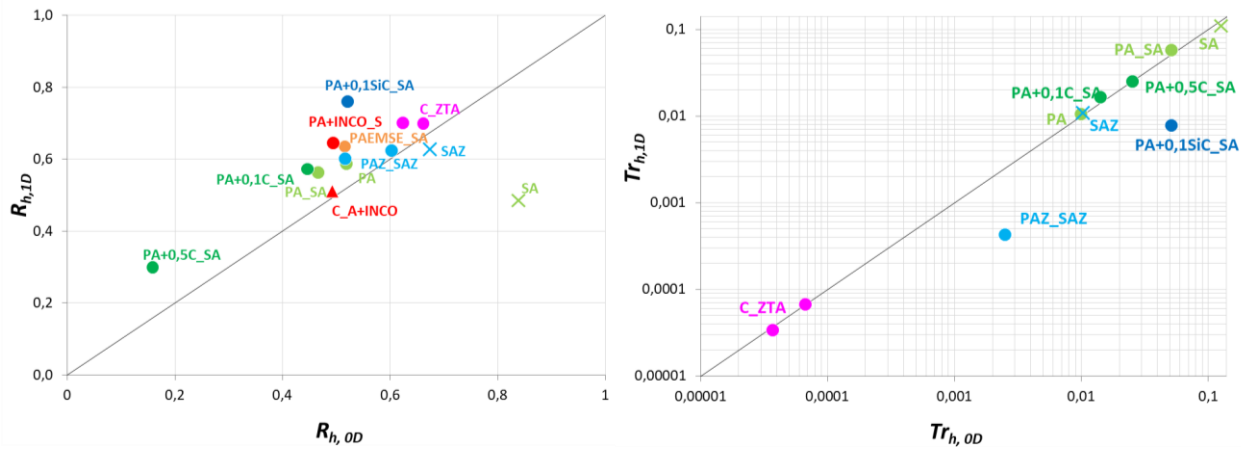
b)

Figure IV-27 : Suivi des signaux R_h et Tr_h en fonction de la distance parcourue par le laser lors d'une ligne de fusion associée aux clichés optiques respectifs pour a) le substrat d'alumine dense {SA} et b) le LDP d'alumine déposé sur le substrat dense d'alumine {PA_SA}

IV.2.2.2 Comparaison entre 1D et 0D à l'état solide

L'énergie linéique E_l étant proportionnelle au temps d'interaction $\left(E_l = \frac{P}{V} = \frac{P.t_{int}}{\Phi_L}\right)$, la température maximale atteinte est croissante avec l'énergie linéique, ce qui explique la fusion progressive des lignes de fusion avec l'augmentation de E_l. Les régimes 1D sont équivalents aux régimes 0D *(§IV.2.1.2),* à la différence que les lignes de fusion sont soumises à des instabilités géométriques liées à la dynamique du bain (balling, pincement, keyhole instable…) et aux hétérogénéités chimiques locales des milieux irradiés.
De manière générale, les valeurs de réflectance 1D mesurées pour l'état non fondu sont légèrement supérieures aux mesures faites en 0D *(Figure IV-28.a)* ($R_h^{1D} \geq R_h^{0D}$), surtout pour les mélanges avec absorbants (C, SiC ou Inconel 625) – *voir §IV.3*. En revanche, le substrat dense d'alumine {SA} présente une réflectance plus élevée en statique qu'en dynamique : ($R_h^{1D} < R_h^{0D}$), ce qui explique sa fusion en 1D et non

en 0D. S'agissant de l'échantillon qui présente la plus grande réflectance lors de tirs statiques (essais 0D), on peut imaginer que la mise en mouvement du faisceau (essais 1D) modifie l'angle d'incidence ou fait écran à une partie du rayonnement réfléchi par rapport au cas immobile 0D. En transmission, étant donné les faibles ordres de grandeur, les valeurs sont en général identiques ou très proches en 1D et 0D *(Figure IV-28.b)*.



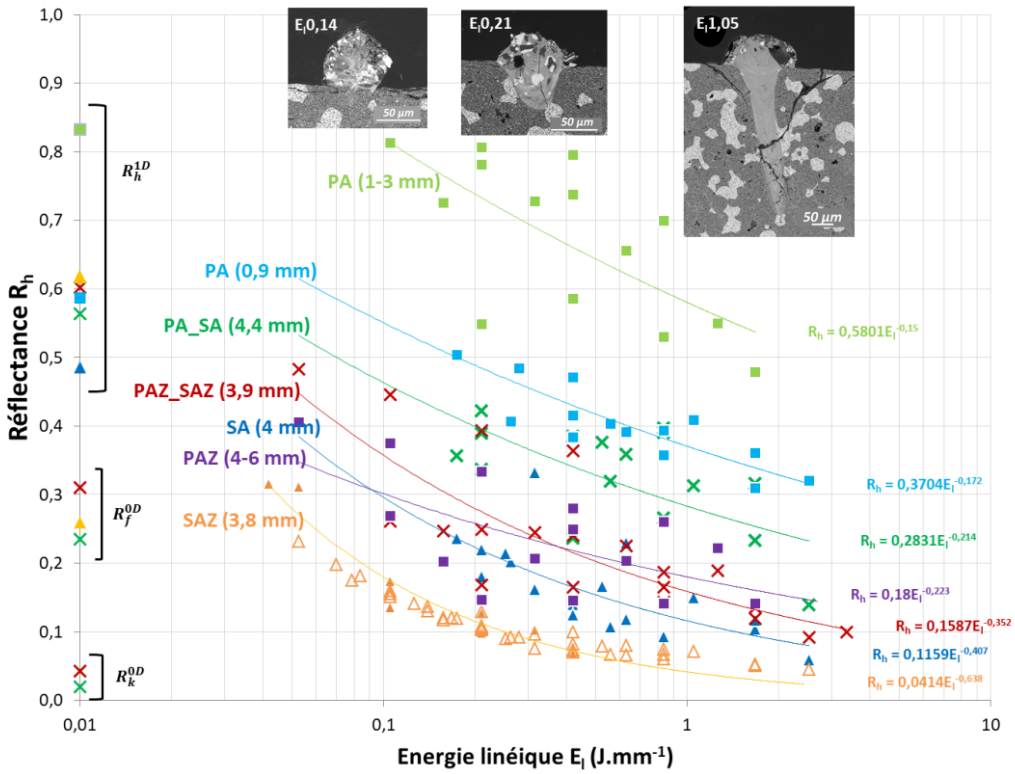
a) b)

Figure IV-28 : Comparaison des propriétés radiatives 0D et 1D à l'état non fondu : a) réflectance et b) transmittance

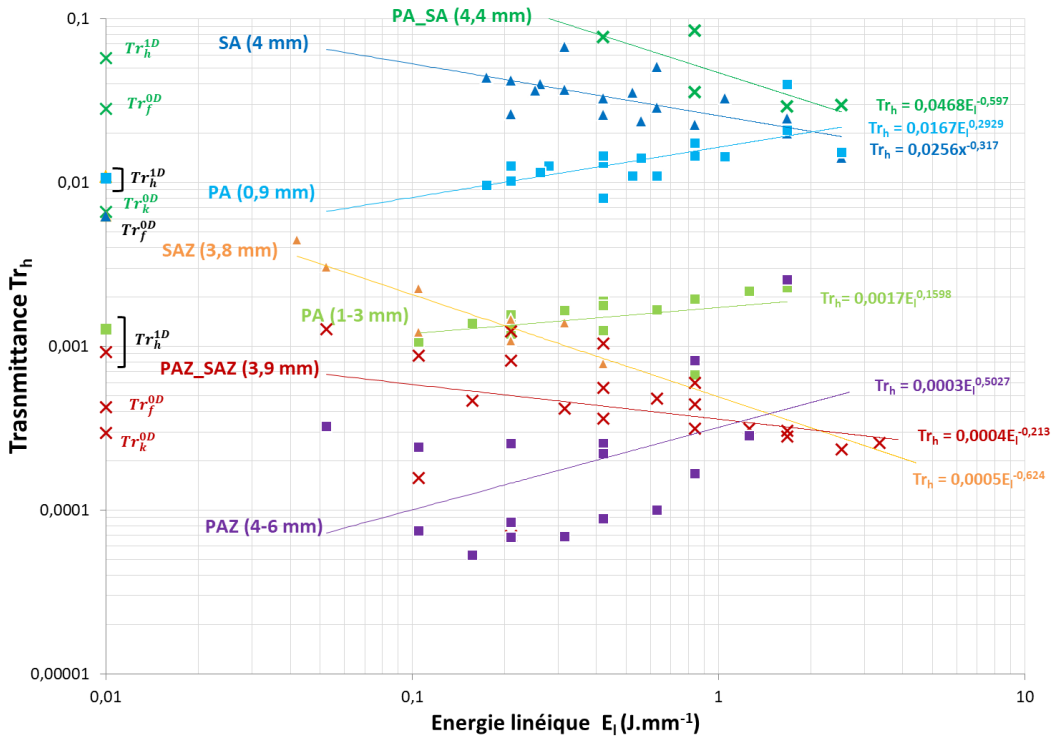
IV.2.2.3 Effet des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives

a) Energie linéique

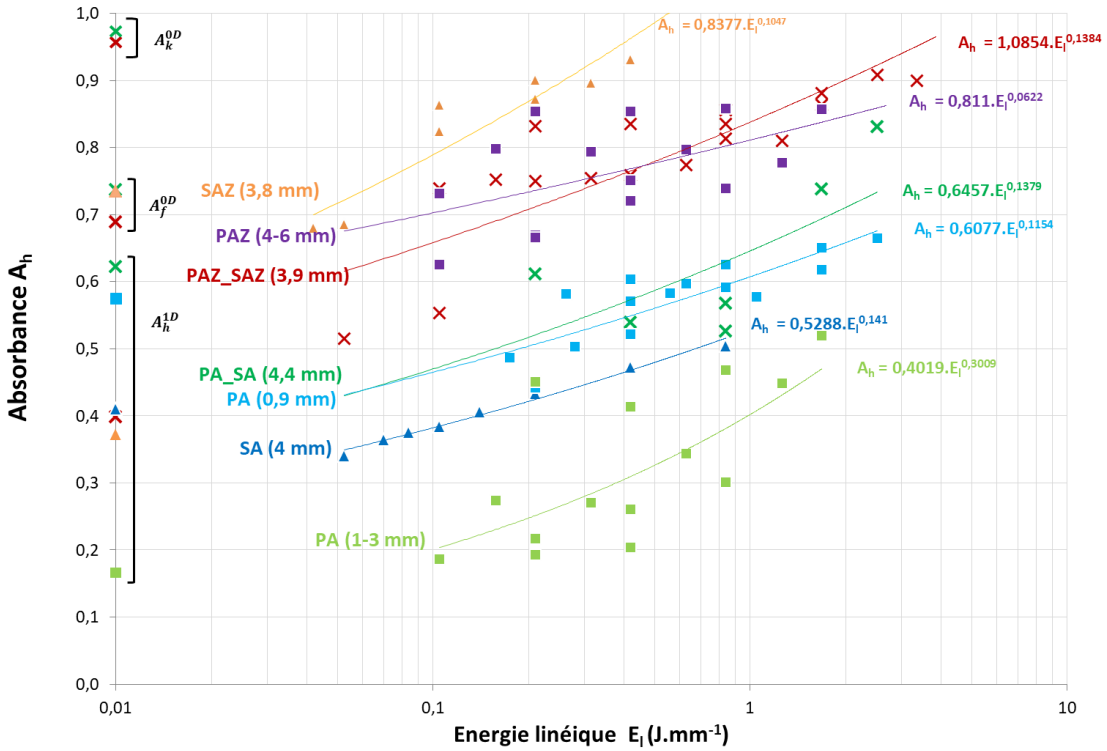
A l'état fondu, il est clair que les valeurs de R_h, Tr_h et donc A_h dépendent de l'énergie linéique E_l (donc de P et V), pour tous les systèmes, indépendamment de leur nature (dense, granulaire ou mixte) - *Figure IV-29*.



a)



b)



c)

Figure IV-29: Variation des propriétés radiatives de l'état fondu en dynamique en fonction de l'énergie linéique a) R_f^{1D} avec les coupes de bains associées au système {PAZ_SAZ} b) Tr_f^{1D} et c) A_f^{1D} puis comparaison avec les valeurs de l'état non fondu en dynamique R_h^{1D} et des états fondu R_f^{0D} et keyhole R_k^{0D} en statique

La réflectance de l'état fondu 1D est encadrée, à faible énergie linéique par la réflectance de l'état non fondu (1D ou 0D) et à forte énergie linéique, par celle du régime keyhole 0D, soit : $R_k^{0D} \leq R_f^{1D} \leq R_h^{1D}$.

Pour tous les systèmes étudiés, $R_f^{1D} \leq R_h^{1D}$ suite à l'absorption intrinsèque du liquide. De plus, la réflectance de l'état fondu R_f^{1D} est inversement proportionnelle à l'énergie linéique (donc à P et à 1/V), et par conséquent au temps d'interaction et probablement à la température du bain.

En revanche, la variation de la transmittance Tr_f^{1D} avec l'énergie linéique va dépendre de la nature du système. En effet, pour les **substrats denses et pour les systèmes mixtes,** la transmittance de l'état fondu Tr_f^{1D} est inversement proportionnelle à E_l et décroît avec l'augmentation de la température. Pour le système mixte *(Figure IV-18)*, l'échauffement du LDP à faible énergie linéique, entraîne en partie sa fusion, ce qui diminue la multi-réflexion et augmente la part transmise. A plus forte énergie linéique, la fusion gagne le substrat et augmente son absorption en diminuant sa transmission. Pour le **lit de poudre** *(Figure IV-17.b-c)*, c'est l'inverse, Tr_f^{1D} est proportionnel à E_l. Dans ce cas, la fusion augmente toujours l'absorbance en même temps qu'elle attenue la multi-réflexion et permet à une plus grande quantité du rayonnement de pénétrer au sein du matériau, d'être absorbée et transmise. Le volume de liquide augmente avec l'énergie linéique, ce qui explique que la transmittance à l'état fondu Tr_f^{1D} augmente aussi.

La transmittance étant négligeable par rapport à la réflectance, l'augmentation de E_l (et donc de la température du bain) à l'état fondu provoque l'accroissement de l'absorbance A_f^{1D}. Cette tendance confirme l'effet de la température observé dans la littérature *(Tableau III-5 et Figure III-27)*.

A l'état fondu, il est observable que $\boldsymbol{R_{f,p}^{1D} \geq R_{f,ps}^{1D} \geq R_{f,s}^{1D}}$ à la fois pour l'Al_2O_3 et l'Al_2O_3-ZrO_2 et à l'inverse que $\boldsymbol{Tr_{f,s}^{1D} > Tr_{f,p}^{1D}}$ *(Figure IV-29.a-b)*. Les milieux pulvérulents fondus induisent une multi-réflexion supérieure au milieu dense, ce qui induit $\boldsymbol{A_{f,s}^{1D} > A_{f,p}^{1D}}$. La transmittance de l'ensemble {LDP+Substrat} fondu est quant à elle d'autant plus importante que le milieu est intrinsèquement transparent : pour l'Al_2O_3-ZrO_2 $Tr_{f,s}^{1D} > \boldsymbol{Tr_{f,ps}^{1D}} > Tr_{f,p}^{1D}$ alors que pour l'alumine plus transparente $\boldsymbol{Tr_{f,ps}^{1D}} > Tr_{f,s}^{1D} > Tr_{h,p}^{1D}$. L'absorbance $\boldsymbol{A_{f,ps}^{1D}}$ est d'autant plus importante que le milieu est intrinsèquement transparent : c'est l'effet de l'interface.

L'étendue du diamètre d'interaction du faisceau dépend des paramètres du procédé. Il est alors possible que le faisceau laser se positionne sur le bain liquide et sur la partie amont solide comme vu dans la littérature *(Figure III-29)*. A **forte énergie linéique** (faible V et forte P), le faisceau interagit avec un bain de fusion large et profond, qui peut être de type keyhole *(Figure IV-30.a)*. Dans ce cas, le faisceau est pénétrant et interagit avec la partie liquide du bain et avec le capillaire de vapeur, ce qui explique que les valeurs de R_f^{1D} et Tr_f^{1D} soient proches de celles de l'état fondu en statique (R_f^{0D} et Tr_f^{0D}) ou du mode keyhole (R_k^{0D} et Tr_k^{0D}). A **faible énergie linéique** (forte V et faible P), le volume de bain est faible et le faisceau interagit plus facilement avec le solide en amont du bain liquide ainsi qu'avec le solide sous-jacent au bain de fusion, qu'il s'agisse du substrat dense ou des particules de poudres *(Figure IV-30.b)*. Ceci expliquerait que les valeurs des propriétés radiatives R_f^{1D} et Tr_f^{1D} soient proches de celles l'état non fondu R_h^{1D} et Tr_h^{1D}. Ces valeurs vont alors dépendre de l'épaisseur de matière restante sous le bain de fusion et de son homogénéité. Les propriétés radiatives mesurées à faible énergie linéique à l'état fondu en dynamique (1D) en configuration de fabrication LBM {LDP+Substrat} correspondent alors à une moyenne sur trois les milieux : LDP, liquide et substrat.

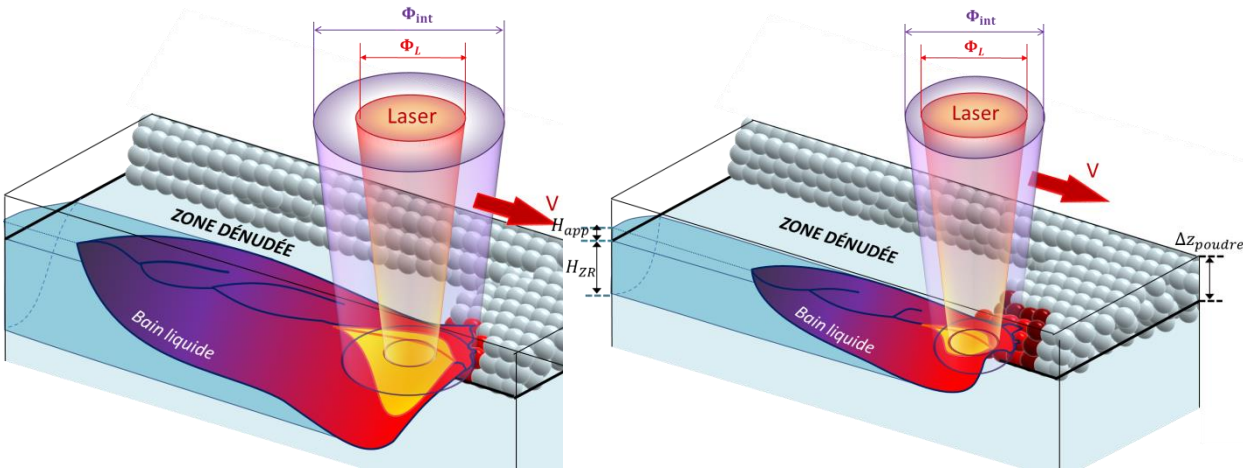


Figure IV-30 : Interaction laser-matière à énergie linéique a) forte et vitesse faible b) faible et vitesse élevée

b) Epaisseur de poudre

Concernant le dépôt du LDP sur un substrat, on remarque que **l'augmentation de Δz_{poudre} multiplie la réflectance** ainsi que la dispersion des mesures *(Figure IV-31 et {PA} à 0,9 mm et 1-3 mm sur la Figure IV-29)*.

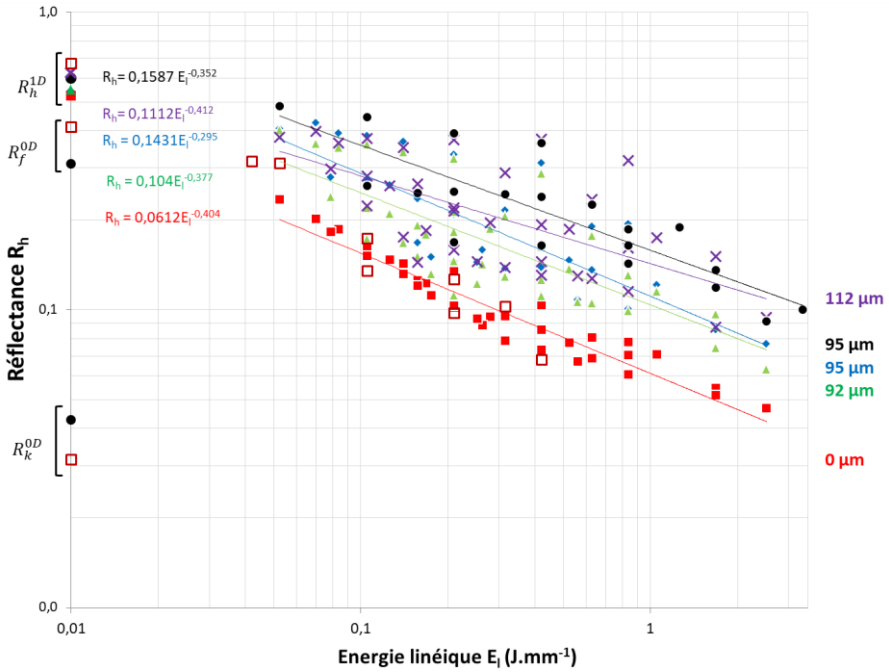


Figure IV-31 : Variation de R_h en fonction de l'énergie linéique pour différentes épaisseurs de poudre déposées sur un substrat pour l'Al_2O_3-ZrO_2

Les lignes de fusion réalisées sur « manip coin » (dépôt de LDP sur verre) - *(Figure IV-32)* montrent sur la gamme étudiée de E_l, que l'augmentation de l'épaisseur de poudre induit d'une part, la légère augmentation de la réflectance et d'autre part, la diminution de la transmittance jusqu'à atteindre un domaine d'opacité.

Pour le milieu granulaire {PA}, il y a transmission à l'état non fondu, discontinu et fondu. Comme vu précédemment, à épaisseur de poudre constante, R_h décroit avec l'augmentation de l'énergie linéique et Tr_h augmente. Ainsi, même à des fortes épaisseurs de poudre (1 mm) et de faibles énergies linéiques

(0,0525 J.mm^{-1}), on observe un faisceau transmis à travers le lit de poudre, à l'état fondu ou non. Il est alors clair qu'**au cours de la fusion 1D sur des épaisseurs classiques de fabrication (0,05 mm), il y a un faisceau transmis au substrat, à travers le LDP et le liquide, et ce rayonnement transmis s'intensifie avec l'augmentation de l'énergie linéique et la diminution de l'épaisseur de poudre**. Ce rayonnement doit contribuer à la fusion du substrat. C'est aussi ce qui explique le phénomène de *balling* à très faible énergie linéique et forte épaisseur de poudre : l'épaisseur d'opacité est petite et inférieure à Δz_{poudre}, ce qui conduit le rayonnement à être atténué avant d'avoir traversé toute l'épaisseur de poudre.
Pour le milieu granulaire {PAZ}, la gamme d'épaisseur de poudre étudiée est supérieure (4-6mm) mais un signal transmis est tout de même observable à partir de 0,84 J.mm^{-1} *(Annexe D-4)*.

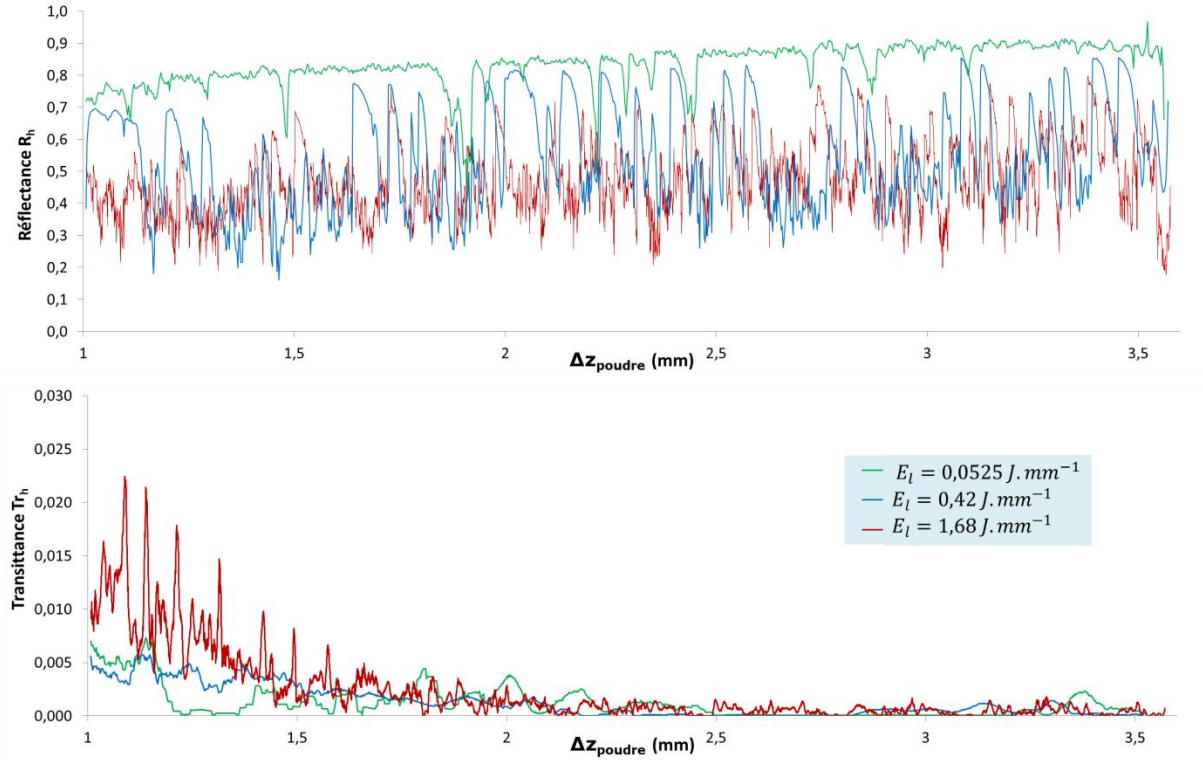


Figure IV-32 : Variation des propriétés radiatives en fonction de l'épaisseur de poudre pour le système {PA} pour différentes énergies linéiques

En dessous de l'épaisseur d'opacité, Tr_h diminue pour une épaisseur croissante de poudre, de manière à suivre très probablement une atténuation de type Beer-Lambert. Cependant, la gamme d'épaisseur relative à nos mesures et la limite de saturation du capteur en transmission ne nous permettent pas de vérifier l'applicabilité de cette loi d'atténuation pour le milieu granulaire.

IV.2.2.4 Application des modèles optiques

Le régime 1D fondu correspond à un état liquide reposant sur un solide. Pour une même énergie linéique, la diminution de l'épaisseur de l'échantillon mènera donc à un accroissement de l'épaisseur solide sous-jacente. Les « manip coin » du régime 1D montrent alors qu'avec l'augmentation de l'épaisseur de poudre, les coefficients linéaires de l'état fondu α_f diminuent pour les différents échantillons *(Figure IV-33 pour le substrat {SAZ}, Figure IV-34 pour {PAZ} et Annexe D-5pour {PA}).* Les coefficients linéaires α_{abs} des échantillons dans leur état solide quant à eux ne varient pas avec l'épaisseur de poudre.
Pour le **substrat dense** {SAZ} *(Figure IV-33)*, malgré la dispersion liée au traitement du signal, on observe la supériorité du coefficient d'absorption pour les lignes de fusion entièrement fondues (V200 et V400) par rapport aux cas partiellement fondus (V800 et V1000) : $\alpha_f > \alpha_{abs}$. Cette différence est à l'image de celle observée pour les coefficients en régime statique des états fondus α_f^{0D} et non fondus α_{abs}^{0D}.

La discontinuité aléatoire de lignes de fusion (à V800 et V1000) montre l'hétérogénéité du substrat et de son absorption. Les mesures lors des tirs statiques fournissent alors des propriétés optiques locales, ce qui peut expliquer les valeurs aléatoires obtenues pour l'état fondu de {SAZ} en *Figure IV-14*.

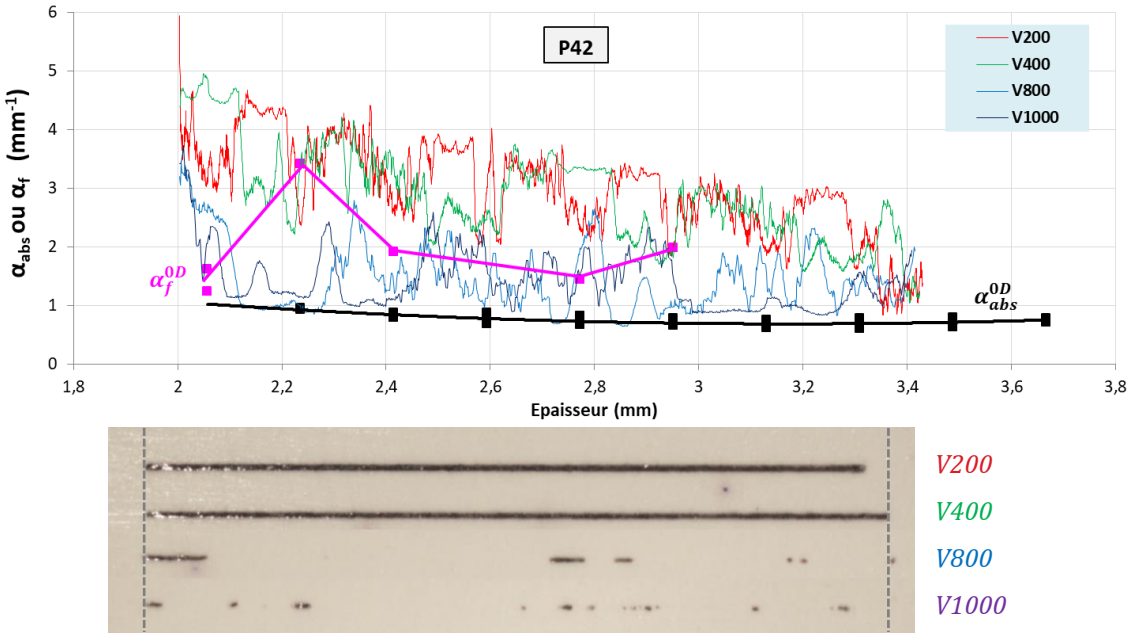
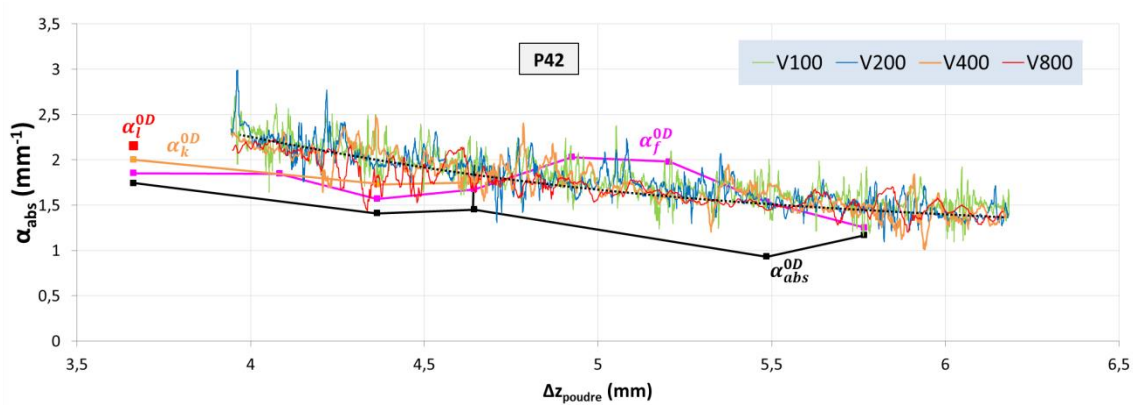
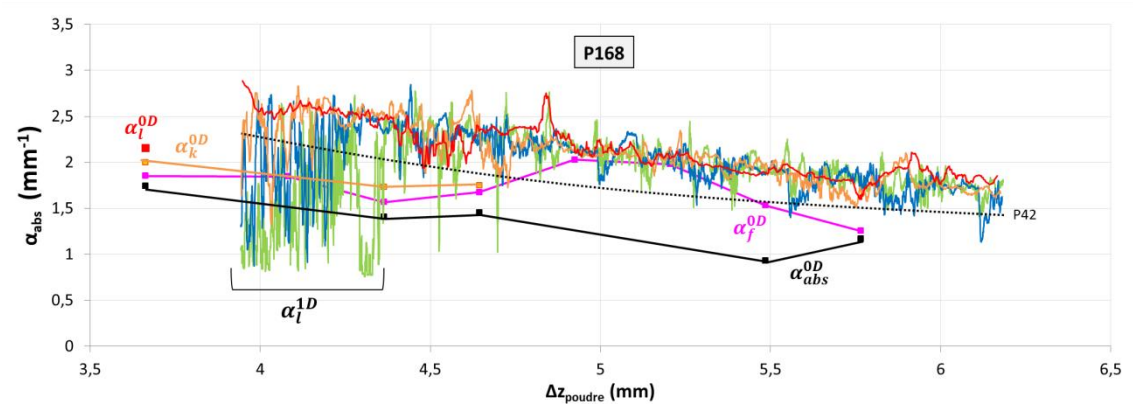


Figure IV-33 : Variation du coefficient d'absorption linéaire de {SAZ} en fonction de l'épaisseur du substrat pour P=42W. $\alpha_{abs}^{1D} = \alpha_f^{1D}$ pour les zones fondues, notamment pour V200 te V400.



a)



c)

Figure IV-34 : Variation du coefficient d'absorption linéaire en fonction de l'épaisseur de poudre pour {PAZ} a)P=42W et c)P=168W

Concernant le **milieu granulaire** {PAZ} - *Figure IV-34*, le coefficient d'absorption linéaire croit lorsque la puissance P augmente. Rappelons qu'avec l'augmentation de l'énergie linéique, un bain de fusion non ou peu fondu évolue vers une fusion continue puis vers un keyhole instable qui peut ensuite se stabiliser à plus forte énergie linéique. A forte énergie linéique (P168V100) et faible Δz_{poudre}, le lit de poudre fond sur toute son épaisseur. Le coefficient d'absorption diminue alors fortement : on passe d'un état fondu (liquide sur LDP) à une goutte de liquide déposée sur le substrat en verre, il semblerait alors que $\alpha_l^{1D} < \alpha_f^{1D}$. Or, α_l^{1D} est sous-estimée et doit être corrigé (comme l'as été α_l^{0D}) pour tenir compte de la réduction de l'épaisseur du LDP initiale avec le retrait et l'évaporation. En prenant en compte la correction, on aurait probablement $\alpha_f^{1D} < \alpha_l^{1D}$ *(Figure IV-20)* ce qui semble être en accord avec la configuration 0D et avec la forte absorbance intrinsèque du liquide.

La comparaison des coefficients d'absorption K et de diffusion S pour les régimes 1D et 0D à l'état non fondu *(Tableau IV-8)* pour les systèmes alumineux met en évidence que $\boldsymbol{K^{1D} > K^{0D}}$ et $\boldsymbol{S^{1D} > S^{0D}}$ **avec** $\boldsymbol{\frac{K^{1D}}{S} > \frac{K^{0D}}{S}}$ et $\boldsymbol{\alpha_{abs}^{1D} \geq \alpha_{abs}^{0D}}$. Ces valeurs justifient que les systèmes qui ne fondaient pas ou peu en 0D peuvent alors fondre en 1D, particulièrement pour le substrat dense {SA}, dont l'écart du ratio K/S entre le 0D et le 1D est le plus notable. C'est principalement l'effet de l'augmentation de K. Pour le milieu granulaire {PA}, le rapport K/S augmente également mais principalement par l'effet de l'augmentation de S. **Les différences entre les régimes 0D et 1D sont alors probablement guidées par la géométrie de l'interaction laser-matière (variation de l'angle d'incidence) ou de dissipation de l'énergie.** En outre, la différence d'interaction laser-matière entre ces régimes peut laisser entrevoir une différence avec le régime 2D. Ce point sera abordé au *§IV.4*.

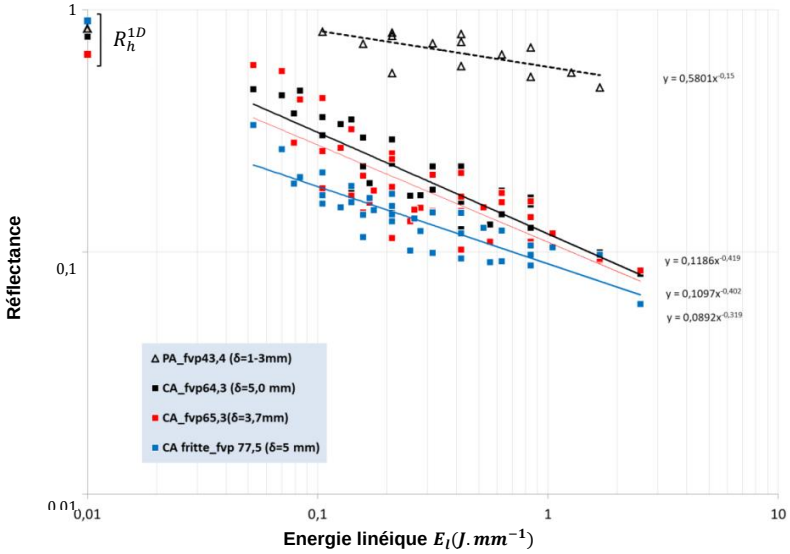
Tableau IV-8 : Comparaison des coefficients optiques 1D et 0D pour les systèmes alumineux

Echantillon	K	S	K/S	α_{abs}(mm^{-1})
PA–1D	379	10561	3,59E-02	2,857
PA–0D	0,93	990	9,41E-04	0,073
SA –1D	2851	1693	1,68	4,217
SA–0D	0,01	1328	7,36E-06	0,007
PA_SA–1D	418	11639	3,59E-02	3,148
PA_SA–0D	-	-	9,41E-04	1,253

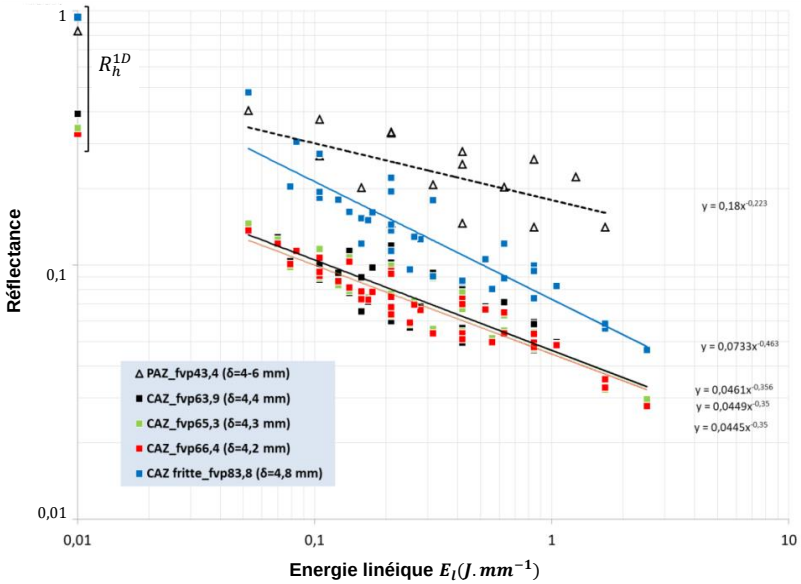
IV.2.3 Compacité

La variation de compacité sans modification de la taille de particules est obtenue en élaborant des compacts de poudre à différents taux de compaction à partir d'un même lot de particules de poudre. Les lits de poudres déposés sur lame de verre servent de comparaison pour les faibles fractions volumiques fv_p. Des compacts frittés servent quant à eux de comparaison aux fortes fractions volumiques mais signalons qu'une différence de taille de grains a été observée pour ces derniers et un réseau de ponts de matière connecte les grains, ce qui peut modifier l'interaction laser-matière *(§ II.2.1.6)*.
Les mesures 1D à l'état fondu pour une épaisseur semi-infinie montrent une nette **diminution de la réflectance avec l'augmentation de la fraction volumique de particules** *(Figure IV-35)* pour l'alumine et l'alumine-zircone. Cette tendance confirme les résultats de la littérature *(§III.3.4)*. On note que le compact fritté d'Al_2O_3-ZrO_2 ne suit pas cette tendance mais il est difficile d'attribuer cet effet uniquement à une diminution de la porosité ou à la modification du réseau connecté de grains. Il peut par contre être associé à un changement de microstructure à la fusion.

D'après la *Figure III.41.a*, (Faure 2004) indique qu'une fraction volumique de particules croissantes induit une augmentation de K/S (par l'accroissement de K). Nos calculs permettent de retrouver la même tendance pour K/S *(Figure IV-36)*. Ainsi, il est clair que **l'augmentation de la compacité favorise le caractère absorbant du lit de poudre avec la diminution de la réflectance.**

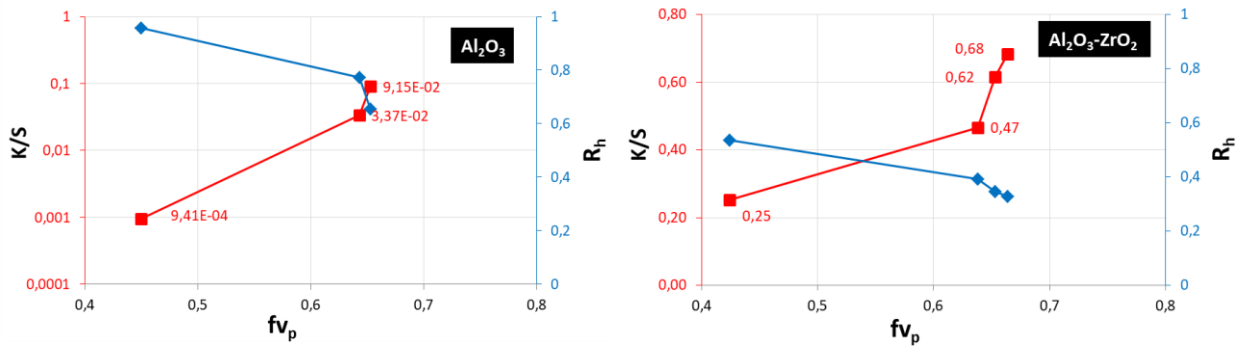


a)



b)

Figure IV-35 : Variation des réflectances en fonction de l'énergie linéique pour différentes fraction volumiques pour a) Al_2O_3 b) Al_2O_3-ZrO_2



a) b)

Figure IV-36 : Variation de K/S et de R_h en fonction de la fraction volumique de particules fv_p pour les milieux granulaires

L'application de l'équation *(III.108)* de (Griffith et Halloran 1994) – *(Figure IV-37)* , montre l'augmentation du coefficient d'extinction α_{ext} avec la fraction volumique de particules. Les valeurs calculées à partir de cette équation suivent la même tendance et sont du même ordre de grandeur que les valeurs calculées à partir des propriétés radiatives mesurées *(Figure IV-37)*.

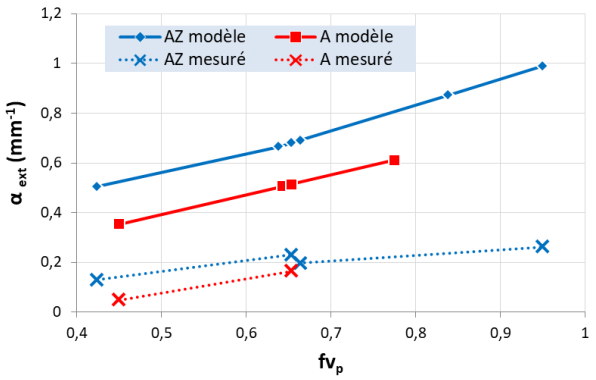


Figure IV-37 : Variation des coefficients d'extinction calculés d'après (Griffith et Halloran 1994) et d'après les propriétés radiatives mesurées en fonction de la fraction volumique de particules

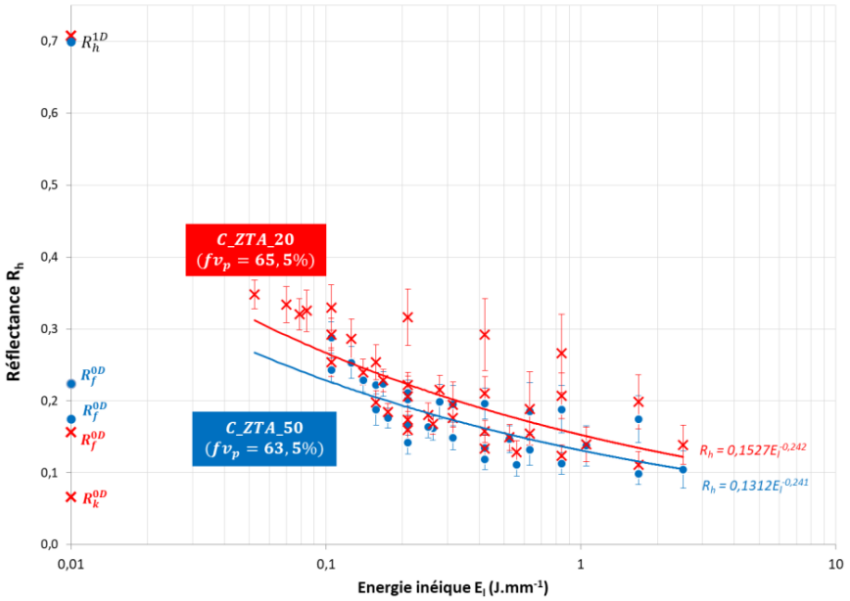
IV.2.4 Taille des particules

On mesure les propriétés radiatives des poudres compactées d'alumine renforcées par de la zircone ZTA, de granulométries bien distinctes : d_{50} varie entre 20 et 50 µm *(Figure IV-38 et Tableau IV-9)*. Au sein d'un lit de poudre, la compacité est rarement indépendante de la taille et de la distribution des particules. Les compacités ne sont donc pas égales mais elles restent très proches. Là encore les résultats correspondent à la littérature *(§III.3.4)* : **une taille moyenne de particules décroissante favorise la multi-réflexion** par l'augmentation du nombre d'interfaces réfléchissantes, ce qui diminue aussi le signal transmis (et l'absorbance est améliorée car $Tr_h << R_h$).

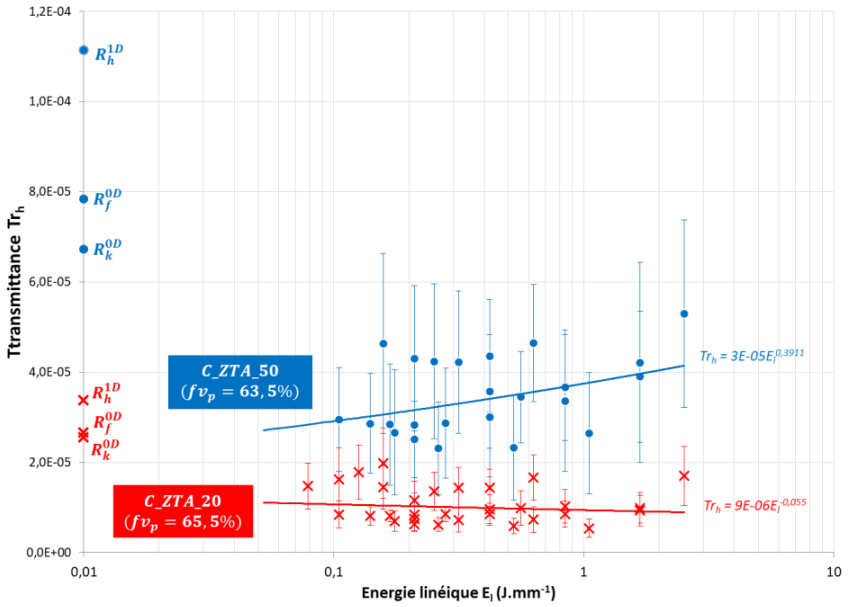
La variation du coefficient d'atténuation α_{ext} est très petite entre les deux granulométries. Néanmoins, α_{ext} semble être inversement proportionnel à la taille moyenne des particules de poudre pour les valeurs calculées à partir des mesures optiques. Cette tendance rejoint l'équation *(III.108)* de (Griffith et Halloran 1994). L'échantillon à plus petite taille de particules possède un caractère moins absorbant (K/S minimal), ce qui doit correspondre à une augmentation de S plus marquée que celle de K.

Tableau IV-9 : Valeurs optiques mesurées et calculées en configuration 0D pour les différentes tailles moyennes de particules

Echantillon	$d_{50}(\mu m)$	R_h^{1D} (%)	K/S	$\alpha_{ext}(mm^{-1}) - mesuré$	$\alpha_{ext}(mm^{-1}) - modèle$
CZTA_20 µm	20	60,8	0,13	2,06	0,61
CZTA_50 µm	50	57,4	0,16	2,00	0,59



a)



b)

Figure IV-38 : Variation des propriétés radiatives avec l'énergie linéique pour différentes tailles de particules

IV.2.5 Conclusion pour les matériaux céramiques de réception

L'étude en **statique (0D)** permet d'identifier facilement les propriétés radiatives de chacun des 5 régimes définis [solide ou non fondu, fondu, keyhole, ablation (dernière goutte de liquide) et la fin d'absorption (substrat sous-jacent non fondu)] - *Tableau IV-10*. Cette étude permet également la mise en évidence de l'effet de $\boldsymbol{P}$ et de $\boldsymbol{\Delta z_{poudre}}$.

- La **multi-réflexion** issue du LDP et de la rugosité de surface provoque l'augmentation de l'absorbance d'autant plus que le matériau est intrinsèquement absorbant et que Δz_{poudre} augmente :
  - pour les **céramiques oxydes** (semi-transparents), les pertes radiatives (augmentation de la réflectance et faible diminution de la transmittance) sont compensées par une diminution de l'absorbance du LDP.

- pour les **métaux** (absorbants), les pertes radiatives sont compensées par une augmentation de l'absorption du LDP.

- Il n'a pas été identifié de nette influence de la **puissance P**.
- Le passage à l'état fondu pour les matériaux transparents augmente l'absorbance des milieux denses et des milieux granulaires également, par l'**absorption intrinsèque du liquide. Les coefficients d'absorption se classent alors comme suit : $\alpha_l > \alpha_f > \alpha_{abs}$.**
- Dans le cas des **systèmes mixtes** {LDP+Substrat} à l'état non fondu, plus la quantité de rayonnement incident atteignant le substrat est élevée, plus le caractère réfléchissant de l'interface est accentué, et plus la multi-réflexion globale du système est augmentée ainsi que légèrement l'absorption.
- Les valeurs de **K, S, α_{ext} et α_{abs}** sont en accord avec la gamme de valeurs définie dans la littérature.
  - Les valeurs de α_{abs} calculées par le modèle homogène équivalent au modèle hétérogène sont en accord avec les valeurs calculées par le modèle hétérogène α_{ext}
  - Les céramiques oxydes de réception sont **diffusantes** (K > S).
- L'**alumine** de l'étude présente un caractère plus diffusant (S) et moins absorbant (K) que l'**alumine-zircone**. Ceci est cohérent avec la teneur plus importante en impuretés de ce dernier matériau. Le substrat d'alumine {SA} réfléchit fortement et absorbe très peu le rayonnement incident. La transmission globale du système mixte {PA_SA}, $Tr_{h,ps}$ est non négligeable et il y a un fort effet de l'interface liée à la nature réfléchissante du substrat {SA}. Ainsi, le système {PA_SA} fond alors que le substrat seul {SA} ne fond pas, même à forte puissance.

Les régimes identifiés pour les lignes de fusion (1D) sont équivalents aux régimes vus en statique (0D) à la différence que les lignes de fusion sont soumises à des instabilités géométriques liées à la dynamique du bain (balling, pincement, keyhole instable…) et aux impuretés locales des milieux irradiés.
Les réflectances à 0D et 1D à l'état solide ne sont pas toujours équivalentes, notamment pour le substrat d'alumine qui fond en 1D et non en 0D ($R_h^{0D} > R_h^{1D}$). Bien qu'il existe une équivalence entre 0D et 1D, des différences subsistent donc entre les deux types d'interaction qui sont alors probablement guidés par une géométrie de l'interaction laser-matière ou de dissipation de l'énergie différentes - *Tableau IV-11*.

L'étude en **dynamique 1D** définit les propriétés de l'interaction laser-matière du procédé LBM et permet l'identification des effets de **V** et de **E_l**, surtout pour l'état fondu **:**

- La réflectance de l'état fondu R_f^{1D} est encadrée par celle de l'état solide à faible énergie linéique et celle du domaine keyhole (0D) à forte énergie linéique : $R_k^{0D} \leq R_f^{1D} \leq R_h^{1D}$. L'augmentation de V associée à la diminution du volume de bain, induirait alors une interaction majoritaire avec le LDP non fondu en amont du bain.
- La réflectance à l'état fondu R_f^{1D} est inversement proportionnelle à E_l et donc au temps d'interaction. La variation de la transmittance à l'état fondu Tr_f^{1D} suivant E_l va dépendre de la nature du système : pour les substrats denses et pour les systèmes mixtes, Tr_f^{1D} est inversement proportionnelle à E_l tandis que pour le milieu granulaire c'est l'inverse.
- A l'état fondu, les milieux pulvérulents induisent une multi-réflexion supérieure au milieu dense avec une absorbance plus faible. L'absorbance du milieu mixte {LDP+Substrat} devient supérieure à celle des milieux isolés pour le milieu le plus intrinsèquement transparent (alumine) par le piégeage du rayonnement à l'interface (diminution de la réflectance). Dans le cas de l'alumine-zircone, le lit de poudre étant déjà relativement absorbant, l'ensemble {LDP+Substrat} absorbe autant que le LPD isolé.
- α_{abs} diminue avec l'épaississement du LDP diffusant par l'accentuation du phénomène de **multi-réflexion,** comme en 0D.
- α_{abs} augmente lors du passage de l'état solide à liquide, comme à 0D, signe de l'absorption intrinsèque du liquide.
- Un signal est transmis au substrat, aux états solide et fondu et doit contribuer à la fusion du substrat.
- Concernant la **compacité et la taille de particules du lit de poudre** :
  - Les tendances sont en accord avec la littérature

- La compaction favorise l'absorption du LDP par diminution de la réflectance : K et α_{ext} augmentent.
- Une taille moyenne de particules décroissante favorise la réflexion par l'augmentation du nombre d'interfaces réfléchissantes, ce qui diminue aussi le signal transmis : α_{ext} augmente et K/S diminue.

Tableau IV-10 : Tendances résumées des propriétés radiatives des systèmes purs pour la configuration 0D. En rouge les différence entre alumine et alumine-zircone

Configuration 0D Echantillons d'épaisseur identique ($\delta \approx 4\ mm$)		R_h	Tr_h	A_h
Al_2O_3	état solide	$R_{h,ps} < R_{h,p} < R_{h,s}$	$Tr_{h,p} < Tr_{h,ps} < Tr_{h,s}$	$A_{h,ps} > A_{h,p} > A_{h,s}$
	état fondu	Le LDP ou le substrat ne fondent pas ou très difficilement		
	solide vs. fondu	$R_{f,ps} < R_{h,ps}$	$Tr_{f,ps} < Tr_{h,ps}$	$A_{f,ps} > A_{h,ps}$
Al_2O_3-ZrO_2	état solide	$R_{h,ps} < R_{h,p} \approx R_{h,s}$	$Tr_{h,ps} < Tr_{h,p} < Tr_{h,s}$	$A_{h,ps} > A_{h,p} \approx A_{h,s}$
	état fondu	$R_{f,ps} < R_{f,p} < R_{f,s}$	$Tr_{h,ps} \leq Tr_{h,p} \leq Tr_{h,s}$	$A_{f,ps} > A_{f,p} > A_{f,s}$
	solide vs. fondu	$R_f < R_h$	$Tr_{f,ps} > Tr_{h,ps}$ et $Tr_{f,p} > Tr_{h,p}$ $Tr_{f,s} < Tr_{h,s}$	$A_f > A_h$
Métaux	état solide	$R_{h,s,poli} \gg R_{h,s} > R_{h,p}$	Pas de signal transmis	$A_{h,s,poli} \ll A_{h,s} < A_{h,p}$
	solide vs. fondu	$R_{f,s} > R_{h,s}$ $R_{f,p} < R_{h,p}$	Pas de signal transmis	$A_{f,s} > A_{h,s}$ $A_{f,p} < A_{h,p}$

Tableau IV-11 : Tendances résumées des propriétés radiatives des systèmes purs pour la configuration 1D. En rouge les différences entre alumine et alumine-zircone, en bleu les différences avec la configuration 0D.

Configuration 1D Echantillons d'épaisseur identique ($\delta \approx 4\ mm$)		R_h	Tr_h	A_h
Al_2O_3	état solide	$R_{h,s} < R_{h,ps} < R_{h,p}$	$Tr_{h,p} < Tr_{h,s} < Tr_{h,ps}$	$A_{h,ps} > A_{h,s} \geqslant A_{h,p}$
	état fondu	$R_{f,p} \geq R_{f,ps} \geq R_{f,s}$ $R_f \propto 1/E_l$	$Tr_{f,p} < Tr_{f,s} < Tr_{f,ps}$ $Tr_{f,s}, Tr_{f,ps} \propto 1/E_l$ et $Tr_{f,p} \propto E_l$	$A_{f,ps} > A_{f,s} > A_{f,p}$ $A_f \propto 1/E_l$
	solide vs. fondu	$R_k^{0D} \leq R_f^{1D} \leq R_h^{1D}$	-	-
Al_2O_3-ZrO_2	état solide	Etat solide quasi inexistant, difficile à mesurer		
	état fondu	$R_{f,p} \geq R_{f,ps} \geq R_{f,s}$ $R_f \propto 1/E_l$	$Tr_{f,s} > Tr_{f,ps} > Tr_{h,p}$ $Tr_{f,s}, Tr_{f,ps} \propto 1/E_l$ et $Tr_{f,p} \propto E_l$	$A_{f,s} > A_{f,p} \approx A_{f,ps}$ $A_f \propto 1/E_l$
	solide vs. fondu	$R_k^{0D} \leq R_f^{1D} \leq R_h^{1D}$	-	-
Métaux	état solide	Etat solide quasi inexistant, difficile à mesurer		
	Etat fondu	$R_p \leq R_s$		

IV.3 Mélanges céramiques – absorbants

Nous avons vu que les matériaux purs n'absorbaient pas ou peu le rayonnement avec une amorce de la fusion qui est très difficile pour l'alumine en régime statique. Dans la suite de l'étude, l'alumine pure est mélangée à des absorbants éphémères (carbone et SiC-β) ainsi que métallique (Inconel 625). Ces mélanges font l'objet des mêmes études à 0D et à 1D que les matériaux purs et il sera mis en évidence l'effet de la nature et teneur en absorbant sur l'interaction laser-matière. L'Al_2O_3-ZrO_2 ne sera pas mélangée avec les absorbants car la poudre de réception est déjà contaminée par des éléments absorbants et offre une fenêtre d'énergie linéique satisfaisante pour la construction de pièces.

IV.3.1 Formation d'un bain statique (0D)

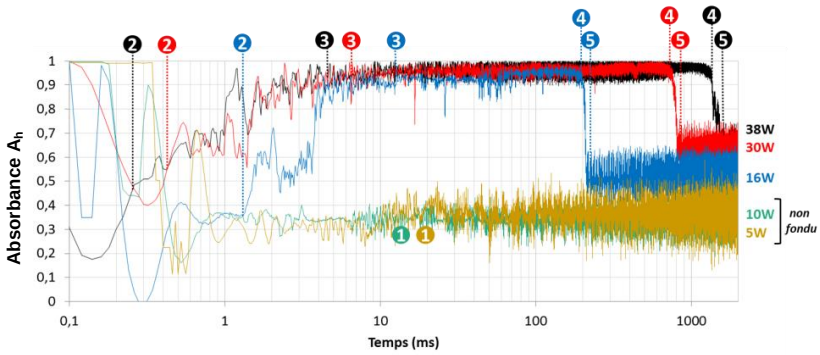
IV.3.1.1 Régimes d'interaction laser-matière

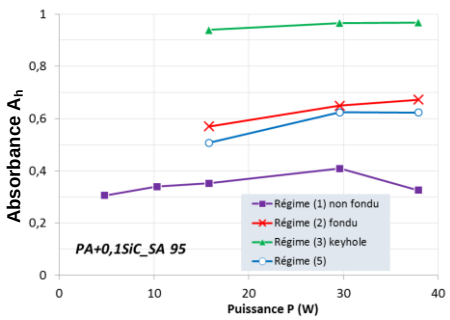
Pour les différents mélanges de l'Al_2O_3 avec les absorbants, on retrouve les domaines énoncés à la *Figure IV-5*. L'ajout des absorbants permet la fusion des systèmes mixtes {LDP+Substrat} jusqu'au régime (5) - *(Figure IV-39)*. On rappelle que pour le système pur {PA_SA}, l'interaction laser-matière se limitait au régime solide (1) et pouvait difficilement atteindre les régimes (2) et (3). Les absorbants facilitent donc la fusion de la céramique pure du mélange [régime (2)]. L'échauffement des absorbants et leur combustion sous air permet de fondre la céramique par conduction et par rayonnement à la manière d'un corps noir, suivant une large gamme de longueurs d'onde. Au régime keyhole (3), les absorbants ont déjà été consommés. L'évaporation du liquide se trouvant en régime (4), laisse place au régime (5) correspondant à l'interaction du laser avec le substrat seul {SA}, sous-jacent non fondu et transparent. Le régime (4) est initié au même temps d'interaction pour une puissance donnée quelle que soit la nature de l'absorbant, SiC-β ou C.
Signalons que le système mixte céramique-métal {PA+INCO_SA+INCO} correspond à un dépôt de LDP sur un substrat fritté de même nature. L'interaction se limite donc au régime (3) car le substrat est aussi absorbant que la poudre et l'effet d'interface doit être négligeable *(Figure IV-39.g)*. Il s'ensuit que les propriétés radiatives du LDP sont aussi importantes que celles du substrat dense et ce d'autant plus que la composition en absorbant est quelque peu différente.

IV.3.1.2 Effets des paramètres du procédé sur les propriétés radiatives

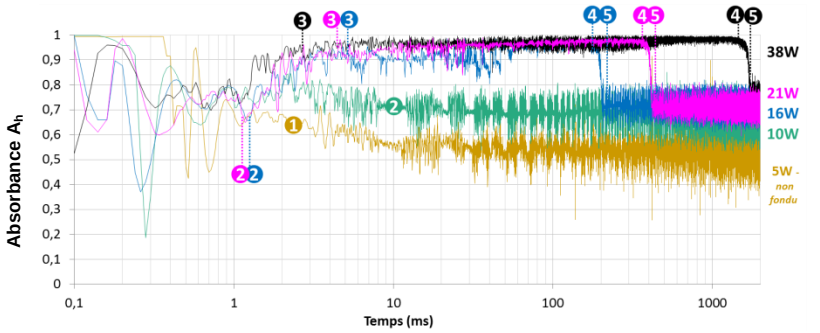
a) Puissance

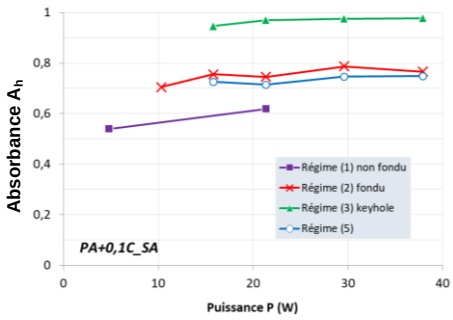
L'absorbance des régimes solide (1) et fondu (2) varie nettement entre les différents mélanges *(Figure IV-39.b-d-f-h et Figure IV-40)*. Pour tous les systèmes mixtes **{LDP+Substrat}**, l'absorbance semble augmenter légèrement avec la puissance P quel que soit le système et l'état (fondu on non) et $A_k > A_f > A_h$. L'absorbance est majoritairement guidée par la réflectance ($A_h \approx 1 - R_h$) car $Tr_h \leq 10^{-2}$ *(Figure IV-40)*. Toutefois, signalons que la transmittance du régime fondu est inversement proportionnelle à P (donc avec la montée en température), et le matériau absorbe davantage le rayonnement.



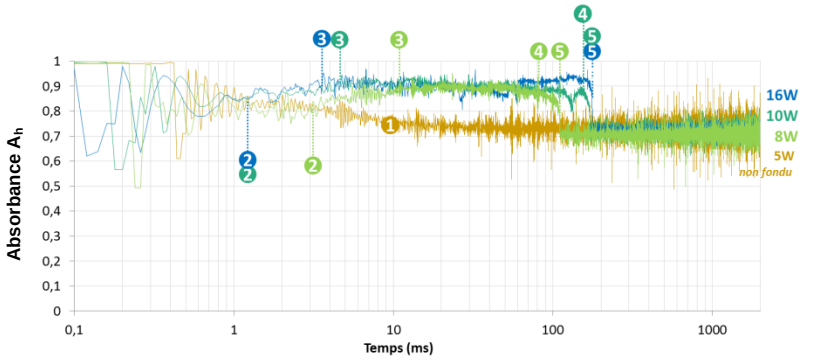


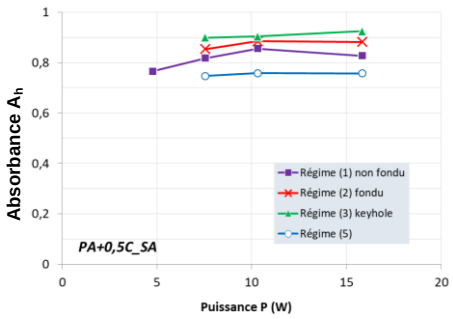
a) **PA+0,1SiC_SA** b)



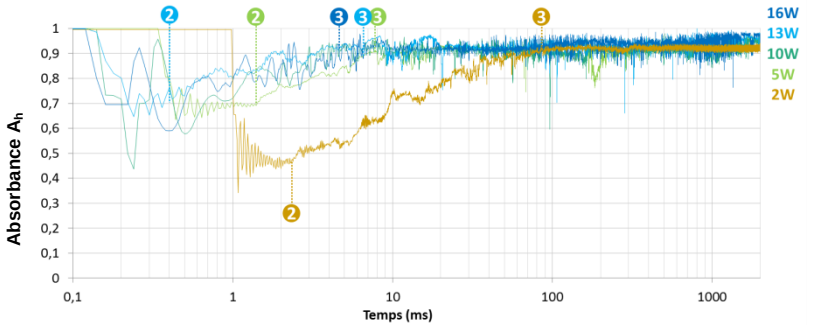


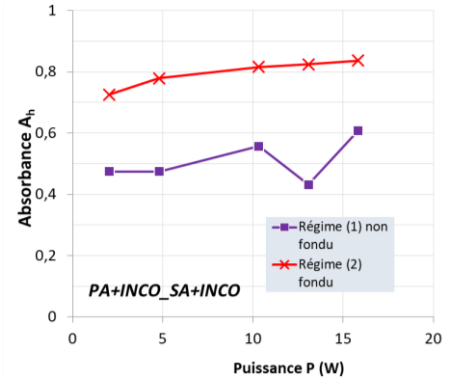
c) **PA+0,1C_SA** d)





e) **PA+0,5C_SA** f)





g) **PA+INCO_SA+INCO** h)

Figure IV-39 : Evolution de l'absorbance en fonction du temps (a-c-d-g) et en fonction de la puissance (b-d-f-h) selon les régimes d'interaction pour différentes nature et teneur en absorbants d'ensembles {LDP+Substrat}

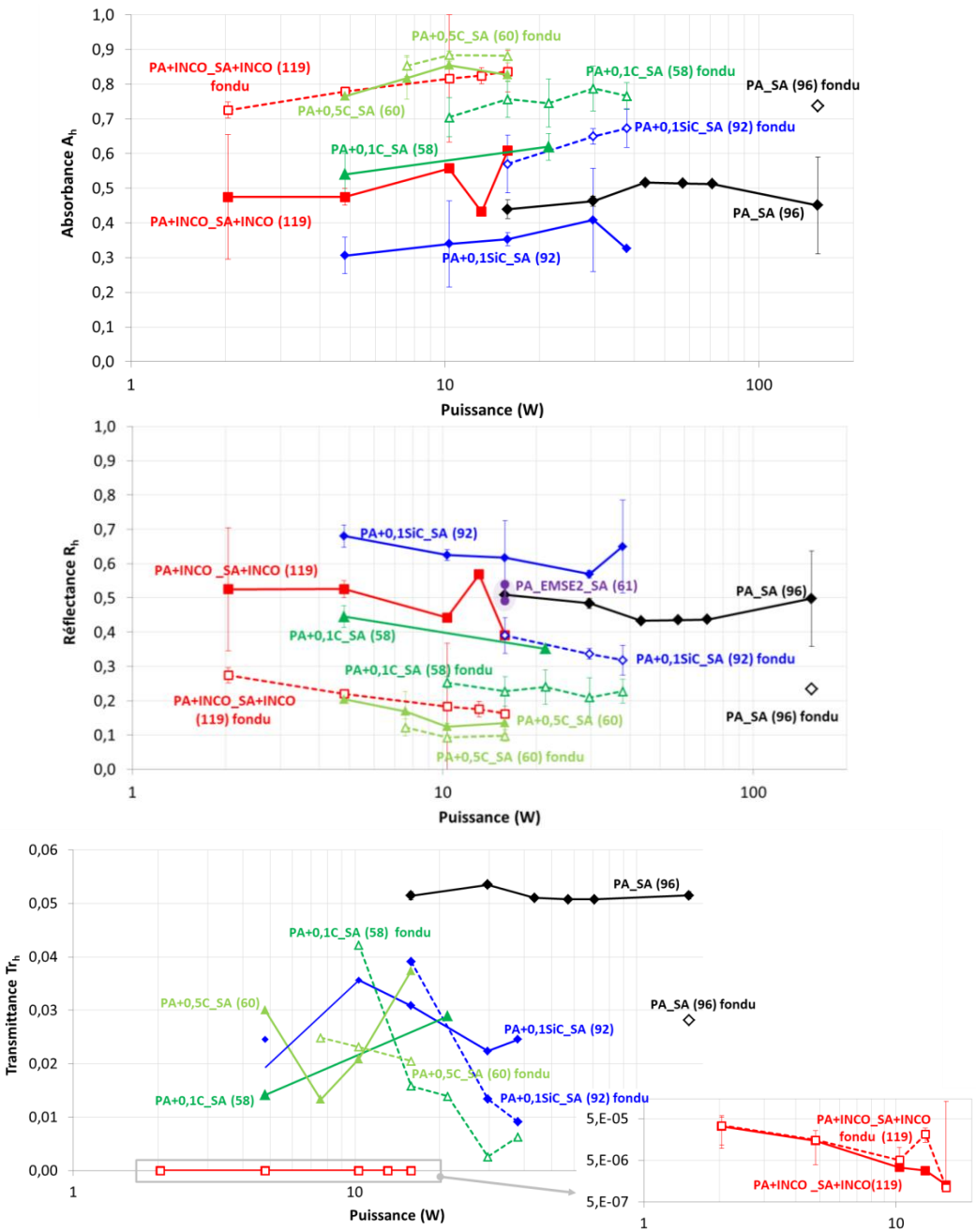


Figure IV-40: Propriétés radiatives des configurations {LDP+substrat} en fonction de la puissance pour différentes nature et teneur en absorbants. Les nombres entre parenthèse correspondent à la valeur de Δz_{poudre} de chaque système

b) Epaisseur de poudre

En *Figure IV-41* sont présentées les propriétés radiatives des **LDP autoportés** qui vont permettre l'application des modèles optiques hétérogènes. Il ne semble pas y avoir de corrélation entre les propriétés radiatives et l'épaisseur de poudre Δz_{poudre} aux valeurs étudiées, sauf pour la poudre d'alumine pure {PA} qui est le système le plus transparent *(IV.2.1.3c)*. Pour les autres systèmes, le domaine d'opacité est valable pour $\Delta z_{poudre} > 1\ mm$. Leur absorbance est en générale supérieure à celle de la poudre d'alumine pure {PA} (à contrario R_h et Tr_h sont inférieures). Par ailleurs, avec la diminution de l'épaisseur de poudre, l'absorption de la poudre pure {PA} devient supérieure à celle de la poudre à 0,1%SiC.

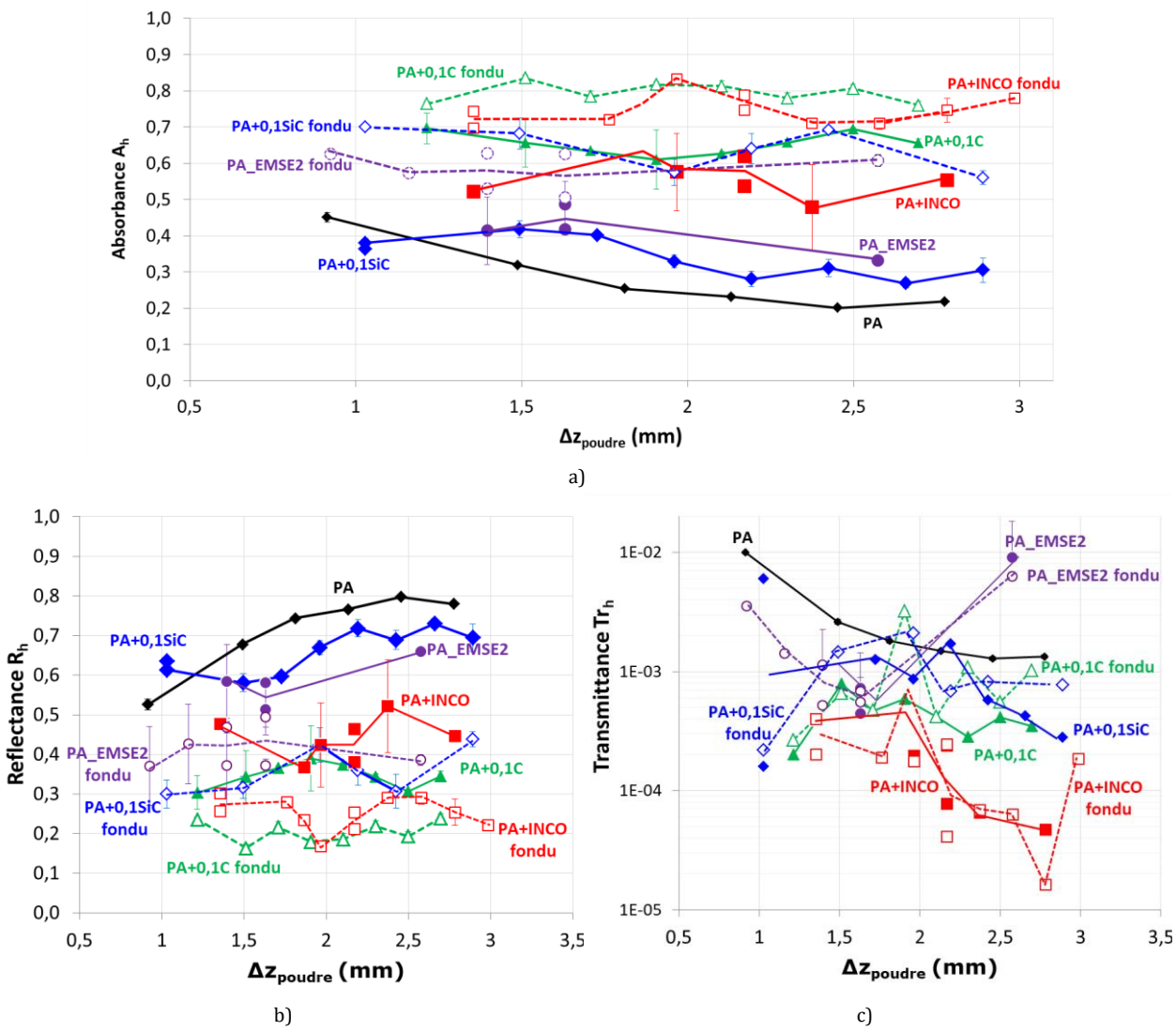
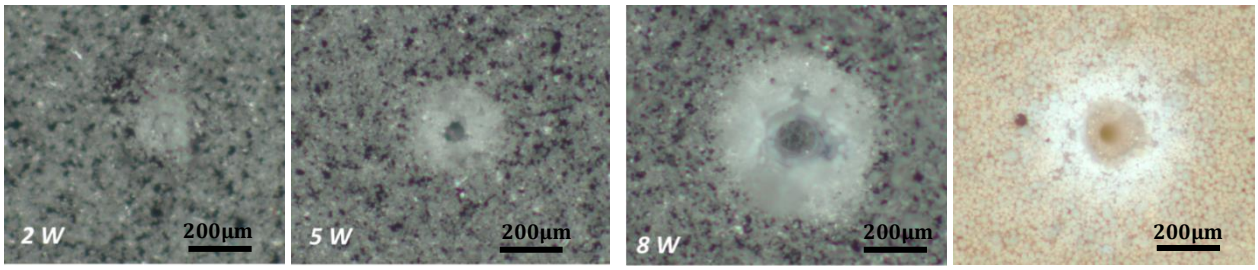


Figure IV-41 : Propriétés radiatives mesurées des LDP mélangés à des absorbants en fonction de l'épaisseur de poudre Δz_{poudre}

IV.3.1.3 Effet des absorbants

a) A l'état solide

Pour les mélanges avec le carbone, les tirs statiques 0D révèlent une ZAT dénuée de carbone *(Figure IV-42)*, ce qui révèle que la combustion du carbone sous air peut avoir lieu avant la fusion de la poudre. Ce phénomène explique l'atténuation de l'absorbance qui a lieu à l'état solide [régime (1)], suite à la consommation du carbone (pour les faibles puissances *Figure IV-39.c cas 5-10 W, et Figure IV-39.e cas 5-8 W)*. Cette tendance n'est pas retrouvée avec les autres absorbants, ce qui indique que le carbone absorbe plus efficacement le rayonnement laser que le SiC. En effet, nous avons vu que l'énergie de dissociation et la température de sublimation du SiC sont inférieures à celles du noir de carbone *(§II.3.3.1)*. Ceci signifie que pour des conditions opératoires identiques, l'absorption du carbone et donc son échauffement doivent être supérieurs à ceux du SiC. De plus, le SiC se décompose en SiO gazeux avant de se recombiner en SiO_2 solide qui absorbe nettement moins le rayonnement d'après la littérature *(Tableau III-5)*. Cette succession d'étapes peut alors venir perturber l'interaction laser-matière globale.



a) b) c) d)

Figure IV-42: Tirs statiques 0D à différentes puissances pour a-c) PA+1C_SA et d) PA_EMSE2_SA

Par comparaison du cas pur avec le mélange avec le **SiC-β**, on remarque que leurs propriétés radiatives sont très proches :

- Dans le cas du LDP suspendu *(Figure IV-41)*, le gain en absorbance fourni par l'ajout de l'absorbant SiC-β est faible. Aux faibles épaisseurs de poudre, on remarque même que l'ajout de 0,1%m. SiC diminue l'absorption.
- Dans le cas du LDP déposé sur le substrat *(Figure IV-40)*, le mélange avec le SiC-β {PA+0,1SiC_SA} absorbe même légèrement moins que le cas pur {PA_SA} sur toute la gamme d'épaisseur bien que les valeurs restent très proches et dispersées.

L'ajout de 0,1%m. de SiC déstabilise donc l'absorbance par rapport au cas pur. Il permet de diminuer la transmittance mais tend aussi à augmenter la réflectance.

Pour tous les autres mélanges avec les absorbants, leur absorbance est supérieure au cas pur, avec la réduction des réflectances et transmittances *(Figure IV-40 et Figure IV-41)*.

Signalons également que la présence du substrat {SA} très réfléchissant augmente la réflectance vis-à-vis des lits de poudre suspendus.

Le LDP suspendus à 0,1%m.C et le mélange céramique-métal sont les mélanges les plus absorbants, et les systèmes à 0,1%m.SiC-β et EMSE sont les moins absorbants pour une même épaisseur de poudre. La réflectance R_h diminue fortement avec les teneurs en carbone et la transmittance Tr_h est très réduite pour les mélanges céramique-métal. Les mélanges à base de carbone favorisent donc l'absorbance par l'atténuation de la réflectance tandis que le mélange céramique-métal, favorise principalement l'absorbance par diminution de la transmittance. **L'absorbance est maximale pour les mélanges à base de carbone, et l'effet est d'autant plus marqué que la teneur en carbone est forte.**

Les propriétés radiatives moyennes à l'état solide des systèmes mixtes pur {PA_SA}, et avec absorbant {PA+0,1C_SA} et {PA+0,1SiC_SA} sont décomposées en *(Figure IV-43)* après application des *équations (III.51) et (III.52)*. Comme vu précédemment l'absorbance du LDP isolé est maximale pour le mélange à base de C et minimale pour le mélange avec le SiC-β. Malgré une épaisseur plus fine à la fois du LDP et du substrat pour le système {PA+0,1C_SA}, on note que son absorbance totale $R_{h,ps}$ est favorisée par rapport aux deux autres systèmes. Les différences d'épaisseurs des substrats peuvent être négligées.
Là encore, on retrouve que la réflexion globale des systèmes mixtes est toujours supérieure à celle des LDP isolés ($R_{h,ps} > R_{h,p}$) par contribution de la réflexion à l'interface avec le substrat {SA} qui est très réfléchissant. Cette augmentation de la réflectance globale semble d'autant plus importante que le lit de poudre est transparent (donc transmet le rayonnement), elle s'exprime par $R_{h,ps} - R_{h,p}$, soit :

- 28 % pour l'alumine pure {PA_SA} avec $Tr_{h,p} = 37\%$
- entre 9% et 14% pour le système contenant du carbone {PA+0,1C_SA} avec $Tr_{h,p} = 12 - 17\%$
- entre 0% et 16% pour le système contenant du carbure de silicium {PA+0,1SiC_SA} avec $Tr_{h,p} = 4 - 21\%$.

Pour ce dernier système, l'association d'une faible absorbance du LDP et d'une augmentation de la réflectance globale de l'ensemble {LDP+Substrat} liée au substrat très réfléchissant fait de ce système un

très mauvais choix pour garantir la stabilité de construction. **Bien que l'ajout de 0,1%m.SiC permette la fusion de l'alumine, il ne garantit pas une interaction laser-matière satisfaisante par la part conséquente de rayonnement réfléchi et la faible absorption.** Etant donné ces valeurs, il parait même surprenant de pouvoir fondre l'alumine. C'est la combustion de l'absorbant et son rayonnement subséquent à la manière d'un corps noir suivant une large gamme de longueurs d'onde qui permettrait de justifier la fusion.

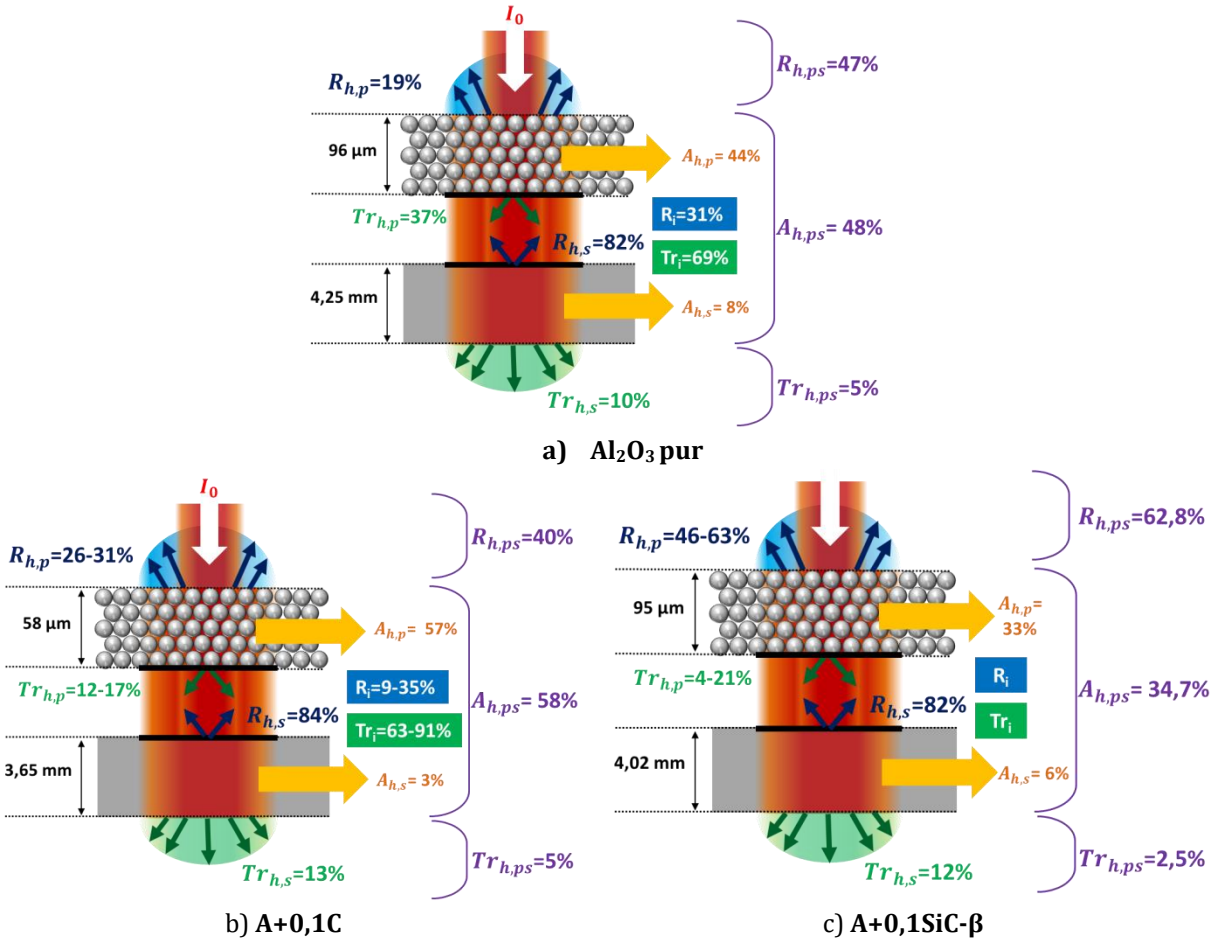


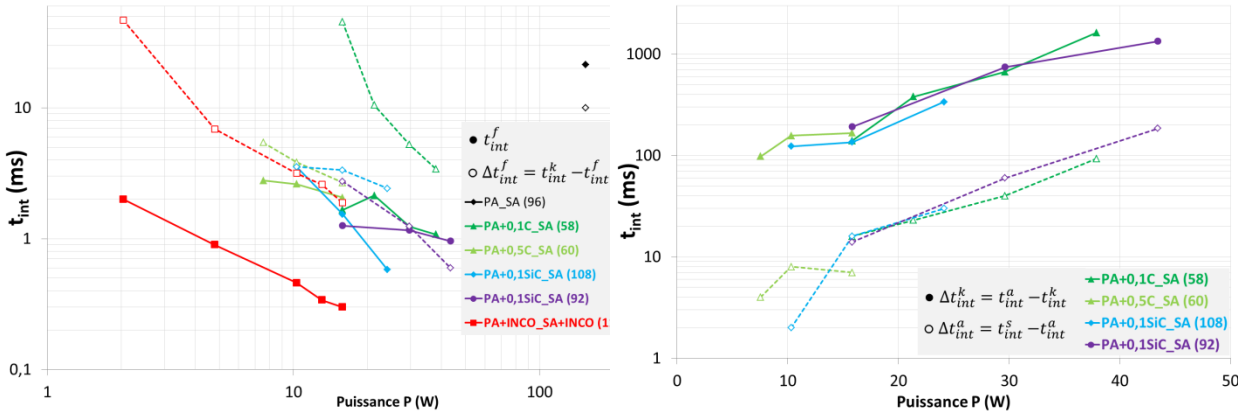
Figure IV-43 : Bilan des propriétés radiatives pour les systèmes isolés et combinés

b) A l'état fondu

Les absorbants permettent donc la fusion du LDP pur {PA} qui fond difficilement par des mécanismes complexes. Une fois la fusion atteinte, pour tous les systèmes mixtes {LDP+Substrat} *(Figure IV-40)* et les LDP suspendus *(Figure IV-41)*, l'absorbance à l'état fondu est toujours supérieure à l'état non fondu : $A_f > A_h$. De plus, les tendances de l'état fondu sont similaires à celles de l'état non fondu, à savoir, l'absorbance des mélanges carbonés est grande, et d'autant plus que la teneur en carbone est élevée. De même, l'absorption du mélange céramique–métal est très élevée à l'état fondu. Son absorption est guidée par celle du métal liquide (absorbant à la longueur d'onde), qui s'évapore moins facilement que les absorbants C et SiC. L'absorbance du système à 0,1%m.SiC-β est quant à elle minimale, comme celle du système carboné EMSE par rapport aux autres systèmes mais elles restent toutefois supérieures à l'absorbance à l'état solide.

IV.3.1.4 Equivalence statique/dynamique et domaine de stabilité 1D

Le temps d'interaction jusqu'à la fusion t_{int}^{f} et la durée entre la fusion et le keyhole Δt_{int}^{f} diminuent avec la puissance *(Figure IV-44.a et Figure IV-39)*. Pour tous les systèmes mixtes {LDP+Substrat} mélangés, la fusion et le keyhole sont amorcés rapidement et pour $P \leq 16\ W$. Les puissances d'amorce de la fusion sont les plus faibles pour le mélange céramique-métal (P=2W) et le mélange à 0,5%m.C (P=7,5 W). A l'état solide, l'absorption et l'échauffement sont donc les plus efficaces pour ces systèmes. Pour une puissance donnée, par exemple P=16W, les temps d'interaction les plus courts sont obtenus pour le mélange céramique-métal ($t_{int}^{f} = 0{,}3\ ms$), et les valeurs pour les autres systèmes sont très proches ($1{,}2\ ms < t_{int}^{f} < 2\ ms$). L'échauffement à l'état solide est donc très efficace pour le mélange céramique-métal. L'échauffement est très similaire entre les autres systèmes, bien qu'il semble qu'**une teneur en absorbant croissante ou une augmentation de l'épaisseur de poudre augmente légèrement l'échauffement.**



a) b)

Figure IV-44 : Variation en fonction de la puissance du a) temps d'interaction du régime de fusion t_{int}^{f} (symboles pleins) et de la durée de la fusion Δt_{int}^{f} (symboles évidés) et b) durées des régimes keyhole Δt_{int}^{k} (symboles pleins) et ablation Δt_{int}^{a} (symboles évidés)

Les mélanges céramique-métal et ceux à 0,1%m.C permettent en plus d'un échauffement rapide, la plus longue durée de fusion hors keyhole (Δt_{int}^{f} est maximale). Ces observations sont à relier directement aux étendues des domaines de stabilité. Les temps d'interaction t_{int}^{f} et t_{int}^{k} conduisent à $E_{l,min}$ et $E_{l,k}$, les bornes de la fenêtre de construction 1D stable *(Equation IV.3 et Figure IV-45)*.

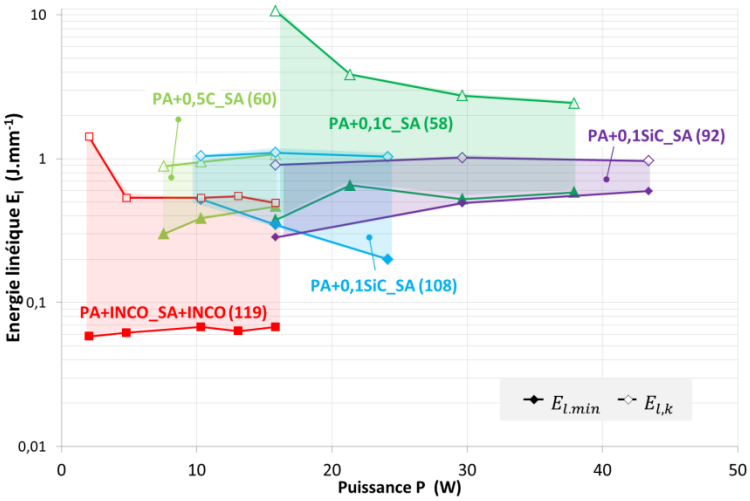


Figure IV-45 : Energies linéiques $E_{l,min}$ (symboles pleins) et $E_{l,k}$ (symboles évidés) et fenêtres de construction1D associées en fonction de la puissance pour les systèmes mélangés à des absorbants

L'amorce de la fusion et du keyhole pour le mélange céramique-métal est attribué à la fusion et à l'évaporation du métal, qui ont lieu à plus faible température que pour la céramique : le domaine de stabilité associé présente donc des bornes en énergies linéiques faibles ($E_{l,min} \cong 0{,}05\, J.mm^{-1}$ et $0{,}5 < E_{l,k} < 1{,}5\, J.mm^{-1}$). Le domaine le plus large en énergie linéique est celui de {PA+0,1C_SA} car la fusion hors keyhole est entretenue plus longtemps et les valeurs maximales $E_{l,k}$ sont relativement élevées ($2 < E_{l,k} < 10\, J.mm^{-1}$). On verra que cela est en parfait accord avec les résultats de l'étude paramétrique du *Chapitre VI*. Les autres systèmes 0,1%m.SiC et 0,5%m.C présentent des étendues de domaines similaires entre elles. **L'échauffement à forte teneur en absorbant éphémère est plus rapide, ce qui rend la fenêtre de construction stable plus étroite en énergie linéique par l'amorce rapide du keyhole. On note également que les domaines de stabilité se resserrent de manière générale avec l'accroissement de la puissance.**

Les durées des régimes de keyhole Δt_{int}^{k} et d'ablation Δt_{int}^{4} s'allongent quant à elles avec la puissance *(Figure IV-44.b)*. Cette tendance pourrait être proportionnelle au volume de bain fondu et à la quantité de matière évaporée en régime (4). Le régime keyhole peut également être mieux stabilisé à haute puissance. De plus, il ne semble pas y avoir de différences entre les différents mélanges : avant d'atteindre ces deux régimes (keyhole et ablation), le carbone et le SiC-β se sont déjà transformés.

IV.3.1.5 Application des modèles optiques

a) Modèle homogène: états solide et fondu

Le modèle homogène fournit les coefficients d'absorption des milieux non fondu α_{abs} et fondu α_f pour les LDP suspendus *(Figure IV-46.a)* et les systèmes mixtes {LDP+Substrat} *(Figure IV-46.b)*. Il est important de noter que les valeurs mesurées prennent en compte l'interaction sur toute l'épaisseur du substrat. Ainsi, en général, les coefficients d'absorption des systèmes mixtes {LDP+Substrat} sont inférieurs aux valeurs associées aux LDP isolés car il faut prendre en compte la part d'absorption réduite du substrat {SA} transparent.

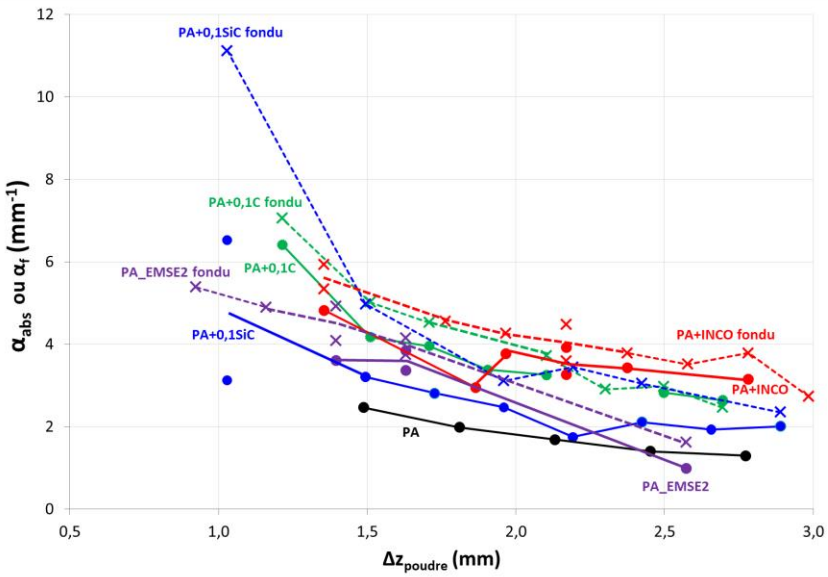
A **l'état solide**, les coefficients d'absorption des mélanges avec absorbants sont supérieurs à ceux de l'alumine pure pour une même épaisseur de poudre (LDP suspendu - *Figure IV-46.a*) ou pour une même puissance (systèmes mixtes - *Figure IV-46.b*). Seul le cas mixte {PA+0,1SiC_SA} présente le même coefficient d'absorption que le cas pur {PA_SA} à l'état non fondu. Cette observation rejoint les observations précédentes *(§IV.3.1.2)* : le SiC-β ne contribue pas de manière efficace à l'absorption du rayonnement laser.

Pour les **états fondus**, la valeur mesurée $\boldsymbol{\alpha_f}$ est moyennée entre le liquide présent en surface de l'échantillon et le solide restant en profondeur. On s'attend alors à des valeurs moyennes entre les valeurs théoriques du coefficient d'absorption du liquide α_l et du solide α_{abs}. Bien que α_f et α_{abs} soient proches et du même ordre de grandeur, on observe le plus souvent que $\boldsymbol{\alpha_f \geq \alpha_{abs}}$ pour chaque système.

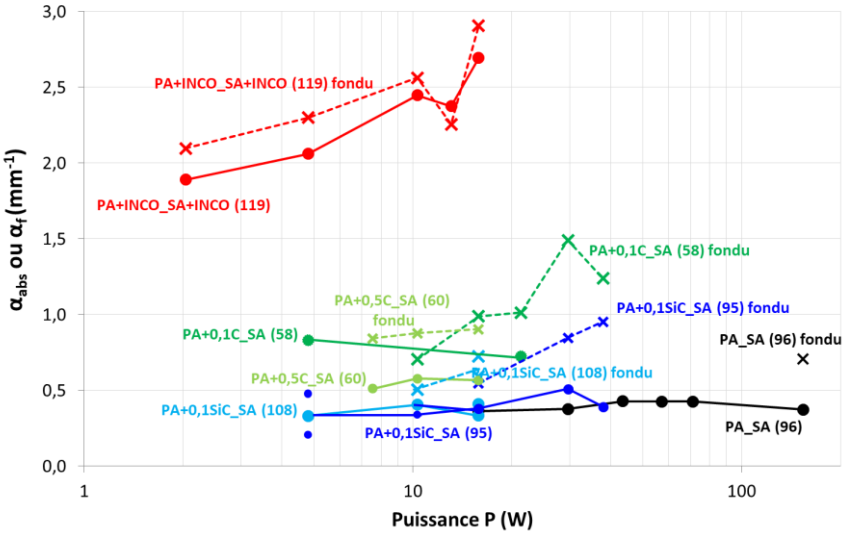
On rappelle, d'après la littérature qu'à l'état liquide pour les poudres de céramique oxyde, on a :

$$\begin{cases} \alpha_{abs}^{th}(poudres\ pures) \approx \mathbf{1,5\ mm^{-1}}\ (T = T_f) < {\alpha_l}^{th}(poudres\ pures) \approx {\alpha_l}^{th}(monocristal) < \mathbf{60\ mm^{-1}}\ (\mathrm{T} = 2700°\mathrm{C}) \\ \alpha_{abs}^{th}(poudres\ impures) \approx \mathbf{3,5\ mm^{-1}}(T = T_f) < {\alpha_l}^{th}\ (poudres\ impures) < \mathbf{90\ mm^{-1}}\ (\mathrm{T} = 2700°\mathrm{C}) \end{cases}$$

Les valeurs des coefficients α_f issues des mesures effectuées sont cohérentes avec l'intervalle de la littérature pour ${\alpha_l}^{th}$ pour les poudres pures et impures. De plus, on retrouve que $\alpha_f \geq \alpha_{abs}$, ce qui est similaire à ${\alpha_l}^{th} > \alpha_{abs}^{th}$.



a)



b)

Figure IV-46 : Coefficients d'absorption des états non fondu et fondu a) des LDP en fonction de l'épaisseur de poudre Δz_{poudre} (valeurs entre parenthèses) et b) des systèmes {LDP+Substrat} en fonction de la puissance P

Dans les deux configurations, LDP et {LDP+Substrat}, le mélange céramique-métal présente les valeurs les plus élevées de α_f *et* α_{abs}. Puis, juste en dessous, il est suivi des coefficients d'absorption des mélanges carbonés (0,1C, 0,5C et EMSE2) lesquels sont supérieurs à ceux des mélanges avec le SiC-β. Pour le cas mixte céramique-métal {PA+INCO_SA+INCO}, c'est la différence de substrat avec les autres échantillons mixtes qui confère le caractère très absorbant.

Aussi, les coefficients α_f *et* α_{abs} sont inversement proportionnels à Δz_{poudre} *(Figure IV-46.a)*. Nous verrons au paragraphe suivant que cette tendance peut s'expliquer avec la variation des coefficients K et S. Ces coefficients, et surtout α_f et $\alpha_{abs}^{PA+INCO}$ sont également proportionnels à la puissance (donc avec la vitesse d'échauffement) - *(Figure IV-46.a)*, contrairement aux systèmes purs. L'absorbant métallique doit fondre préalablement à la céramique, ce qui justifierai de l'augmentation du coefficient d'absorption solide $\alpha_{abs}^{PA+INCO}$ avec la puissance. Concernant les coefficients α_f, leur augmentation avec la puissance doit être corrélée avec la montée en température du bain.

b) Modèle hétérogène pour les milieux granulaires à l'état solide

Bien que contenant des absorbants, les LDP suspendus sont diffusants ($S > K$) - *Figure IV-47*. Néanmoins, les absorbants permettent l'augmentation de K/S de plusieurs ordres de grandeur avec comme ordre d'efficacité décroissant l'ajout de : 0,1%m.C, 10%m. d'Inconel 625, 0,1%m. de SiC et enfin la poudre EMSE2.

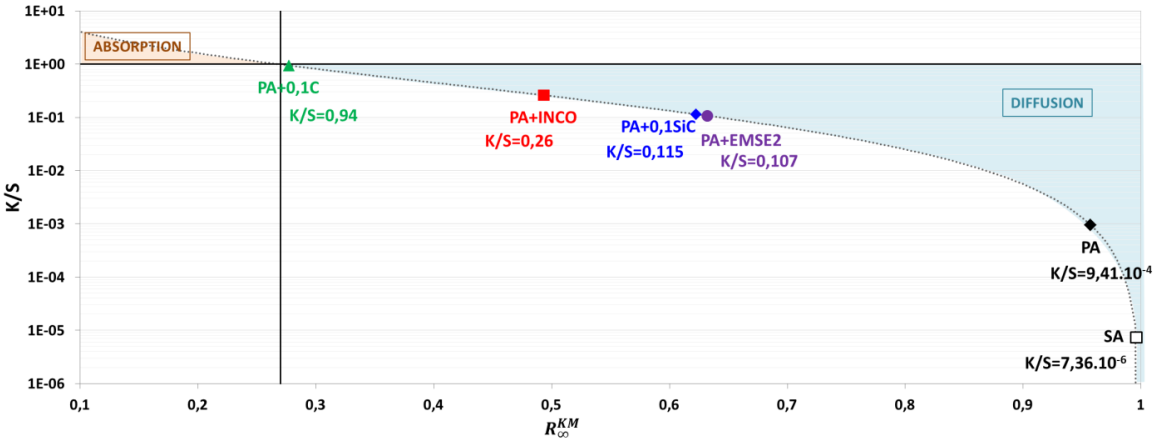


Figure IV-47 : Variation de K/S en fonction de la réflectance infinie du modèle K-M R_∞^{KM} pour les systèmes mélangés à des absorbants

Le lit de poudre pur {PA} présente le coefficient d'absorption K le plus faible et le coefficient de diffusion S le plus élevé *(Figure IV-48)*. L'ajout d'absorbants augmente le coefficient d'absorption K et diminuer le coefficient de diffusion S. L'ajout de 0,1%m.C présente donc l'effet le plus marqué avec $K \approx S$. Les efficacités des autres absorbants sont classés de manière décroissante comme suit : Inconel 625 ; 0,1%m.SiC et le carbone de la poudre EMSE2.
Pour tous les systèmes, l'augmentation de l'épaisseur de poudre Δz_{poudre} induit une diminution à la fois de K et de S comme vu pour le coefficient d'absorption α_{abs}. Cette tendance est à l'inverse des résultats de la littérature *(§III.3.2)*. Etant donné les faibles ordres de grandeur des variations, il est possible que ses variations soient négligeables et résultent un artefact de mesure lié à la géométrie du montage expérimental.

c) Comparaison des modèles homogène et hétérogène

Les coefficients issus du modèle hétérogènes α_{ext} s'atténuent avec l'augmentation de l'épaisseur de poudre comme pour le modèle homogène α_{abs}. Cette diminution de $\alpha_{ext} = \sqrt{K(K+2S)}$ est bien la conséquence de la diminution de S et de K avec l'épaisseur de poudre vue au paragraphe précédent.

Les valeurs de α_{abs} et α_{ext} sont très proches, ce qui permet de confirmer que le modèle homogène équivalent au modèle hétérogène peut être employé pour les lits de poudre de l'étude.

Les coefficients α_{abs} et α_{ext} du système pur sont inférieurs à ceux des systèmes absorbants respectifs $\alpha_{abs}(PA) < \alpha_{abs}(PA + abs)$ et $\alpha_{ext}(PA) < \alpha_{ext}(PA + abs)$. Si on extrapole les valeurs mesurées aux très faibles épaisseurs de poudre proches des valeurs utilisées pour la fabrication LBM, les coefficients d'absorption et d'extinction des mélanges devraient croître et pourraient être supérieurs à 10 mm^{-1}. Bien que cette tendance soit contraire aux résultats de la littérature, ces résultats feraient que les valeurs de ces coefficients se rapprocheraient des celles associées aux matériaux métalliques.

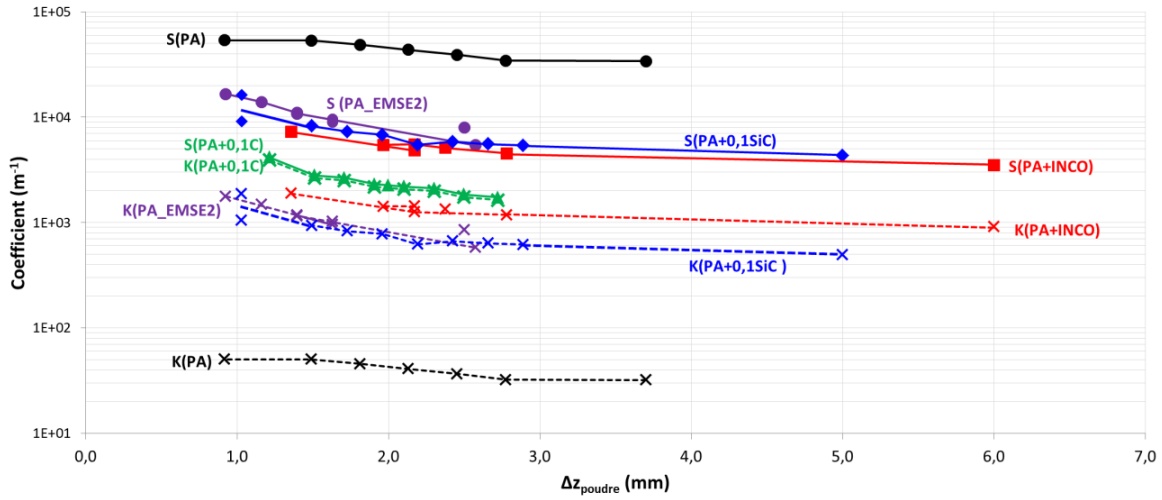


Figure IV-48 : Variation de K et S des lits de poudres mélangés en fonction de l'épaisseur de mélangés à des absorbants en fonction de l'épaisseur de poudre Δz_{poudre} après application des modèles optiques par combinaison d'une épaisseur semi-infinie et des mesures en transmission d'un dépôt sur lame de verre (équations III .79 et III.80)

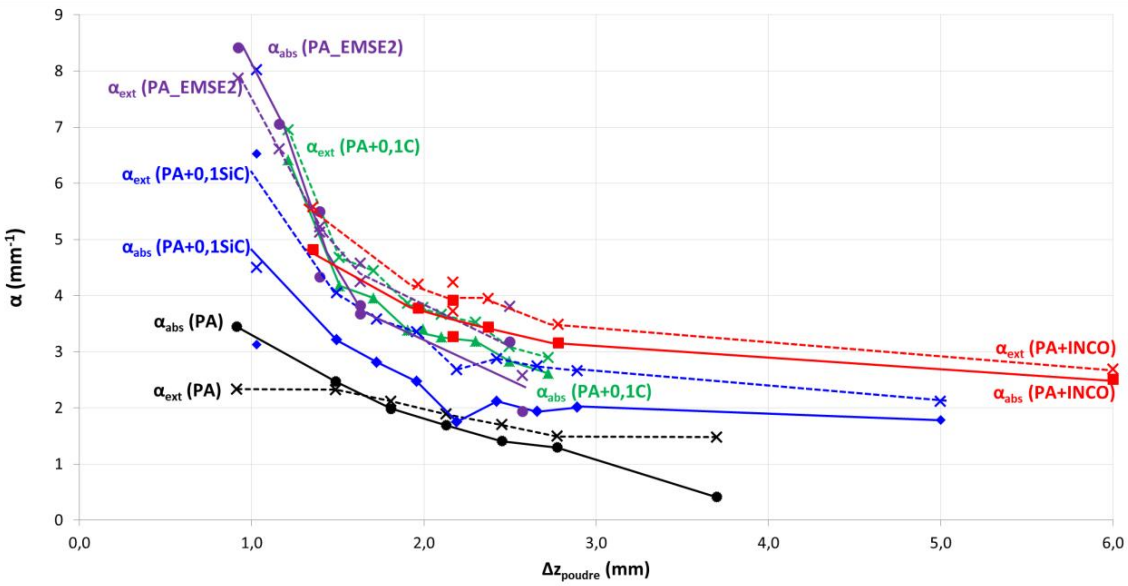


Figure IV-49 : Comparaison des coefficients d'absorption α_{abs} du modèle homogène et du coefficient d'extinction α_{ext} issu des mesures en transmission des lits de poudres mélangés à des absorbants en fonction de l'épaisseur de poudre Δz_{poudre}

Pour les mesures effectuées, les profondeurs de pénétration associées δ_{abs} ou δ_{ext} varient entre 10^2 et 10^3 μm *(Figure IV-50)*. L'échantillon d'alumine pur {PA} présente les valeurs de pénétration les plus grandes, ce qui correspond très clairement à un chauffage volumique ($\delta_{th} \ll \delta_{abs/ext}$). Ces ordres de grandeur sont cohérents avec les valeurs de la littérature *(Tableau III-3)*. Là encore en extrapolant aux très faibles épaisseurs de poudre, les mélanges avec les absorbants sont susceptibles de présenter un chauffage surfacique ($\delta_{th} > \delta_{abs/ext}$) selon les paramètres choisis du procédé. Ce régime permettrait alors une interaction laser plus stable des lignes de fusion.

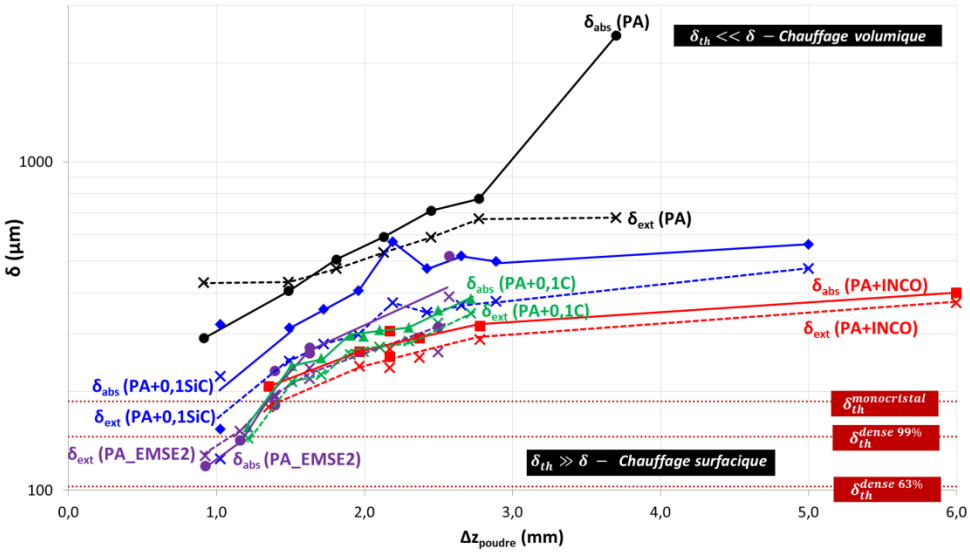


Figure IV-50 : Profondeur de pénétration δ en fonction de l'épaisseur de Δz_{poudre} pour les systèmes mélangés à des absorbants; indication des profondeurs de diffusion thermiques δ_{th} maximales calculées à partir des valeurs de la littérature et représentatives de cette étude (Φ_l=70µm et V=50 mm.s^{-1}) pour l'alumine

d) Coefficients d'absorption des absorbants

D'après l'*équation (III.102)* pour les mélanges de poudres étudiés, en considérant que le coefficient de diffusion S des absorbants présents en très faibles proportions est négligeable, il est possible de remonter au coefficient d'absorption K des absorbants. On a alors : $\boldsymbol{K(C) = 4,14.10^7 m^{-1}}$ et $\boldsymbol{K(SiC-\beta) = 5,00.10^6\ m^{-1}}$. Ces valeurs calculées sont très proches des valeurs de la littérature pour les matériaux denses : $\alpha_{abs}(C) = 1{,}33\,.10^7 m^{-1}$ *et* $\alpha_{abs}(SiC-\beta) = 2{,}48\,.10^6\ m^{-1}$. Comme dans la littérature, le coefficient d'absorption de C est bien supérieur à celui du SiC-β, signe de la meilleure absorption intrinsèque du carbone et de son efficacité améliorée par rapport au SiC–β.

IV.3.2 Lignes de fusion (1D)

IV.3.2.1 Régimes d'interaction laser-matière

Pour les systèmes mélangés à des absorbants, la différence entre les états fondu et non fondu est moins flagrante sur les spectres radiatifs que pour les lits de poudre pure car l'absorption de la poudre non fondue est plus élevée et donc plus proche de la valeur de l'état non fondu. Toutefois, les mêmes régimes que pour les systèmes purs sont observés. En revanche, à faible énergie linéique, on remarque la fusion hétérogène de la poudre mélangée à 0,5%m.C *(Figure IV-51.a)*. Il semble que seules les régions détenant des particules de carbone ont absorbé le rayonnement laser. Donc même les très faibles énergies linéiques (≈ 0,08 J.mm^{-1}) sont suffisantes pour provoquer un échauffement jusqu'à la décomposition du carbone. A plus forte énergie linéique (≈ 0,13 J.mm^{-1} - *Figure IV-51.b*), le phénomène de *balling* (faible encrage du lit de poudre fondu sur le substrat) est identifiable et n'est pas simplement issu des fusions ponctuelles aléatoires dues aux impuretés comme pour le cas pur. Les mêmes observations sont faites avec la présence de SiC-β.

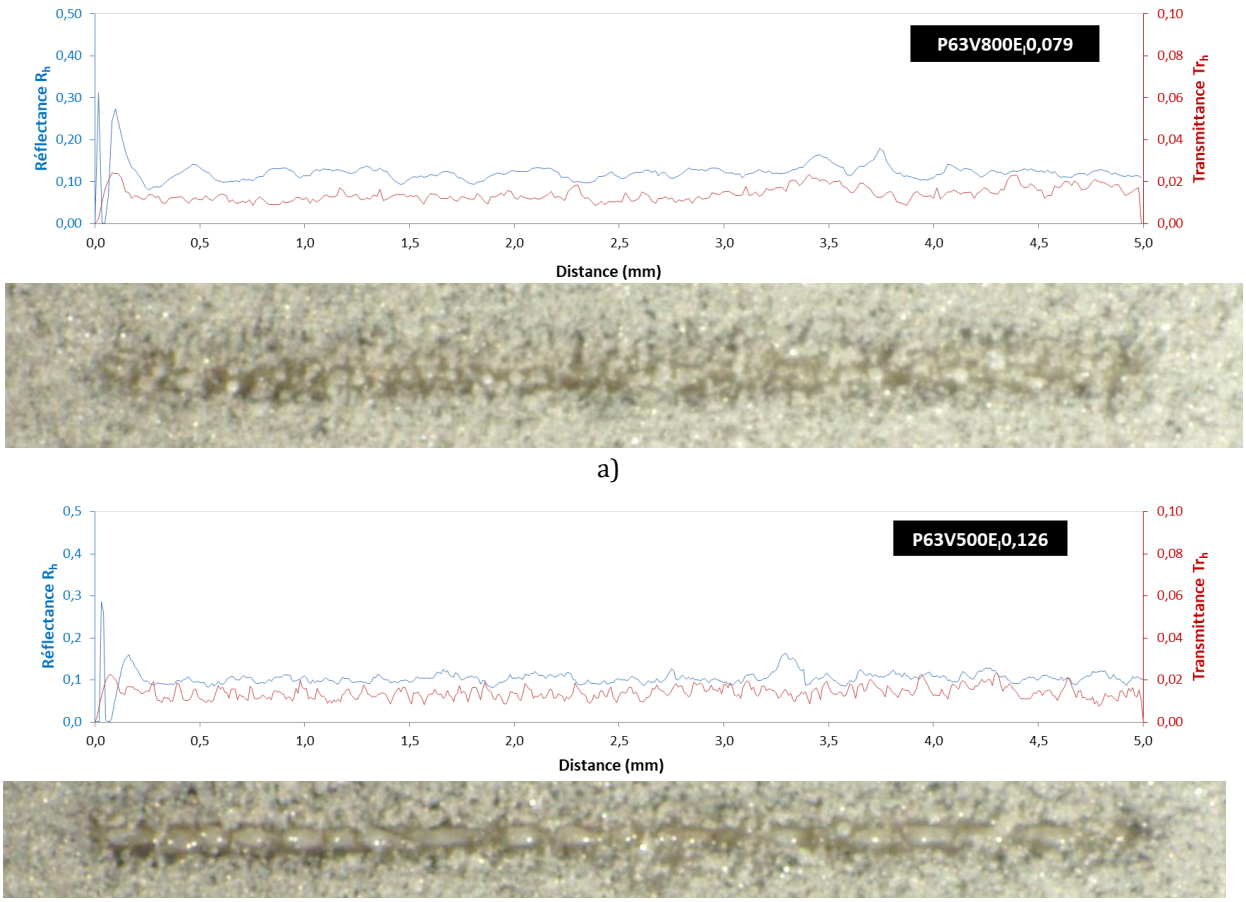


Figure IV-51 : Variations des propriétés radiatives dynamiques en fonction de la distance parcourue par le laser pour le dépôt de poudre d'alumine à 0,5%m. de carbone sur un substrat d'alumine dense {PA+0,5C_SA} et clichés optiques associés pour a) P63V800 E_l0,079 et b) P63V500 E_l0,126

IV.3.2.2 Propriétés radiatives

a) Absorbants éphémères

A l'état fondu, l'accroissement de l'énergie linéique provoque pour les échantillons mixtes {LDP+Substrat} la réduction de la réflectance, de la transmittance et fait croitre l'absorbance pour tous les systèmes *(Figure IV-52)*. De plus, pour les LDP autoportés, la réflectance diminue avec l'énergie linéique tandis que la transmittance et l'absorbance augmentent *(Annexe D-14)*. Ce sont les mêmes tendances observées que pour les échantillons de réception.

Comme discuté au *§IV.2.2.3a)*, aux fortes énergies linéiques, le faisceau interagit majoritairement avec un large bain de fusion de type keyhole et les valeurs des propriétés radiatives tendent vers une valeur unique, propre à chaque système dépendante de l'échauffement et de la géométrie du bain. Aux faibles énergies linéiques, l'interaction se fait majoritairement avec le lit de poudre, la fusion peut être discontinue et la profondeur de liquide est limitée : la réflexion va fortement dépendre de l'épaisseur du liquide et donc du lit de poudre restante sous le bain de fusion et de son homogénéité. Par conséquent, **aux faibles énergies linéiques, tout comme pour l'état non fondu, les valeurs des propriétés radiatives sont dispersées et les effets de P et de V ne sont pas toujours répétables, et ceci d'autant plus que le système est transparent ou chimiquement hétérogène.** On le remarque pour les systèmes mixtes {LDP+substrat} en réflexion et en transmission *(Figure IV-53 et Annexe D-16)* et également pour les substrats denses *(Annexe D-15)*. La dispersion des valeurs de réflectance pour l'état fondu à faible énergie

linéique se réduit aux fortes teneurs en absorbants *(Figure IV-53.a,c et e)*. Il y a donc une stabilisation de l'interaction laser-matière qui devient plus surfacique pour une même énergie linéique. De plus, aux faibles énergies linéiques, et notamment aux fortes vitesses, l'éjection de particules de poudre solide perturbe l'interaction laser-matière *(Chapitre VI)*, ce qui peut contribuer à la dispersion des valeurs en réflectance.

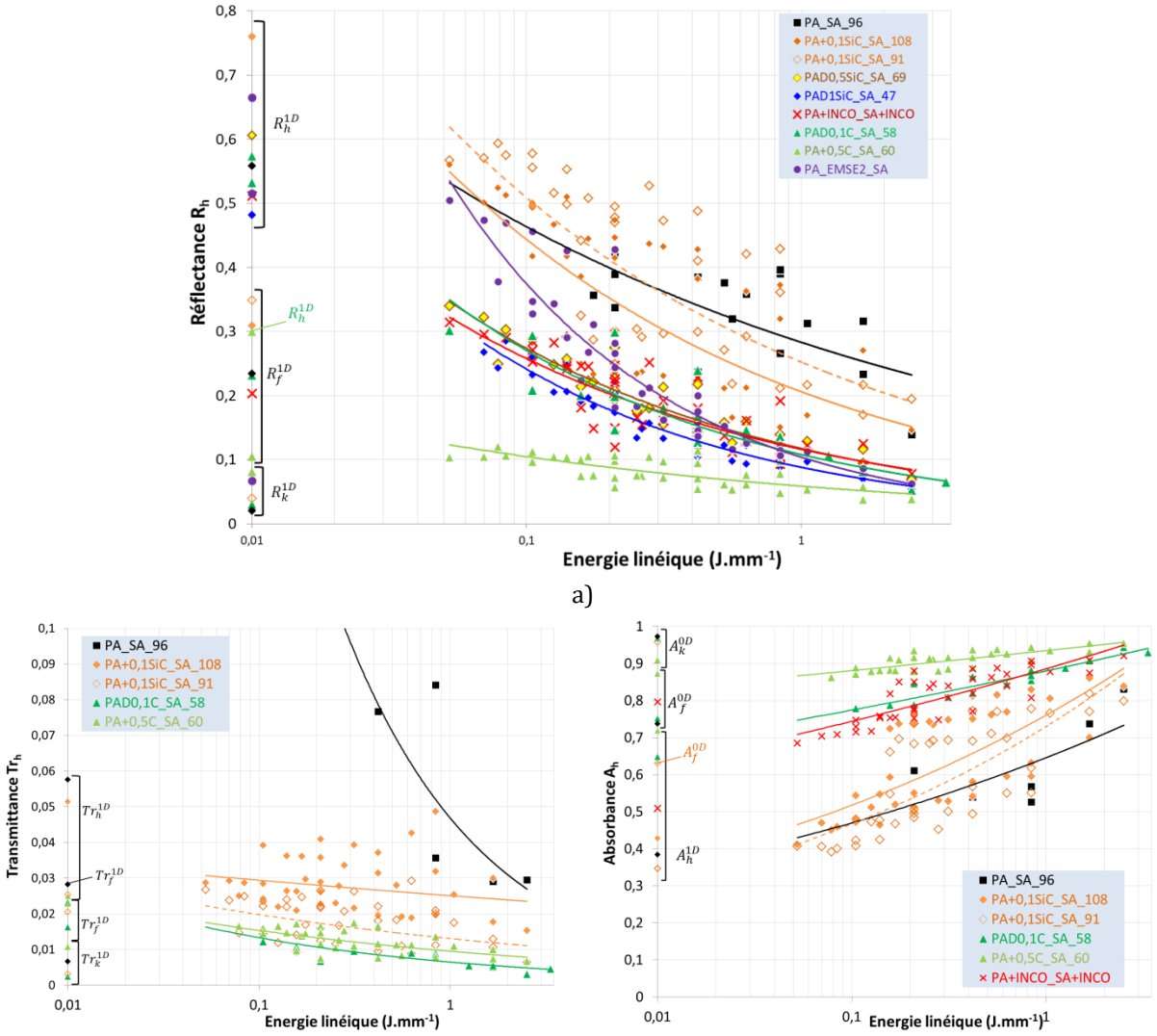


Figure IV-52 : Variation des propriétés radiatives de l'état fondu dynamique en fonction de l'énergie linéique a) R_f^{1D} b) Tr_f^{1D} et c) A_f^{1D} et comparaison avec les valeurs de l'état non fondu en dynamique R_h^{1D} et des états fondu R_f^{0D} et keyhole R_k^{0D} en statique pour les systèmes mixtes mélangés à des absorbants {LDP+substrat}

La réflectance de l'état fondu est inversement proportionnelle à la teneur en absorbant, et donc si on néglige la transmittance, l'absorbance est proportionnelle à la teneur en absorbant. En effet, la plus forte absorbance est attribuée au mélange à 0,5%m.C puis au mélange à 1%m.SiC *(Figure IV-52.a)*. De plus, aux faibles énergies linéiques, la réflectance du système {PA+0.1SiC_SA} est proche de celle du système pur {PA_SA}. Pour l'ajout de 0,1%m.C, l'absorption est nettement supérieure au système pur {PA_SA}. Le noir de carbone étant plus absorbant intrinsèquement que le SiC-β, il chauffe plus rapidement et contribue donc plus efficacement à l'absorption. **A l'état fondu plus la teneur en absorbant et son absorption intrinsèque seront élevées, plus l'échauffement sera efficace et rapide et donc l'absorbance globale sera élevée et ceci quelle que soit l'énergie linéique.**

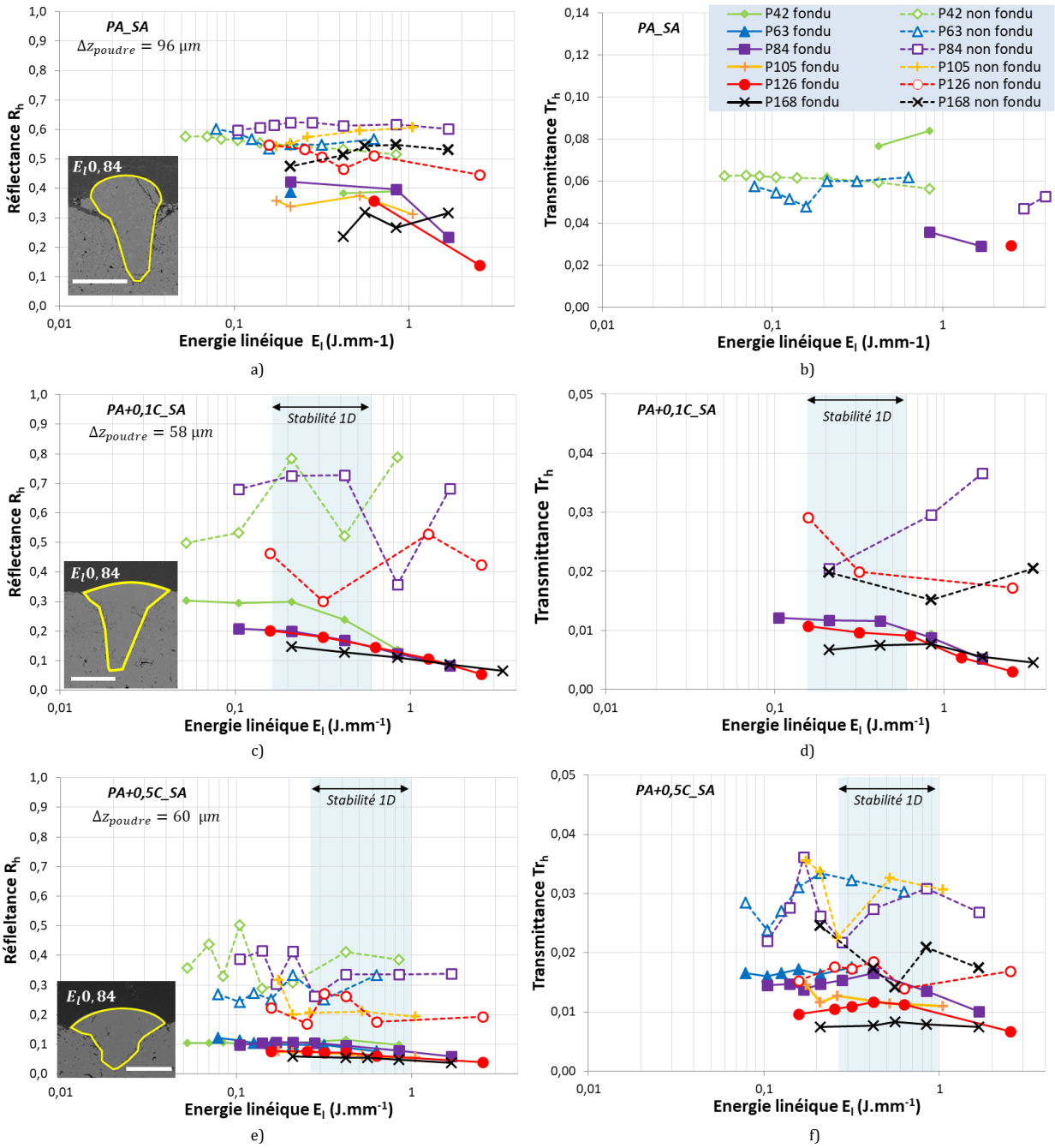


Figure IV-53 : Variation des propriétés radiatives en fonction de l'énergie linéique pour différentes puissances et quelques systèmes mélangés à du carbone {LDP+Substrat}. Les clichés des bains correspondent à P84V100 et leur échelle vaut 100µm.
Le domaine de stabilité 1D est défini au Chapitre VI.

b) Mélange céramique-métal

A **l'état fondu**, l'absorbance du mélange céramique-métal est proche de celle du système à 0,1%m.C *(Figure IV-52)*. Bien que la proportion ajoutée de particules métalliques absorbantes soit conséquente (26%m.), l'absorbance induite n'est donc pas plus importante que pour les absorbants éphémères. **En effet, lors de leur combustion, les absorbants rayonnent à la manière d'un corps noir, suivant une large gamme de longueurs d'onde, ce qui fond efficacement le matériau céramique dont le domaine d'absorbance se situe dans l'IR lointain. En revanche pour les absorbants métalliques, c'est beaucoup moins le rayonnement qui échauffe et fond la céramique mais bien plus la conduction après fusion de ces absorbants opaques à la longueur d'onde.**

Le mélange céramique-métal {PA+INCO_SA+INCO}, présente une très grande disparité de valeurs de réflectances pour l'**état non fondu** *(Figure IV-54)*, preuve de l'hétérogénéité du mélange. Il a été vu au *Chapitre II*, que la taille des particules d'Inconel 625 est similaire à celle de l'alumine tandis que celle des particules de carbone et SiC-β est nettement inférieure. La transmission des lignes de fusion de l'état non fondu est quant à elle est minimale ($Tr_h \approx 10^{-5}$) par rapport aux autres systèmes ($Tr_h > 10^{-2}$) et les valeurs sont très proches pour les états fondus et non fondus *(Figure IV-54.b)*.

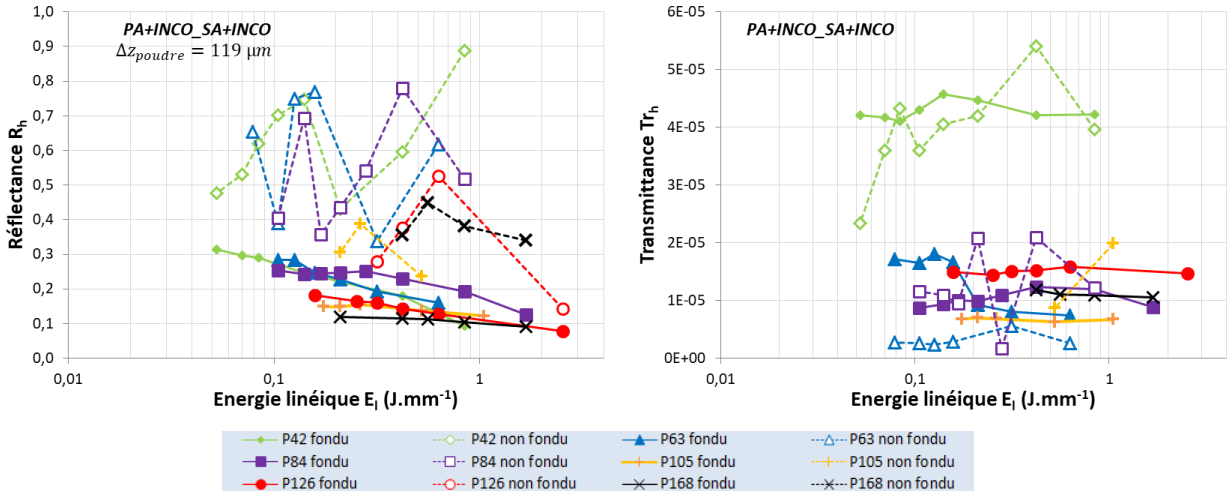


Figure IV-54 : Variation des propriétés radiatives pour {PA+INCO_SA+INCO} à l'état fondu et non fondu

On note une différence de la réflectance pour les LDP suspendus à **l'état fondu** entre le mélange céramique-métal et les mélanges avec les absorbants éphémères *(Figure IV-55)*.

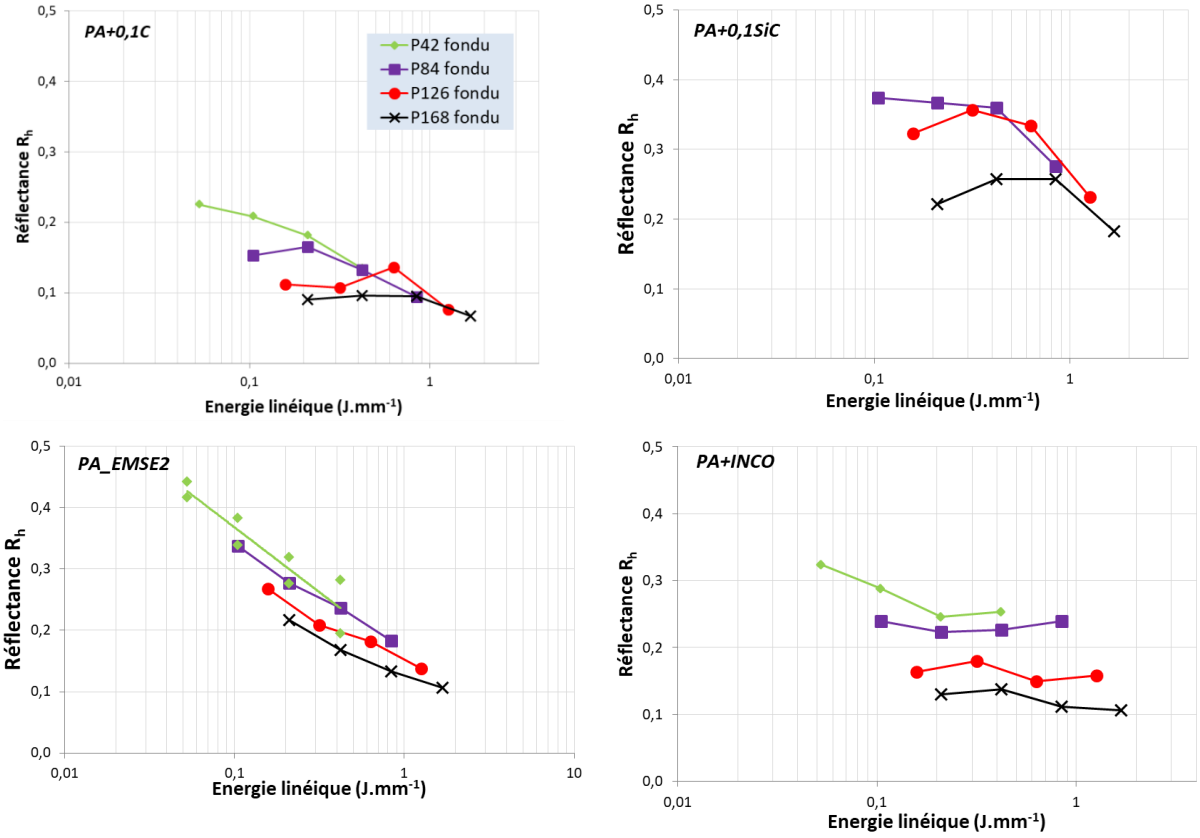


Figure IV-55 : Variation de la réflectance en fonction de l'énergie linéique pour différentes puissances laser et pour différents LDP suspendus

Pour {PA+0,1C} et {PA+0,1SiC}, l'échauffement est rapide avec l'augmentation de l'énergie linéique et la réflectance tend rapidement vers une valeur limite indépendante de la puissance laser, signe d'un fort échauffement et pénétration du rayonnement. Pour {PA+INCO}, les mesures de réflectance aux différentes puissances laser ne convergent pas vers une unique valeur. L'échauffement est donc plus lent et surfacique. On note néanmoins pour tous les systèmes étudiés un effet de la puissance laser P aux faibles énergies linéiques. Par contre, pour le système {PA_EMSE2}, on tend rapidement vers une valeur limite de la réflectance sans un effet de P très marqué, signe d'un échauffement très rapide de la poudre au sein de laquelle le carbone est réparti de manière homogène et est de taille très fine. **L'énergie linéique augmente d'autant plus l'absorption que l'absorbant ajouté est non métallique et finement dispersé.**

Enfin, des compacts de poudre ont été réalisés à différentes teneurs en absorbant métallique (10, 32 et 65 %vol.). L'énergie linéique croissante induit toujours la diminution de la réflectance pour tous les systèmes à l'état fondu *(Figure IV-56)*. Le compact métallique {C_INCO} est d'une part moins réfléchissant (donc plus absorbant) que celui céramique en alumine pur {CA} aux faibles énergies linéiques (meilleure absorption intrinsèque et contribution de la multi-réflexion des particules solides environnantes). D'autre part, il est plus réfléchissant (moins absorbant) aux fortes énergies linéiques, car le domaine keyhole n'est pas atteint pour les mêmes valeurs d'énergie linéique et donc le rayonnement n'est pas autant piégé en profondeur que dans le cas du compact en céramique *(Figure IV-57)*. Les mélanges céramique-métal ont une réflectance réduite par rapport aux compacts d'alumine {CA} et métallique {C_INCO} non mélangés, ce qui est bénéfique.
La pénétration du rayonnement est moyennée entre celle du cas métallique qui est large, peu profonde et surfacique *(Figure IV-57)* et celle du cas céramique qui est étroite, profonde et volumique. Cependant même à 65%vol. d'ajout de particules métalliques, les bains, bien que moins profonds, restent étroits *(Figure IV-57.b)*. **Les particules céramiques, même minoritaires, affectent donc fortement la géométrie de l'interaction laser-matière.**

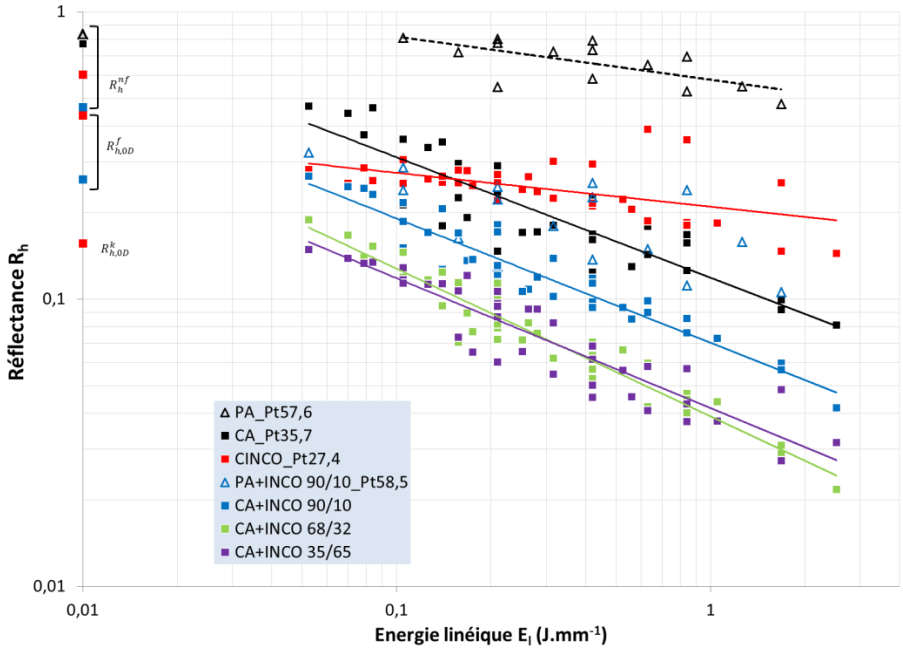
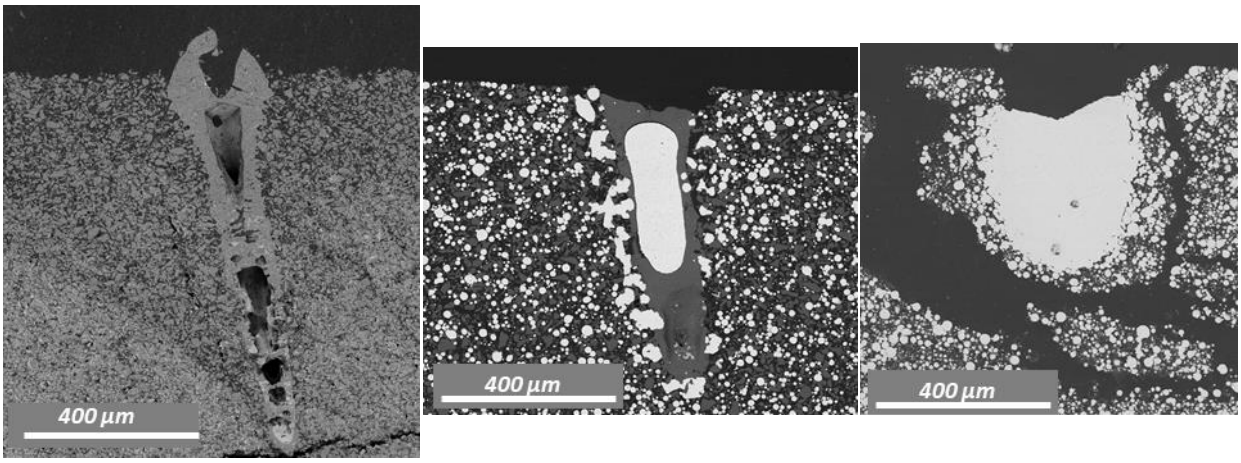


Figure IV-56 : Variation des propriétés radiatives avec l'énergie linéique pour les systèmes céramique-métal



a) b) c)

Figure IV-57 : Bains de fusion à P168V100 pour a) CA b) CA+INCO 35/65 et c) CINCO

c) Epaisseur de poudre

Comme pour le système pur {PA}, les lits de poudres céramiques mélangés à des absorbants éphémères comme permanents, leur réflectance à l'état fondu augmente légèrement avec l'épaisseur de poudre Δz_{poudre} suite à l'augmentation de l'épaisseur non fondue sous-jacente au bain liquide *(Figure IV-58)*. **La part du signal incident transmis augmente avec l'énergie linéique et avec la diminution de l'épaisseur de poudre.** Il y a alors une épaisseur limite d'opacité qui est inversement proportionnelle à l'énergie linéique car les bains à forte énergie linéique sont plus profonds qu'à faible énergie linéique. **On remarque par ailleurs que plus l'absorbant est efficace et l'échauffement rapide, plus la transmittance augmente et la réflectance diminue, suite à la diminution de la multi-réflexion.**

IV.3.2.1 Modèle optiques homogène

Comme pour les systèmes de réception, **le coefficient d'absorption des lignes de fusion des LDP suspendus mélangés à des absorbants est inversement proportionnel à l'épaisseur de poudre et proportionnel à la puissance laser P** *(Figure IV-59)*. Avec l'augmentation de la puissance, les valeurs de ce coefficient se rapprochent des valeurs du coefficient associé au régime keyhole stationnaire α_k^{0D}.

A faible vitesse et forte puissance (forte énergie linéique) ainsi qu'à faible Δz_{poudre}, on retrouve un coefficient d'absorption qui se rapproche de la valeur α_l^{0D} correspondant au liquide seul stationnaire en contact avec le substrat. Or, ce phénomène n'est pas visible pour l'alumine pure *(Annexes D-5)* pour la même épaisseur de poudre, ce qui montre clairement que l'absorbant favorise la fusion totale de l'épaisseur. De plus, la dispersion pour les systèmes mélangés est plus faible que pour le système pur {PA}, ce qui suggère une fusion plus homogène et continue.

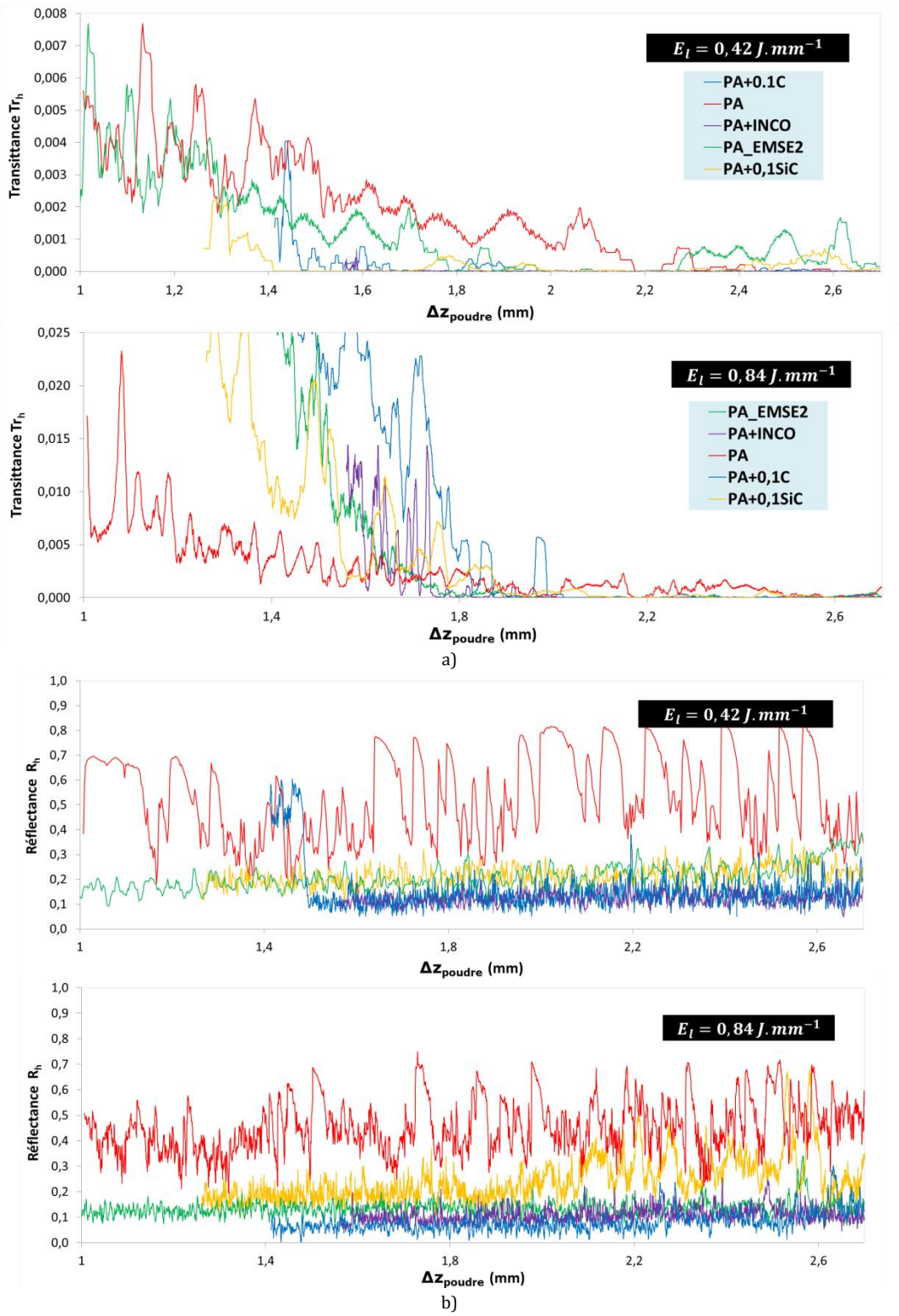


Figure IV-58 : Variation des propriétés radiatives en fonction de l'épaisseur de poudre pour les lits de poudre

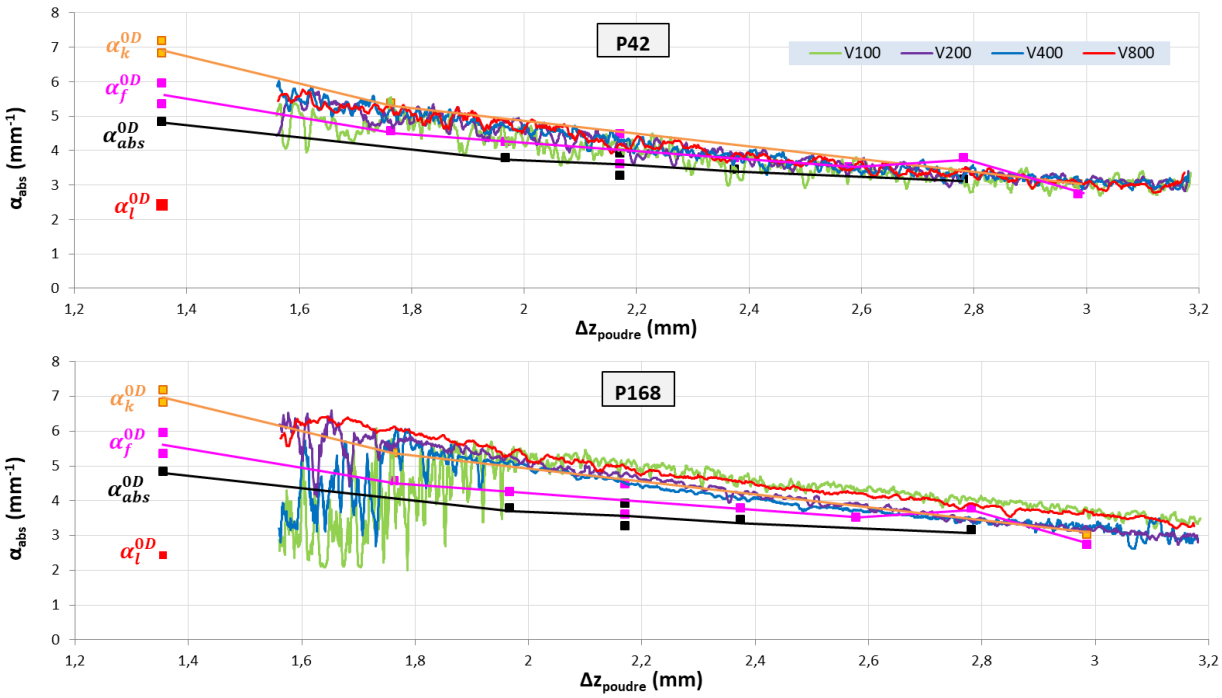


Figure IV-59 : Variation du coefficient d'absorption en fonction de l'épaisseur de poudre pour la manip coin {PA+INCO} à deux puissances et différentes vitesses pour chaque puissance. La même tendance est observable pour les autres LDP mélangés à des absorbants éphémères.

IV.3.3 Conclusion partielle pour les systèmes mélangés à des absorbants

L'ajout des absorbants à la poudre d'alumine pure permet d'amorcer la fusion du milieu granulaire et également de l'ensemble {LDP+susbtrat}.

Dans le cadre de l'interaction laser-matière en **statique (0D) – effet de P et Δz_{poudre}** :

- La consommation des absorbants peut se faire alors que la céramique est encore solide. L'ablation de la céramique fondue est par la suite initiée au même temps d'interaction pour une puissance donnée quelle que soit la nature de l'absorbant, SiC-β ou C. Une fois la céramique fondue évaporée, l'interaction n'a lieu qu'entre le laser et le substrat non fondu sous-jacent aux longs temps d'interaction.
- Une **puissance** croissante induit une légère augmentation de l'absorbance, quel que soit le système et l'état (fondu on non). Les coefficients α_f et $\alpha_{abs}^{PA+INCO}$ sont proportionnels à la puissance et donc à la vitesse d'échauffement, contrairement aux systèmes purs.
- Pour une **épaisseur de poudre** croissante au sein des systèmes mélangés, le domaine d'opacité est atteint pour $\Delta z_{poudre} > 1\ mm$, ce qui n'est pas le cas de l'alumine de réception. Les coefficients issus des modèles homogène α_{abs} et hétérogène α_{ext} s'atténuent avec l'augmentation de l'épaisseur de poudre, comme les coefficients K et S.
- Les valeurs de α_{abs} et α_{ext} sont très proches, ce qui permet de confirmer que le modèle homogène équivalent au modèle hétérogène peut être employé pour les lits de poudre de l'étude.

- **Effet de l'absorbant à l'état solide :**
  - L'absorbance est minimale pour le système pur {PA_SA} ou {PA} vis-à-vis des systèmes mélangés aux absorbants. Les coefficients d'absorption des mélanges avec absorbants sont supérieurs à ceux de l'alumine pure sauf pour le cas à 0,1%SiC qui est proche du cas pur.
  - Bien que contenant des absorbants, les lits de poudres mélangés sont diffusants ($S > K$). Néanmoins, les absorbants permettent l'augmentation de plusieurs ordres de grandeur du rapport K/S. Les

systèmes sont classés par ordre décroissant du rapport K/S : 0,1%m.C, Inconel 625, 0,1%m.SiC, EMSE, alumine pure.

- Le carbone permet une bonne absorbance, l'échauffement pour la fusion du milieu est rapide
- Le mélange céramique-métal présente également une bonne absorption. L'échauffement du milieu est rapide et la puissance d'amorce pour la fusion est la plus faible, probablement par la fusion première du métal.
- Bien que l'ajout de 0,1%m.SiC permette la fusion de l'alumine, il ne garantit pas une interaction laser-matière satisfaisante par la part conséquente de rayonnement réfléchi et la faible absorption.
- Lors de leur combustion, les absorbants rayonnent à la manière d'un corps noir, suivant une large gamme de longueurs d'onde, ce qui fond efficacement le matériau céramique dont le domaine d'absorbance se situe dans l'IR lointain. En revanche pour les absorbants métalliques, c'est beaucoup moins le rayonnement qui échauffe et fond la céramique mais bien plus la conduction après fusion de ces absorbants opaques à la longueur d'onde.
- Les valeurs de $K(C)$ et $K(SiC-\beta)$ calculées sont très proches des valeurs de la littérature pour les matériaux denses et $(C) \gg K(SiC-\beta)$.
- La présence du substrat {SA} très réfléchissant augmente la réflectance des systèmes mixte {LDP+Substrat} vis-à-vis des lits de poudre suspendus, et ceci d'autant plus que le lit de poudre est transparent.
- Les coefficients d'absorption des mélanges sont supérieurs ou égaux aux systèmes purs tel que :
  - pour les LDP suspendus entre 0,9 et 3 mm d'épaisseur : $\alpha_{abs}(PA+abs) = 1{,}5\ -7\ mm^{-1}$ contre $\alpha_{abs}(PA) = 1{,}5-2{,}5\ mm^{-1}$
  - pour les systèmes mixtes {LDP+Substrat} : $\alpha_{abs}(PA+abs_SA) = 0{,}4-3\ mm^{-1}$ contre $\alpha_{abs}(PA_SA) \approx 0{,}4\ mm^{-1}$

- **Effet de l'absorbant à l'état fondu :**
  - $A_k > A_f > A_h$ et $12\ mm^{-1} > \alpha_f \geq \alpha_{abs} > 1\ mm^{-1}$
  - Une fois la fusion atteinte, l'échauffement à l'état liquide est très efficace. Une teneur en absorbant croissante augmente légèrement l'échauffement. Or, un échauffement trop rapide réduit la fenêtre de construction stable par amorce rapide du keyhole.
  - Le mélange céramique-métal fond à très faible puissance et présente la valeur de α_f la plus élevée.
  - {PA+0,1C_SA} présente en plus d'un échauffement rapide pour la fusion, le plus large domaine de stabilité 1D avec un grand temps d'interaction pour atteindre le régime
  - Les domaines de stabilité des monocordons 1D se resserrent de manière générale avec l'accroissement de la puissance laser.

Concernant les propriétés radiatives fondues en **dynamique (1D) – V et E_l :**

- Avec l'augmentation de l'énergie linéique, le lit de poudre passe de l'état non fondu à une fusion hétérogène jusqu'à un régime de *balling* puis à un cordon continu et à un régime keyhole pénétrant. On a alors réduction de la réflectance et augmentation de l'absorbance pour tous les systèmes. Puis, pour les systèmes mixtes {LDP+Substrat}, on a réduction de la transmittance (le liquide absorbe fortement le rayonnement). A l'inverse, pour les LDP suspendus, la transmittance augmente car il y a diminution de la multi-réflexion.
- Pour les systèmes mixtes {LDP+Substrat}, le signal transmis augmente avec l'amincissement du lit de poudre et avec la diminution de l'énergie linéique. Il y a alors une épaisseur limite d'opacité qui est inversement proportionnelle à l'énergie linéique.
- Le coefficient d'absorption des LDP suspendus α_{abs}^{1D} est inversement proportionnel à l'épaisseur de poudre et proportionnel à la puissance P du laser. Il se rapproche aux fortes puissances *de* α_f^{0D} puis de α_k^{0D}.
- Aux faibles énergies linéiques, les valeurs des propriétés radiatives sont dispersées et les effets de P et de V ne sont pas toujours répétables, et ceci d'autant plus que le système est transparent ou hétérogène chimiquement. De plus, aux faibles énergies linéiques, et notamment aux fortes vitesses de balayage,

l'éjection de particules de poudre perturbe l'interaction laser-matière. Il y a une stabilisation de l'interaction laser-matière qui devient plus surfacique, soit avec l'augmentation de l'énergie linéique, soit avec l'ajout d'absorbants pour une même énergie linéique.

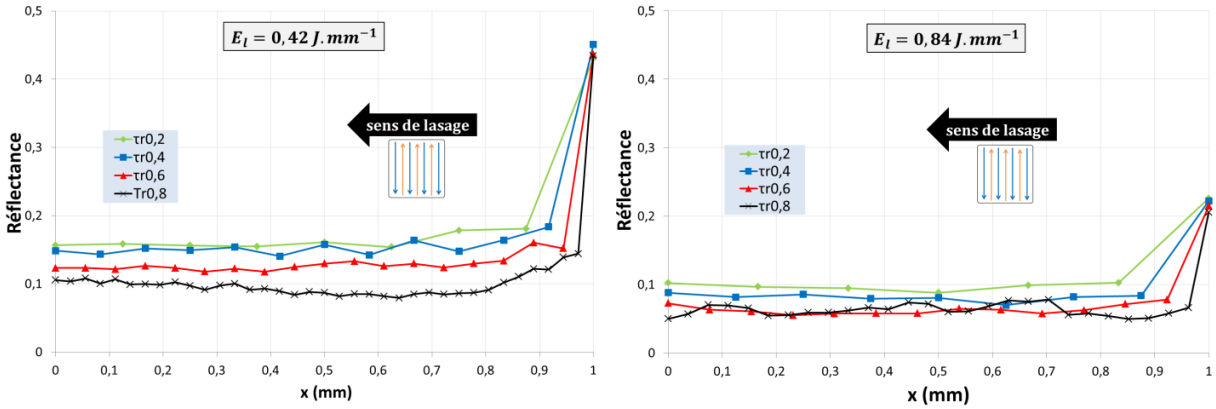
- L'absorbance est proportionnelle à la teneur en absorbant quel que soit l'énergie linéique. L'ajout de 0,5%m.C donne la meilleure absorbance, tandis que l'ajout de 0,5%m.SiC donne une absorbance équivalente à celle de l'ajout de 0,1%m.C ou de 26%vol.Inconel 625.
- Pour les mélanges céramique-métal, les particules céramiques, même minoritaires, affectent fortement l'interaction laser-matière. Les morphologies de bains sont moyennées entre une interaction laser-matière surfacique (100% métal) et volumique (100% céramique).

En résumé pour les absorbants, l'ajout de **particules métalliques** en quantité non négligeable permet une amorce de fusion rapide puis un échauffement rapide à l'état fondu. L'interaction laser-matière s'apparente à une interaction surfacique. Bien que la proportion ajoutée de particules métalliques absorbantes soit conséquente (26%vol.), l'absorbance induite est égale à celle des systèmes à 0,5C%m.SiC et 0,1%m.C et les coefficients d'absorption et d'extinction sont du même ordre de grandeur. Le système à **0,1%m.C** amorce moins rapidement la fusion puis échauffe de manière plus modérée le matériau céramique à l'état liquide, ce qui permet de ralentir l'apparition du keyhole et donne à l'ensemble un domaine de stabilité de construction suffisamment large. Pour une fabrication stable, le mélange le plus absorbant n'est donc pas toujours le meilleur. A **0,5%m.C**, l'initiation de la fusion et du keyhole sont très rapides et le domaine de construction stable est fort réduit.
Bien que l'ajout de **0,1%m.SiC** permette la fusion de l'alumine, il déstabilise l'absorption en augmentant la réflexion. Le carbone étant plus absorbant intrinsèquement que le SiC, il chauffe plus rapidement la céramique et contribue plus efficacement à l'absorption du rayonnement. Par ailleurs, le SiC se décompose en SiO gazeux avant de se recombiner en SiO_2 solide et peut alors venir perturber l'interaction laser-matière globale.

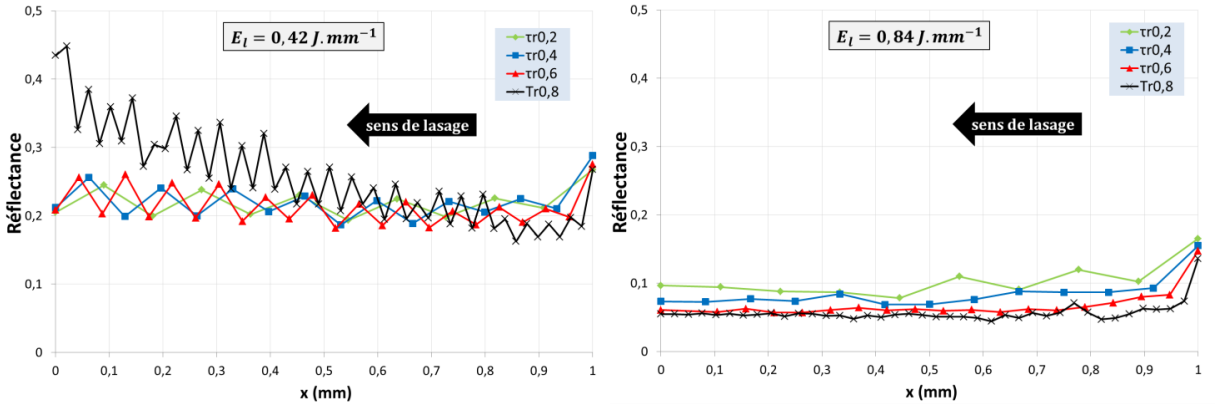
IV.4 Formation d'un drap : paramètres 2D

Puisque des différences de propriétés radiatives ont été identifiées entre les configurations 0D et 1D, la juxtaposition de monocordons en configuration 2D peut de nouveau présenter des propriétés radiatives différentes de ces deux premiers cas.

Le premier cordon du drap est équivalent à un monocordon 1D isolé dans un lit de poudre, l'interaction laser-matière y est moyennée entre le LDP déposé sur le substrat et le liquide. Quel que soit le taux de recouvrement, le premier trait laser à x=1mm *(Figure IV-60 et Figure IV-61)* possède donc toujours les mêmes propriétés radiatives ($R_{h,ps}, Tr_{h,ps}$ *et* $A_{h,ps}$). Ces valeurs radiatives du premier cordon du drap 2D correspondent à la dispersion près, aux valeurs des monocordons 1D associées aux mêmes paramétries du procédé *(Figure IV-62)*.
Pour les traits laser suivants (x<1 mm), la réflectance et la transmittance chutent drastiquement *(Figure IV-60 et Figure IV-61)*. Les valeurs moyennes atteintes pour chaque drap sont inversement proportionnelles au taux de recouvrement : en général la réflectance et la transmittance diminuent avec l'augmentation du taux de recouvrement, ce qui fait croître l'absorbance *(Figure IV-62)*. L'interaction laser-matière pour les traits laser des draps est moyennée entre le trait précédemment solidifié (dense), le LDP, le liquide et le substrat sous-jacent. Ainsi, la part de la multi-réflexion est amoindrie par rapport au premier trait, et d'autant plus que le taux de recouvrement est élevé.



a)



b)

Figure IV-60 : Variation de la réflectance en fonction de la position x pour différents taux de recouvrements pour a) PAZ_SAZ b) PA+0.1C_SA

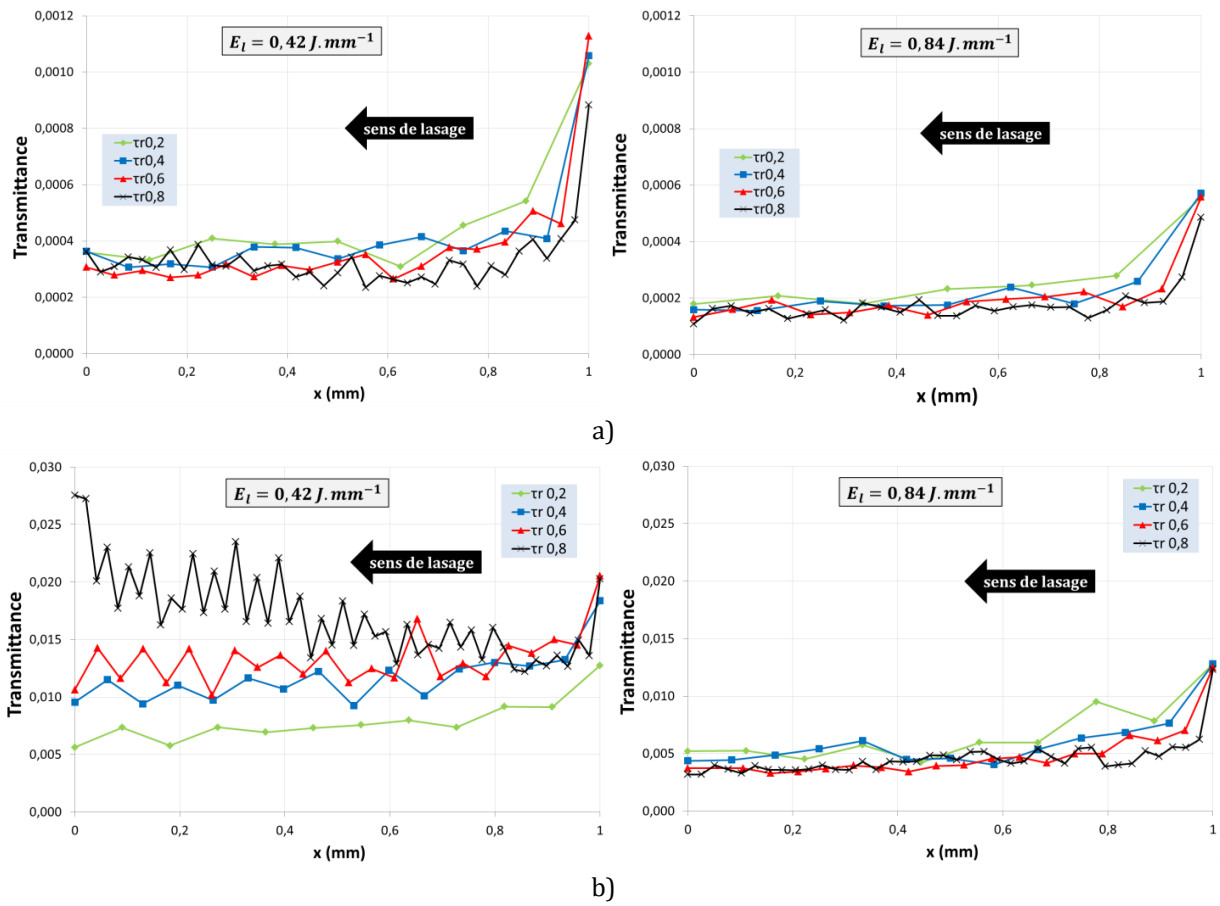


Figure IV-61 : Variation de la transmittance en fonction de la position x pour différents taux de recouvrements pour a)PAZ_SAZ b)PA+0,1C_SA

L'écart des propriétés radiatives entre un mono-cordon 1D et un cordon du drap 2D permet de justifier qu'un monocordon dit stable (ou resp. instable) lors d'une configuration 1D peut devenir instable (resp. stable) lors d'une configuration 2D. L'étude de la stabilité de construction 2D et 3D doit alors s'appuyer sur les propriétés optiques moyennées.

De plus, les observations des draps *(Figure IV-63)* et l'imagerie par caméra rapide *(Chapitre VI)* montrent que la thermique varie en fonction des conditions opératoires. A faible puissance et faible taux de recouvrement, les cordons se distinguent nettement les uns des autres *(Figure IV-63.a et c)*. Lorsque la puissance ou le taux de recouvrement augmente, les cordons se confondent car la fusion du cordon N s'opère lorsque le cordon N-1 n'a pas encore fini de solidifier. On observe alors un « point chaud » qui avec l'augmentation de la puissance ou du taux de recouvrement s'élargit et qui est maintenu plus longtemps chaud. L'échauffement cumulé du drap semble plus important et son refroidissement plus lent (les draps s'opacifient *Figure IV-63.b-d-e*).

A forte puissance, les absorbances de l' Al_2O_3 et l'$Al_2O_3 - ZrO_2$ se superposent pour tous les taux de recouvrement (τ_r>0) - *Figure IV-62.c*. L'interaction laser-matière doit être guidée par le liquide et la température du bain. A τ_r=0 (configuration 1D), les absorbances diffèrent et la part d'influence du LDP n'est plus négligeable. A faible puissance, les absorbances de l' Al_2O_3 et l'$Al_2O_3 - ZrO_2$ ne se superposent pas, l'interaction est guidée par les propriétés du LDP et de son échauffement, moins important qu'à forte puissance, ce qui peut expliquer une absorbance plus faible.
On note également que pour le système {PA+0,1C_SA}, la stratégie de balayage alternée influence les propriétés radiatives à faible puissance et à fort taux de recouvrement *(Figure IV-60.b et Figure IV-61.b)*. De plus, à cette puissance, les grandeurs R_h et Tr_h augmentent avec 0,2 < τ_r < 0,8, ce qui est ni observable pour l' $Al_2O_3 - ZrO_2$ ni à plus forte puissance. Il est possible que les « points chauds » présents aux

extrémités des draps introduisent des gradients de température, de fortes pénétrations des bains, voire des modifications de stœchiométrie *(Figure IV-62.d)*, ce qui implique des modifications locales des propriétés radiatives.

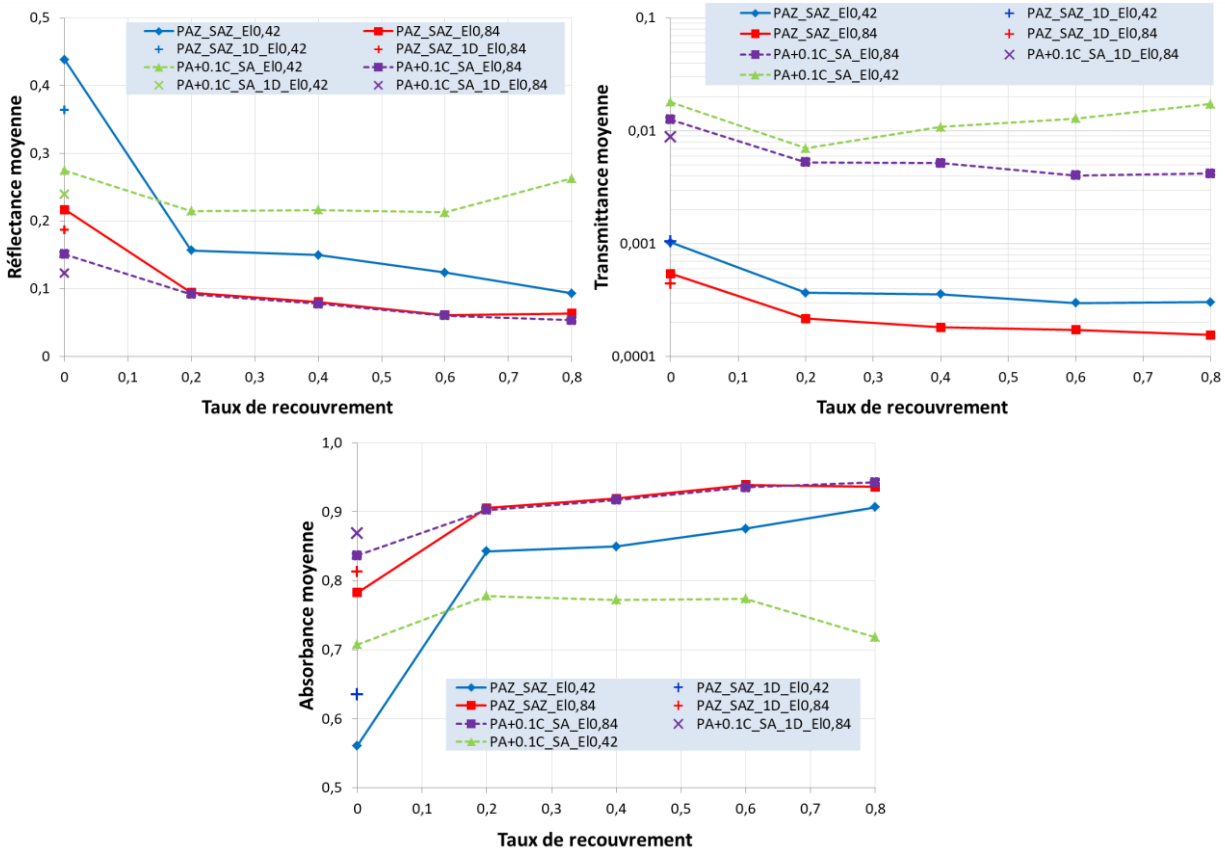
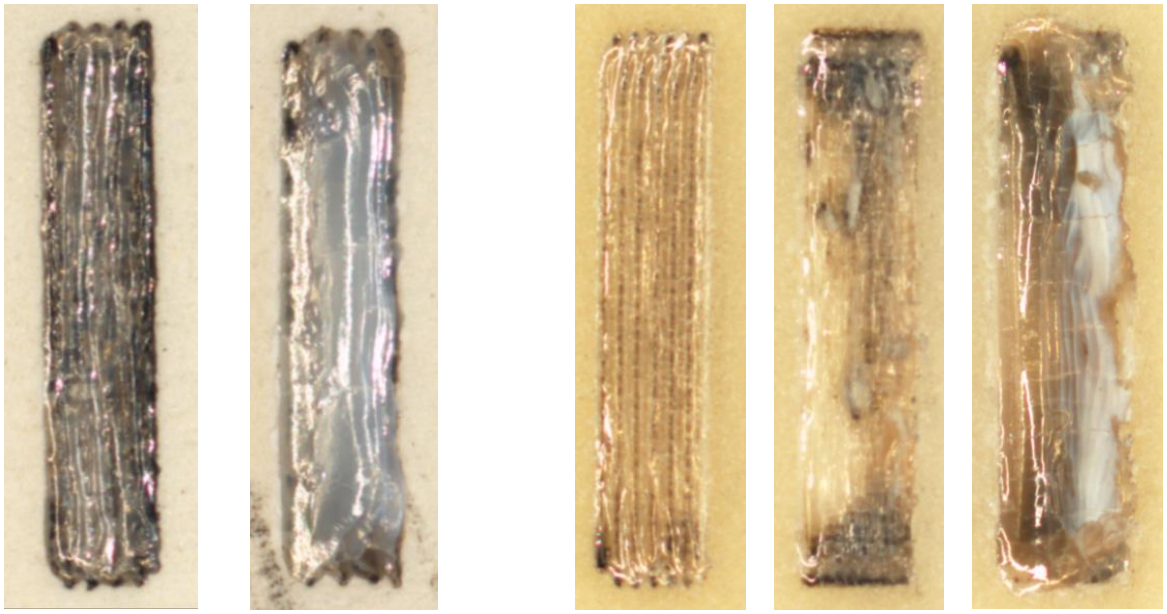


Figure IV-62 : Variation des propriétés radiatives moyennes en fonction du taux de recouvrements pour {PAZ_SAZ} et {PA+0,1C_SA}



PAZ_SAZ		PA+0,1C_SA		
P42V100τr0,2	P84V100τr0,2	P42V100τr0,2	P42V100τr0,4	P84V100τr0,8
a)	b)	c)	d)	e)

Figure IV-63 : Imageries optiques de draps 2D (5mmx1mm). Sens de balayage laser de droite à gauche.

IV.5 Conclusion du chapitre IV

Les mesures des propriétés radiatives *in operando* pour différentes configurations en réflexion et en transmission 0D, 1D et 2D, associées aux modèles optiques pour les milieux semi-transparents *(Chapitre III)*, ont permis de caractériser pleinement les échanges radiatifs qui peuvent surgir au cours d'une fabrication LBM. De telles mesures mettent en évidence les effets des **paramètres du procédé** (P, z_{poudre} , V, E_l, τ_r), des **états de la matière** (solide, fondu ou liquide), de la **nature du milieu irradié** (substrat dense/LDP/LDP déposé sur substrat), des **lits de poudre** (compacité ou fraction volumique de particules, taille de particules) et de la nature et teneur en **absorbants**. De manière générale, les mesures réalisées sont cohérentes avec les valeurs de la littérature, pour la variation de l'absorbance avec la température, l'effet de la puissance et de la vitesse de balayage, l'effet de la rugosité et de la multi-réflexion, ainsi que l'effet de la fraction volumique de particules ou de la porosité. On note que la stratégie de fabrication 3D choisie dans notre cas revient à une succession de monocordons, c'est donc les résultats de la configuration à 1D qui s'appliquent et non le cas de la configuration 2D.

Le montage réalisé pourra être par la suite amélioré avec la diminution du rapport signal/bruit, ou avec par exemple l'utilisation d'un laser supplémentaire afin de découpler la chauffe de la mesure. De manière générale, les signaux sont tout de même très dispersés, particulièrement en réflexion avec l'erreur créée par l'ouverture, et il est important de multiplier les mesures. Aussi, un détecteur moins sensible pourrait être envisagé en transmission pour étudier les fines épaisseurs de poudre sur substrat en verre.
Les coefficients d'absorption et d'extinction, ainsi que les coefficients d'absorption K et de diffusion et S ont pu être calculés de manière efficace. Les coefficients d'absorption α_{abs} et d'extinction α_{ext} sont équivalents et cohérents avec les ordres de grandeur issus de la littérature. Il est alors possible d'employer le modèle homogène pour décrire les lits de poudre de l'étude. Ces coefficients d'absorption seront comparés à ceux calculés dans le chapitre suivant, dans lequel un modèle d'interaction laser-matière basé sur le modèle homogène de Beer-Lambert sera construit prenant en compte d'une part les propriétés radiatives et d'autre part les dimensions des bains.

Les propriétés radiatives à l'état solide pour les configurations 0D, 1D et 2D doivent être équivalentes bien que dispersées. On note néanmoins que ce n'est pas le cas pour les réflectances à 0D et 1D pour le substrat d'alumine qui fond en configuration 1D et non en 0D ($R_h^{0D} > R_h^{1D}$). Quelle que soit la configuration, **l'état fondu absorbe plus que l'état non fondu**, par la supériorité d'absorption intrinsèque du liquide. Toutefois, cet état transmet plus que le LDP isolé par diminution de la multi-réflexion *(Figure IV-64)*.

La **puissance** a un effet d'autant plus marqué que le milieu est absorbant, donc au sein du milieu liquide ou des lits de poudre épais et mélangés aux absorbants.
Pour les **états fondus en 1D**, le laser interagit avec le bain liquide mais également avec le LDP environnant et le substrat sous-jacent. L'équilibre entre ces trois milieux dépend des paramètres du procédé. A faible **énergie linéique** (faible P et fort V), les propriétés radiatives des monocordons se rapprochent des propriétés du LDP et à forte énergie linéique, les propriétés radiatives se rapprochent des propriétés de l'état fondu, voire du keyhole en configuration 0D. L'augmentation de la vitesse de balayage V associée à la diminution du volume de bain, pourrait induire une interaction majoritaire avec le LDP non fondu en amont du bain. **L'ajout d'un absorbant permet de travailler à plus faible énergie linéique (notamment à faible puissance et forte vitesses). Toutefois, il ne convient pas de diminuer trop fortement la vitesse de balayage puisqu'elle engendre une interaction majoritaire du laser avec le LDP et peut favoriser les éjections de particules de poudre. L'interaction majoritaire du laser avec le bain liquide doit permettre de minimiser les phénomènes perturbateurs sans toutefois favoriser l'éjection de particules liquides.**

En **<u>dynamique 2D</u>**, les valeurs des propriétés radiatives (réflectance et transmittance) de la première ligne de fusion sont équivalentes à celles des monocordons 1D et celles des traits laser suivants du drap 2D sont inférieures à celles du monocordon 1D : $R_f^{1D} \geq R_f^{2D}$ et $Tr_f^{1D} \geq Tr_f^{2D}$ soit au final $A_f^{1D} \leq A_f^{2D}$. En effet le laser interagit comme pour le monocordon 1D avec le bain liquide, le lit de poudre environnant et le substrat sous-jacent mais également avec le cordon juxtaposé précédemment consolidé. **La stratégie de recouvrement entre cordons peut alors permettre de stabiliser l'interaction laser-matière même à faibles teneurs en absorbant (par diminution de la multi-réflexion) en contrôlant le refroidissement avec l'effet de point chaud.**

Pour un état non fondu, la **<u>multi-réflexion</u>** qui a lieu dans le milieu granulaire (ou sur une surface rugueuse) piège le rayonnement incident au sein du lit de poudre (ou de l'interface). Elle multiplie donc l'interaction au sein du LDP vis-à-vis d'une surface spéculaire. **L'augmentation de l'absorbance résultante est d'autant plus importante que le milieu est intrinsèquement absorbant à la longueur d'onde** *(Figure IV-64 a-b)*. **La rugosité de surface n'a donc pas de forte influence sur les matériaux semi-transparents.**
Néanmoins, pour un milieu semi-transparent, l'épaississement du lit de poudre et donc l'augmentation de la multi-réflexion au sein du milieu granulaire semble avoir l'effet inverse : l'absorbance tend à diminuer *(Figure IV-64 a-c).* L'augmentation de la réflexion (plus grand nombre d'interfaces) prend le pas sur la diminution de la transmission *(Figure IV-64.b-c)*. Les grandeurs α_{abs}, α_{ext}, K et S diminuent.
Même pour de fortes épaisseurs du lit de poudre, on a toujours un signal transmis, pour les états non fondu ou fondu, jusqu'à 2 mm d'épaisseur, fonction des paramètres du procédé et ceci, même sur les systèmes mélangés à des absorbants. Il existe une valeur limite d'épaisseur correspondant à l'opacité du milieu, à partir de laquelle $Tr_h = 0\%$. Pour la configuration 1D, cette valeur limite augmente avec l'énergie linéique. **Un signal est donc transmis au substrat à travers un milieu à l'état solide ou fondu et doit contribuer à la fusion du substrat**. Pour l'état fondu, c'est ce qui explique les fortes profondeurs de bain à forte énergie linéique et le *balling* à faible énergie linéique. Si l'épaisseur d'opacité du lit de poudre (correspondant à $Tr_h = 0\%$) est petite et inférieure à Δz_{poudre}, le rayonnement est atténué avant d'avoir traversé toute l'épaisseur de poudre. **L'épaisseur de poudre à choisir pour la construction doit donc être supérieure à la valeur limite d'opacité du milieu fondu mais elle doit être la plus petite possible afin de minimiser la multi-réflexion qui induit des pertes du rayonnement.**

La **<u>nature du substrat</u>** (ou lors de la fabrication, la ou les couches précédemment fondues - jusqu'à 6 couches) a un impact important sur les propriétés radiatives. La présence d'un substrat dense dont la surface est fortement réfléchissante en dessous d'un LDP augmente la multi-réflexion de l'ensemble et ceci, même pour les LDP mélangés avec un absorbant *(Figure IV-64.c-d).* **L'emploi d'un LDP absorbant est alors important pour limiter les pertes du rayonnement par multi-réflexion et transmission au substrat. L'emploi d'un substrat absorbant est aussi critique, car elle permet de limiter la réflexion à l'interface et les pertes par transmission**. Le système alumine-zircone légèrement « contaminé » par des impuretés absorbantes par rapport à l'alumine pure, montre une absorbance améliorée à la fois du LDP, du substrat et de l'ensemble {LDP+Substrat}, ce qui permet un large domaine de stabilité de construction. Une solution pour obtenir un domaine de stabilité satisfaisant est l'ajout d'un absorbant efficace comme le carbone en teneur optimisée à la poudre d'alumine. Un tel ajout permet également de diminuer la quantité de rayonnement atteignant le substrat transparent tout en permettant la fusion de ce dernier par conduction ou rayonnement sur une certaine gamme de longueurs d'onde. Lors des fusions successives couche après couche, on peut considérer que les couches fondues seront absorbantes car l'alumine et la zircone seront dans un état réduit (oxydes sous-stœchiométriques) et donc absorbant à la longueur d'onde du laser *(Chapitre II)*.

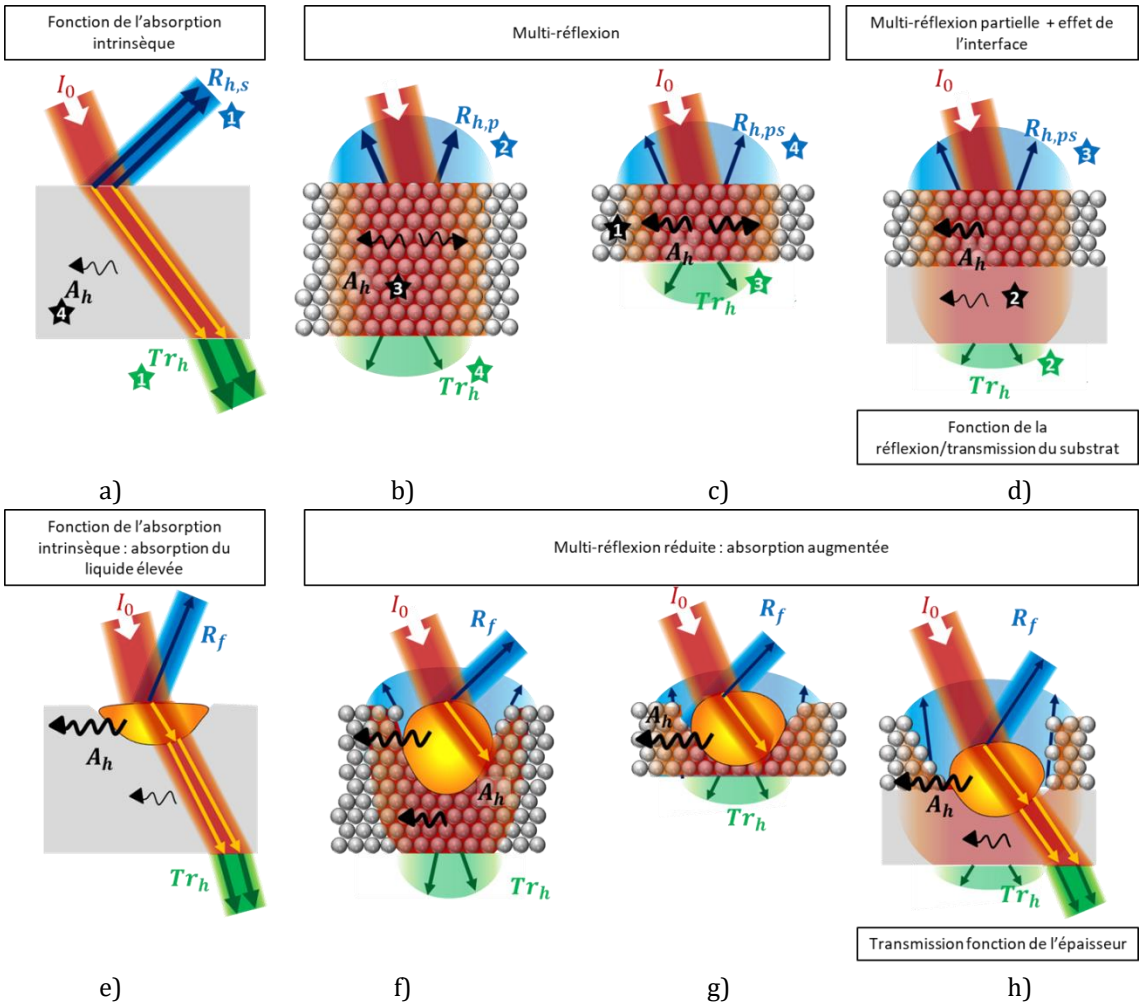


Figure IV-64 : Variations des propriétés radiatives pour les différents systèmes céramiques étudiées brutes de réception

Par ailleurs, il est possible d'optimiser la **taille des particules et la compacité du LDP**. La réduction de la taille des particules ou la diminution de la porosité (ou augmentation de la fraction volumique de particules) permet une augmentation des coefficients K, S et α_{ext} *(équations III.66 et III.108)*.

L'ajout d'un **absorbant** à la poudre d'alumine pure permet l'augmentation de l'absorption et facilite l'amorce de la fusion. Une fois la fusion amorcée, le liquide est absorbant et permet l'entretien de la fusion même si l'absorbant disparait. La nature et la teneur en absorbant vont influencer l'échauffement du milieu avec le temps d'interaction avant fusion et le délai avant amorce du keyhole. Le carbone, plus intrinsèquement absorbant que le SiC-β permet un échauffement efficace. A 0,1%m.C, il permet un échauffement modéré qui donne lieu à un large domaine de stabilité en énergie linéique. Bien que l'ajout de 0,1%m.SiC-β permette la fusion de l'alumine, il ne garantit pas une interaction laser-matière satisfaisante par la part conséquente de rayonnement réfléchi. Il faudrait alors investiguer une plus forte teneur en SiC-β. Nous verrons que pour les constructions 3D, le mélange à 0,5%m.SiC- β a été retenu. Par ailleurs, le SiC-β se décompose en SiO gazeux avant de se recombiner en SiO_2 solide et peut alors venir perturber l'interaction laser-matière globale. L'équilibre entre la nature, la teneur en absorbant et les paramètres du procédé doit permettre une absorption suffisante (teneur et absorption intrinsèque élevée de l'absorbant et énergie linéique forte) tout en gardant une absorption non excessive pour ne pas amorcer le keyhole trop tôt ou venir exploser le bain avec la génération de CO_2 lors de la combustion sous air de l'absorbant (teneur et absorption intrinsèque faible et énergie linéique faible).
Aussi, l'ajout de particules métalliques engendre un domaine de stabilité satisfaisant en rendant l'interaction laser-matière plus surfacique que pour l'alumine pure. Dans ce cas, la question de la limite

d'applicabilité du modèle K-M se pose, notamment en termes de K et de S. En effet, il est probable que K>S à l'inverse des résultats obtenus.
L'addition d'un absorbant éphémère ou persistant en quantités modérées permet d'augmenter la part de rayonnement absorbé sans déstabiliser le bain liquide. Toutefois, l'épaisseur de poudre à choisir pour la construction doit donc rester supérieure à la valeur limite d'opacité du milieu fondu. Il faut donc opter pour une poudre relativement absorbante et une épaisseur de poudre suffisamment faible à condition que le substrat sous-jacent, donc la couche précédemment solidifiée soit suffisamment absorbante.

Pour aller plus loin, l'application du modèle à **4 flux** permettrait de s'affranchir des limites du modèle à 2 flux et de continuer l'étude de diffusion sur matériaux absorbants et sur les mélanges céramique/métal. Egalement, il convient de mieux évaluer l'effet de la taille des particules, de la distribution granulométrique et de la fraction volumique de particules en élargissant les gammes de variation par rapport au travail déjà réalisé. De plus, il pourrait être pertinent de caractériser précisément l'effet de la dénudation et de la sous-stœchiométrie en oxygène variant en cours de fusion sur les propriétés radiatives et optiques des céramiques lasées.

CHAPITRE V

MODELES D'INTERACTION LASER-MATIERE

D'un point de vue optique, la matière à fusionner par LBM du premier contact entre le laser et la matière jusqu'à la formation complète du bain se décompose en deux milieux (dépôt particulaire sur substrat dense). Pour la compréhension de l'interaction laser-matière mise en jeu lors du LBM, il est donc primordial d'établir une bonne description de l'interaction laser-LDP avant formation du bain de fusion. Dans le cas où le bain est complètement formé et qu'il ne fait que se déplacer à la vitesse de balayage laser avec un spot constamment sur le liquide, l'interaction initialement volumique par le LDP devient surfacique par l'absorption intrinsèque du liquide et sa montée en température avec l'énergie linéique. C'est pourquoi, il faut donc également comprendre et avoir une bonne description de l'interaction laser-liquide.
Dans ce chapitre, seront exposés deux modèles reposant sur la loi de Beer-Lambert, applicables au milieu particulaire ou dense. Le modèle de type SLA est simple et facilement applicable dans le cas d'un milieu unique (substrat dense ou LDP). Le modèle dit évolutif est plus complexe, il permet un couplage avec les mesures radiatives décrites dans le chapitre précédent et s'applique en plus aux milieux mixtes (LDP+Substrat}. Ces deux modèles établissent le lien entre les grandeurs optiques, les paramètres du procédé et les caractéristiques du lit de poudre pour prédire les dimensions, sections et formes des bains.
Le modèle évolutif est appliqué la suite d'une part aux milieu granulaire (LDP) et d'autre part à la configuration LBM, c'est-à-dire à l'ensemble des deux milieux {LDP+Substrat}. En effet, la comparaison de ces deux milieux permet une description complète de l'interaction laser-matière qui a lieu au cours du LBM.
Ces modèles constituent alors un outil pour définir par exemple les grandeurs optiques propres au procédé telles que les coefficients d'absorption solide et liquide, l'énergie linéique nécessaire pour fondre le matériau dense à l'interface lit de poudre/substrat ou encore les différentes sections d'interaction laser/lit de poudre. Le calcul de ces sections permettra l'établissement du modèle de consolidation du Chapitre VI prenant en compte les éjections de particules solides du LDP. De plus, avec la définition des grandeurs optiques, géométriques et énergétiques de l'interaction laser-matière, ces modèles permettent de mettre en avant différents effets : par exemple, l'effet des absorbants éphémères ou persistants, ajoutés à la poudre céramique pure ou encore la comparaison des systèmes céramiques semi-transparentes avec les matériaux métalliques absorbants.

D'un point de vue pratique, les lits de poudre ne permettent pas de mesurer les dimensions des bains car leur compacité et leur tenue mécanique sont trop faibles pour une bonne manipulation. Dans cette étude, les dimensions des bains sont donc relevées sur des compacts de poudre, dont la compacité est suffisante pour permettre les mesures des dimensions des bains. Ainsi, les mesures sur différents compacts aux densités relatives variables ont permis d'extrapoler l'effet de la porosité réelle du lit de poudre vis-à-vis des grandeurs optiques et des dimensions des bains.

Sommaire du Chapitre V

V MODELES D'INTERACTION LASER-MATIERE 234

V.1 MODÈLE DE TYPE SLA 236

V.1.1 Approche analytique 236

V.1.2 Du SLA au LBM 239

V.1.3 Morphologie des bains et domaines d'interaction 242

V.2 MODÈLE ÉVOLUTIF 245

V.2.1 Cas du milieu unique : approche analytique 245

V.2.1.1 Absorption avant formation du bain de fusion 245

V.2.1.2 Absorption après formation du bain de fusion 246

a) Fusion en surface : expression de L, α_{abs}, Φ_{int} et $E_{l\,min}$ 248*

b) Pénétration du bain de fusion : expression de la profondeur fondue z_p (y), H et α_f 251

c) Approximation de la profondeur H 254

V.2.1.3 Cas limite $\alpha_{abs} \approx \alpha_f$ (1-Pt) : expression de la forme de la zone fondue et de $E_{l,\,min}$ 255

V.2.2 Relation entre $E_{l,\,min}$ et $E_{l,\,min}$* 257

V.2.3 Cas du lit de poudre sur substrat dense 257

V.2.3.1 Absorption avant formation du bain de fusion ($t<t_f$) 257

V.2.3.2 Absorption après formation du bain de fusion dans le lit de poudre ($t_i>t>t_f$) 259

V.2.3.3 Absorption à l'interface lit de poudre/substrat ($t=t_i$) 260

a) Expression de la frontière de la zone apparente z_{app} et de la surface apparente $S_{app,i}$ 260

b) Expression de l'énergie linéique d'interface $E_{l,i}$ et de la largeur $e_{app,i}$ 262

c) Expression de la largeur d'interaction à l'interface e_i 263

V.2.3.4 Absorption après formation du bain de fusion dans le substrat ($t>t_i$) 264

a) Bilans 265

b) Conditions limites dans le lit de poudre 265

c) Conditions limites dans le substrat et expression des dimensions du bain de fusion (profondeur H_{ZR}, et largeur refondue e_{ZR}) 266

V.2.3.5 Forme de la zone refondue 270

V.3 SECTION DES BAINS 271

V.3.1 Interaction et consolidation dans le milieu granulaire (lit ou compact de poudre) 271

V.3.2 Interaction à l'interface 273

V.3.3 Interaction dans le substrat 274

V.4 COMPARAISON DES MODÈLES ET RÉSULTATS 279

V.4.1 Nature absorbante des matériaux et compacité 280

V.4.2 Taille des particules 283

V.4.3 Nature et teneur en absorbant 284

V.4.3.1 Absorbants éphémères 284

V.4.3.2 Mélanges céramique-métal 287

V.5 CONCLUSION DU CHAPITRE V 288

V.1 Modèle de type SLA

(Shaker, 2017) a adapté le modèle d'interaction laser-matière issu de la stéréolithographie (UV/résine) au procédé LBM (IR/lit de poudre). Ce modèle est fondé sur une interaction volumique et avait préalablement été modifié et adapté à la stéréolithographie céramique -CSL (Hinczewski et al., 1998). Il met en relation les dimensions des bains avec les propriétés optiques comme le coefficient d'absorption moyen α_{abs}, le diamètre d'interaction entre le faisceau laser et le matériau Φ_{int}, et les énergies linéiques minimales nécessaires pour former un bain en largeur $E^*_{l\,min}$ et en profondeur $E_{l\,min}$ avec $E_{l\,min} > E^*_{l\,min}$.

V.1.1 Approche analytique

On considère le faisceau laser gaussien de puissance P qui irradie un milieu unique et homogène d'un point de vue optique. La puissance surfacique du rayonnement incident I_0 en $[W.mm^{-2}]$ (ou irradiance/densité de puissance,…) qui décrit la distribution gaussienne de l'intensité du laser est :

$$\boldsymbol{I_0\,(r) = \frac{2P}{\pi r_0^2} \cdot exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right) = I_0^{max}.\,exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right)}$$

$$\text{avec } I_0^{max} = \frac{8P}{\pi.\Phi_L^2} = \frac{2P}{\boldsymbol{\pi r_0^2}}$$

On note $r_0 = \Phi_l/2$ le rayon du disque dans lequel $I_0 > I_0^{max}/e^2$. Au contact de la surface, une partie du faisceau incident est réfléchie et une autre transmise *(Figure V-1)*. La puissance surfacique transmise en surface (z=0) en $[W.mm^{-2}]$ est alors exprimée par[1] :

$$\boldsymbol{I_{t,z=0}(r) = I_0 - I_r = (1 - R_{nf}).I_0 = (1 - R_{nf}) \cdot \frac{2P}{\pi r_0^2} \cdot exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right)}$$

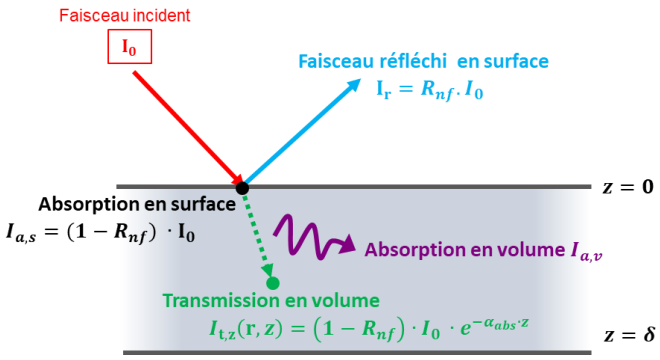


Figure V-1 : Interaction laser-matière en surface et en volume suivant le modèle de type SLA

La partie transmise en surface se propage en profondeur dans le matériau avec une atténuation décrite par la loi de Beer-Lambert. La puissance surfacique transmise à une profondeur z de la surface $[W.mm^{-2}]$ est égale à :

$$\boldsymbol{I_{t,z}(r,z) = I_{t,z=0}.\,exp(-\alpha_{abs}.\,z) = (1 - R_{nf}) \cdot \frac{2P}{\pi r_0^2} \cdot exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right) \cdot exp(-\alpha_{abs}.\,z)}$$

On rappelle que pour les milieux optiquement hétérogènes, α_{abs} est remplacé par $\boldsymbol{\alpha_{ext} = \sqrt{K(K + 2S)}}$. A partir de l'équation précédente, on exprime la puissance volumique absorbée dans le volume du lit de poudre en $[W.mm^{-3}]$ à une profondeur z de la surface en un point de coordonnées (r, z) :

[1] R_{nf} correspond dans ce chapitre à la réflectance du milieu non fondu.

$$\boldsymbol{I_{a,v}(r,z) = -\frac{dI_{t,z}(r,z)}{dz} = (1-R_{nf}).\alpha_{abs}\cdot\frac{2P}{\pi r_0^2}\cdot exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right)\cdot exp(-\alpha_{abs}.z)}$$

La puissance volumique absorbée est calculée aux points de cordonnées $\left(\frac{L}{2},0\right)$ et $(0,H)$ qui correspondent respectivement aux limites du bain de fusion en largeur et en profondeur *(Figure V-2)*. Dans le cas de la profondeur :

$$I_{a,v}(0,H) = (1-R_{nf}).\alpha_{abs}\cdot\frac{2P}{\pi r_0^2}\cdot exp\left(-\frac{H}{\delta_{abs}}\right) = (1-R_{nf}).\alpha_{abs}\cdot\frac{2.V.E_l}{\pi r_0^2}\cdot exp(-H.\alpha_{abs})$$

$$H = \frac{1}{\alpha_{abs}}.ln\left(\frac{2(1-R_{nf})V.\alpha_{abs}}{\pi.r_0^2.I_{a,v}(0,H)}.E_l\right)$$

$$\boldsymbol{H = \frac{1}{\alpha_{abs}}.\ln\left(\frac{E_l}{E_{l\,min}}\right)} \qquad \text{V.1}$$

Soit

$$H = \frac{1}{\alpha_{abs}}\ln(E_l) - \frac{1}{\alpha_{abs}}\ln\left(E_{l\,min}\right)$$

Avec :

$$\boldsymbol{E_{l\,min} = \frac{\pi.r_0^2.I_{a,v}(0,H)}{2.V.(1-R_{nf}).\alpha_{abs}}} \qquad \text{V.2}$$

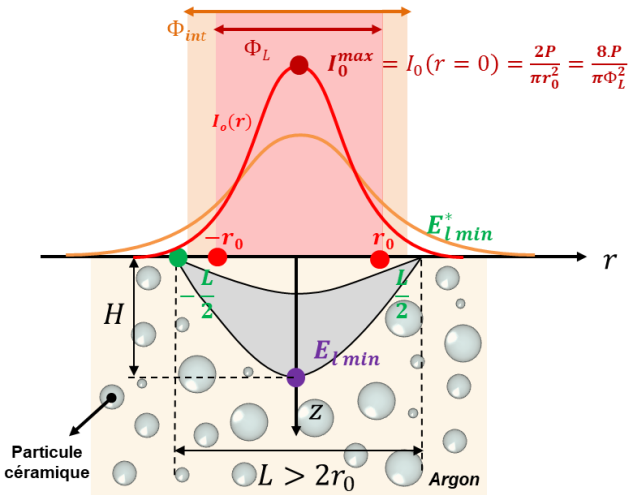


Figure V-2 : Distribution de l'intensité du faisceau laser liée à l'interaction laser-matière au cours du LBM sur compact de poudre céramique

De la même manière en largeur :

$$I_{a,v}\left(\frac{L}{2},0\right) = (1-R_{nf}).\alpha_{abs}\cdot\frac{2P}{\pi r_0^2}\cdot exp\left(-\frac{L^2}{2r_0^2}\right) = (1-R_{nf}).\alpha_{abs}\cdot\frac{2.V.E_l}{\pi r_0^2}\cdot exp\left(-\frac{2.L^2}{\Phi_L^2}\right)$$

$$L^2 = \frac{\Phi_L^2}{2}.\ln\left(\frac{2(1-R_{nf})V.\alpha_{abs}}{\pi.r_0^2.I_{a,v}\left(\frac{L}{2},0\right)}.E_l\right)$$

$$L^2 = \frac{\Phi_L^2}{2}.\ln(E_l) - \frac{\Phi_L^2}{2}.\ln(E^*_{l\,min})$$

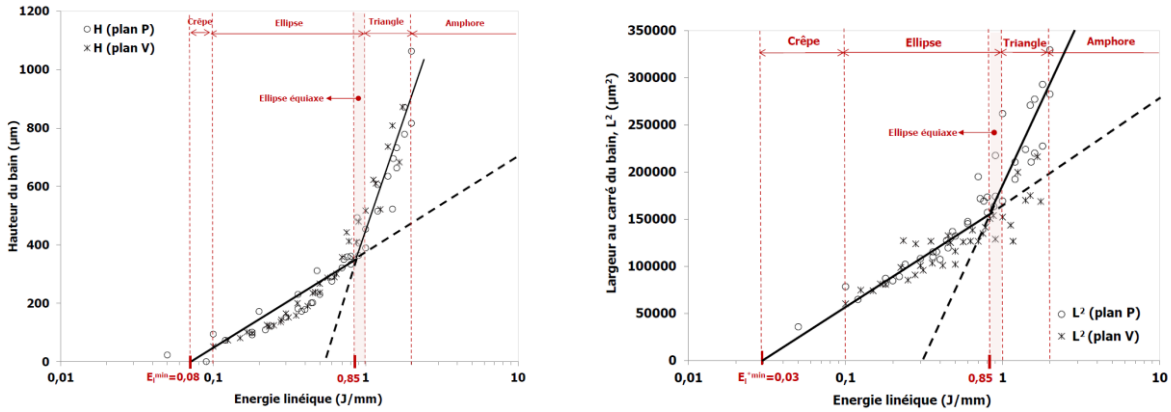
$$L^2 = \frac{\Phi_L^2}{2} \cdot ln\left[\frac{E_l}{E^*_{l\,min}}\right] \qquad \text{V.3}$$

Avec :

$$E^*_{l\,min} = \frac{\pi . r_0^2 . I_{a,v}\left(\frac{L}{2}, 0\right)}{2.V.\left(1 - R_{nf}\right).\alpha_{abs}} \qquad \text{V.4}$$

La distribution énergétique du faisceau laser (ou la répartition de sa densité de puissance) est un paramètre important pour appréhender le volume du bain. Or, au travers des énergies linéique, surfacique ou volumique, soient respectivement E_l, E_s ou E_v, il est supposé que la répartition énergétique est homogène sur toute la surface d'interaction, ce qui est loin de la réalité. C'est la raison pour laquelle la distribution énergétique absorbée en volume $I_{a,v}(r,z)$ est employée.

D'après les *équations (V.1) et (V.3)*, la profondeur H et la largeur au carré L^2 des bains de fusion sont des fonctions logarithmiques de l'énergie linéique de type $\boldsymbol{y = a.ln(E_l) + b}$ (a et b étant des constantes). (Shaker, 2017) a vérifié ces tendances dans le cas de l'hydroxyapatite pour des bains dits « stables » et suivant leur morphologie (de type « ellipse » lorsque H<L à faible énergie linéique ou « triangle » à moyenne énergie linéique avec H>L) - *Figure V-3*.



a) b)

Figure V-3 : Application du modèle de type SLA – Représentation en échelle semi-log des dimensions des bains de fusion LBM sur compact d'hydroxyapatite en fonction de l'énergie linéique pour a) la profondeur H b) le carré de la largeur L² d'après (Shaker, 2017)

La profondeur H et largeur L sont donc liées aux paramètres d'interaction α_{abs} $[mm^{-1}]$ le coefficient d'absorption et Φ_L $[mm]$ le diamètre du faisceau laser *(équations (V.1) et (V.3), Figure V-4)*. Les dimensions du bain sont aussi reliées aux énergies linéiques minimales nécessaires pour la fusion du matériau en profondeur $E_{l\,min}$ et en largeur $E^*_{l\,min}$. (Shaker, 2017) a montré que $E_{l\,min} > E^*_{l\,min}$. Nous verrons plus loin que cette différence s'explique avec le modèle évolutif.

Or, expérimentalement, à l'image de ce qui a été observé en CSL (Hinczewski et al., 1998), pour être en accord avec les points expérimentaux, le diamètre du faisceau laser lors de l'interaction semble devoir s'élargir par rapport au diamètre nominal du laser Φ_L . Le diamètre Φ_L est donc remplacé par un diamètre d'interaction laser-matière $\Phi_{int} > \Phi_L$ *(Figure V-4.b)*. L'*équation (V.3)* devient alors :

$$L^2 = \frac{\Phi_{int}^2}{2} \cdot ln\left[\frac{E_l}{E^*_{l\,min}}\right] \qquad \text{V.5}$$

(Shaker, 2017) montre par ailleurs que la forme de la zone fondue peut s'exprimer tel que :

$$\frac{2}{r_0^2} y^2 + \alpha_{abs}.z = ln\left[\frac{E_{vol}^{max}}{E_{vol}^{min}}\right] \qquad \text{V.6}$$

avec E_{vol}^{max} l'énergie volumique maximale au point (y = 0 ; z = 0) soit encore $E_{vol}^{max} = E_{vol}(0,0) = ((1 - R_{nf}).\alpha_{abs}.E_l)/(\sqrt{2\pi}.r_0)$ et E_{vol}^{min} l'énergie volumique minimale en deçà de laquelle le compact ne fond plus. Cette *équation (V.6)* indique que la section transverse d'un bain a une forme parabolique de type $ay^2 + bz = c$ plutôt qu'une forme elliptique ou sphérique.

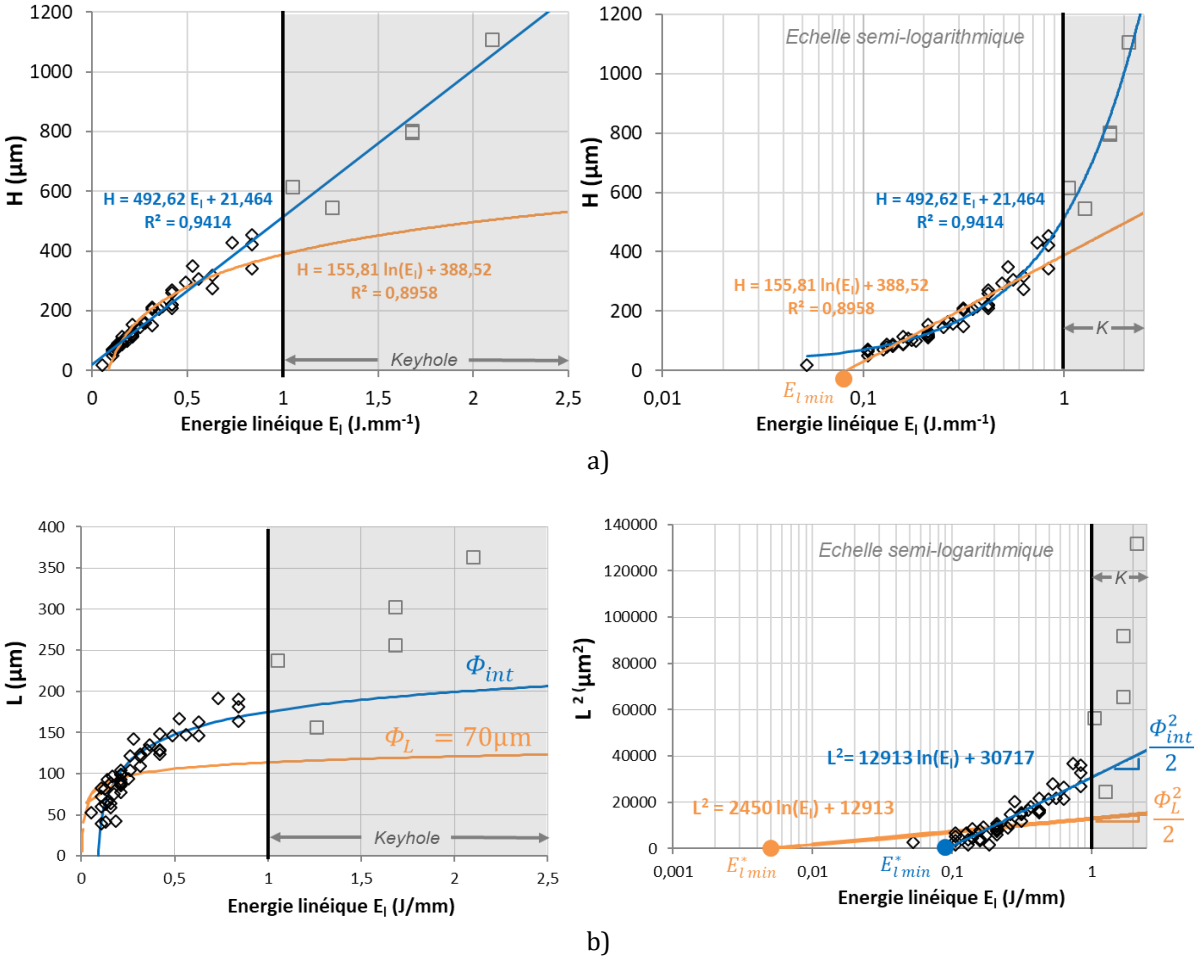


Figure V-4 : Application du modèle de type SLA à la profondeur (a) et à la largeur (b) des bains LBM pour le compact d'alumine pure {CA} en échelle semi-logarithmique et en échelle linéaire

V.1.2 Du SLA au LBM

La stéréolithographie (SLA) repose sur la polymérisation d'une résine photosensible aux UV *(Figure V-5.a)*. C'est un milieu 100% dense, homogène à un indice optique unique $\boldsymbol{n_r}$ lié à la résine, et dans lequel la diffusion n'intervient pas. Le milieu d'interaction (résine) est absorbant. Les équations reliant les dimensions des bains sont établies à partir de l'énergie surfacique (ou densité d'énergie) DE *(Tableau V-1)*. Le diamètre du faisceau laser Φ_L suffit alors à décrire l'interaction ainsi qu'une unique valeur d'énergie linéique minimale (ou critique) DE_c d'amorce pour la photo-polymérisation. L'absorption par la résine est homogène en profondeur et en largeur, elle est à l'image de la distribution énergétique du faisceau.

La stéréolithographie céramique (CSL) consiste à polymériser une résine liquide photosensible aux UV chargée de particules céramiques *(Figure V-5.b)*. La matrice *i.e.* la résine est un milieu 100% dense et absorbant au rayonnement UV, tandis que les particules céramiques sont semi-transparentes et diffuseurs de ce même rayonnement incident. La résine et les particules sont en contact « parfait ». L'ensemble constitue un milieu hétérogène dense à 2 indices optiques $(\boldsymbol{n_p^{ceram}}, \boldsymbol{n_r})$. L'interaction est alors élargie par

rapport au SLA par suite du phénomène de diffusion par les particules céramiques avec la différence d'indices optiques.
Le transfert du modèle SLA au modèle CSL repose d'une part sur la modification de Φ_L en Φ_{int} pour coïncider avec les points expérimentaux car l'interaction est élargie par la diffusion due aux particules céramiques (Hinczewski et al., 1998; Liao, 1998). D'autre part, l'énergie linéique minimale est différenciée pour la polymérisation en profondeur et en largeur : DE'_c et DE_c^* *(Tableau V-1)*.

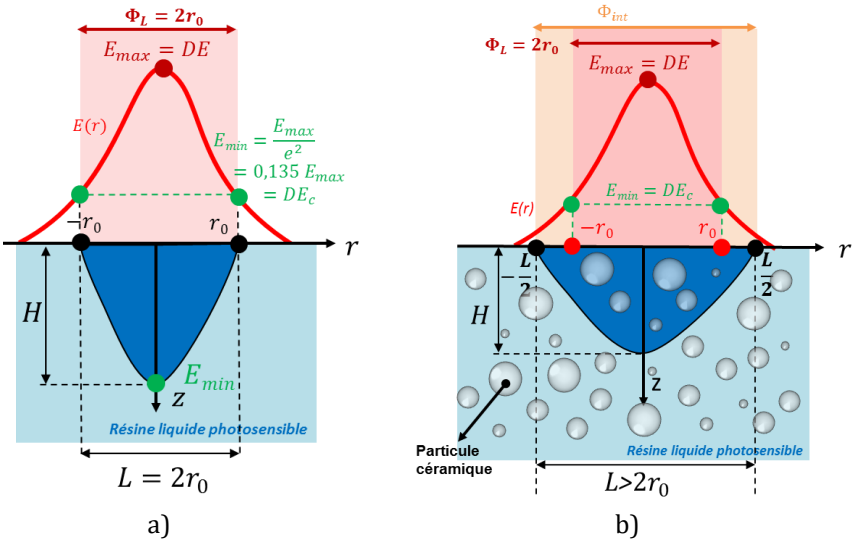


Figure V-5 : Distribution énergétique du faisceau laser liée à l'interaction laser-matière au cours du a) SLA b) CSL

Tableau V-1 : Comparaison des paramètres d'interaction laser-matière du modèle SLA appliqué au SLA, CSL et LBM

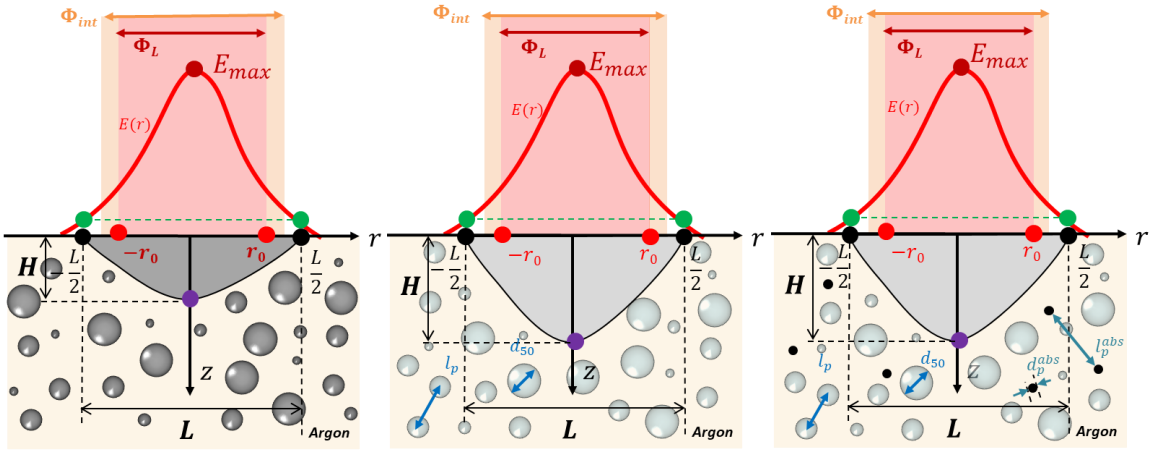
	SLA	CSL	LBM
Coefficient d'absorption (mm^{-1})	α_{abs}	α_{abs}	α_{abs}
Diamètre d'interaction (µm)	Φ_L	Φ_{int}	Φ_{int}
Densité d'énergie ou énergie linéique minimale en profondeur (J.mm^{-2} ou J.mm^{-1})	DE_c	DE'_c	$E_{l\,min}$
Densité d'énergie ou énergie linéique minimale en largeur (J.mm^{-2} ou J.mm^{-1})		DE_c^*	$E_{l\,min}^*$
H (µm)	$\frac{1}{\alpha_{abs}^{SLA}} . \ln\left(\frac{DE}{\boldsymbol{DE_c}}\right)$	$\frac{1}{\alpha_{abs}^{CSL}} . \ln\left(\frac{DE}{\boldsymbol{DE'_c}}\right)$	$\frac{1}{\alpha_{abs}} . \ln\left(\frac{E_l}{\boldsymbol{E_{l\,min}}}\right)$
L^2 (µm^2)	$\frac{\boldsymbol{\Phi_L^2}}{2} . \ln\left(\frac{DE}{\boldsymbol{DE_c}}\right)$	$\frac{\boldsymbol{\Phi_{int}^2}}{2} . ln\left(\frac{DE}{\boldsymbol{DE_c^*}}\right)$	$\frac{\boldsymbol{\Phi_{int}^2}}{2} \cdot ln\left(\frac{E_l}{\boldsymbol{E_{l\,min}^*}}\right)$

La nature du contact (parfait ou imparfait) entre particules et résine, et l'hétérogénéité du mélange conditionne le transfert de chaleur du faisceau laser à la céramique. Un milieu homogène favorise l'absorption surfacique (SLA ou substrat dense absorbant) et un milieu hétérogène, une absorption volumique par la différence d'indices optiques entre matrice et particules (CSL ou milieu granulaire). Le contact parfait est garant d'un transfert de chaleur efficace et régulier tandis que le contact imparfait produit un transfert de chaleur inefficace et irrégulier (et donc non répétable et dispersée).

Le LBM sur milieu unique particulaire (LDP ou compact de poudre) présente une configuration proche du CSL, à la différence près que le milieu environnant les particules est de l'argon ou de l'air, donc non absorbant. Ce qui indique là encore un contact « parfait » entre les particules et la matrice. Les particules céramiques sont transparentes et diffuseurs du rayonnement proche IR. L'ensemble constitue donc un milieu hétérogène non dense à 2 indices optiques (n_{air} , $n_p^{céram}$).

L'adaptation du modèle SLA au LBM prend en compte les modifications apportées par le CSL, c'est-à-dire la différenciation des énergies linéiques minimales en profondeur et en largeur ($E_{l\,min}$ et $E^*_{l\,min}$) et l'élargissement de la zone d'interaction par la diffusion ($\Phi_L \rightarrow \Phi_{int}$). En plus de cela, l'énergie surfacique est convertie en énergie linéique, le diamètre du faisceau laser étant constant, le facteur entre les deux énergies est une constante *(§I.1.2)*.

Par ailleurs, il faut différencier les milieux LBM particulaires suivant leur nature absorbante vis-à-vis de la longueur d'onde du rayonnement laser. Pour le LBM de particules métalliques, les particules sont absorbantes et diffuseurs du rayonnement *(Figure V-6.a)*. L'interface est « parfaite » entre l'atmosphère et particules métalliques et le milieu est hétérogène non dense à 2 indices optiques ($\boldsymbol{n_{Ar}}, \boldsymbol{n_p^{métal}}$).
Pour le LBM de particules céramiques dopées intrinsèquement, à l'image des métaux, les particules sont absorbantes et diffuseurs du rayonnement *(*Figure V-6*.b)*. Les particules céramiques ont une taille moyenne d_{50} et sont distantes les unes des autres de l_p. L'interface reste « parfaite » entre l'atmosphère et les particules céramiques. Le milieu est hétérogène non dense à 2 indices optiques ($\boldsymbol{n_{Ar}}, \boldsymbol{n_p^{céram}}$).
Pour le LBM de particules céramiques dopées extrinsèquement, il s'agit d'un mélange de particules céramiques transparentes et diffuseurs du rayonnement avec les absorbants extrinsèques (C ou SiC-β) - *Figure V-6.c*. Les absorbants sont de taille moyenne d_p^{abs} , éloignées les uns des autres de l_p^{abs} et en quantité f_{vp}^{abs} au sein du milieu gazeux (argon ou air). Dans ce cas, l'interface est « imparfaite » entre absorbant et particules céramiques mais « parfaite » entre l'atmosphère environnante et les particules céramiques comme les absorbants. Le milieu global est hétérogène non dense à 3 indices optiques fortement différents ($\boldsymbol{n_{Ar}}, \boldsymbol{n_p^{céram}}, \boldsymbol{n_{abs}}$). Suivant la répartition de l'absorbant, l'homogénéité de l'absorption varie.



a) b) c)

Figure V-6 : Interaction laser-LDP d'épaisseur infinie pour le LBM a) de particules métalliques b) de particules céramiques dopées intrinsèquement c) de particules céramiques dopées extrinsèquement.

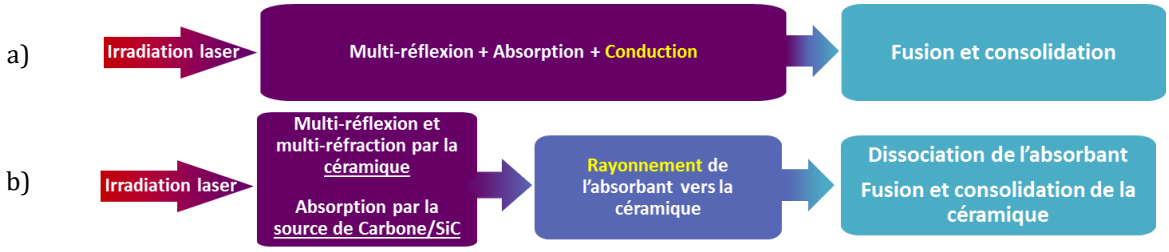


Figure V-7 : Interaction laser-LDP pour le LBM a) de particules métalliques ou particules céramiques dopées intrinsèquement (interaction directe) b) de particules céramiques dopées extrinsèquement (interaction indirecte)

La nature intrinsèque de l'absorption conditionne le transfert de chaleur en une *(Figure V-7.a)* ou plusieurs étapes *(Figure V-7.b)*. En effet, pour les mélanges de particules céramiques avec le Carbone ou le

SiC qui subissent une dissociation, le rayonnement monochromatique sera premièrement capté par l'absorbant *(Figure V-8.b)*, qui à son tour retransmettra un rayonnement au milieu environnant dans un large spectre de longueur d'onde *(Figure V-8.c)*. L'échauffement des particules céramiques oxydes se fera donc par rayonnement et/ou conduction suivant l'interface de contact parfaite ou imparfaite jusqu'à induire la fusion de la céramique *(Figure V-8.d)*. La compréhension de l'interaction laser-matière au moyen d'une sphère intégrante *(Chapitre IV)* a montré que la dissociation de l'absorbant est le premier phénomène opérant.

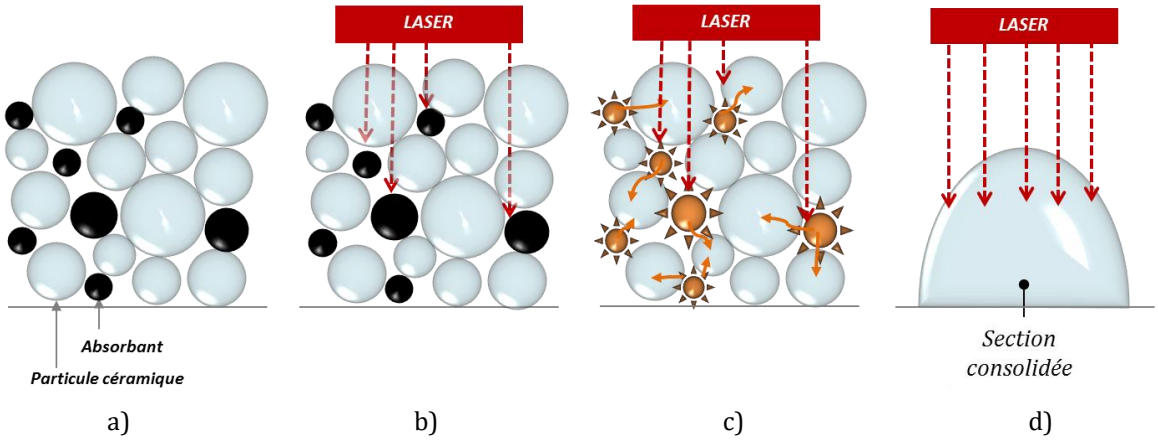


Figure V-8 : Les différentes étapes de l'interaction laser-matière indirecte pour un LDP de particules céramiques dopées extrinsèquement

V.1.3 Morphologie des bains et domaines d'interaction

Expérimentalement, dans des milieux uniques céramiques (compact de poudre[2] ou substrat), les relations logarithmiques ne sont pas vérifiées sur l'ensemble du domaine d'énergie linéique. Un découpage de la cartographie (P,V) suivant la morphologie des bains permet de retrouver les équations du modèle de type SLA.

Il est possible d'identifier trois domaines morphologiques suivant l'énergie linéique *(Figure V-9)* quelle que soit la nature dense, granulaire ou mixte du système :

- **Domaine I elliptique** : pour $H < L$ aux faibles énergies linéiques et pour $E_l > E_{l,f}$. Les vitesses sont fortes et les puissances faibles.
- **Domaine II triangulaire** : pour $H > L$ aux moyennes énergies linéiques et pour $E_l > E_{l,t}$. Les vitesses et puissances sont intermédiaires.
- **Domaine III clou**[3] : pour $H \gg L$ aux fortes énergies linéiques, c'est le domaine keyhole et $E_l > E_{l,k}$. Les vitesses sont faibles et les puissances élevées. Les profondeurs de pénétration sont importantes par effet de la pression de recul associée à une morphologie de type « clou » ou « trou de serrure » ainsi que d'une forte dispersion et faible reproductibilité des valeurs de H et L. L'initiation de ce domaine est repérée par le réseau de pores en profondeur et le gonflement ou boursoufflure des bains en surface. Pour les bains céramiques de l'étude, on estime que $E_{l,k} \geq 1\,J.mm^{-1}$ pour l'ensemble des systèmes.

La limite entre les domaines *Ellipse* et *Triangle* est donnée par le rapport d'élancement $H/L = 1$ correspondant à une énergie linéique $E_{l,t} = 0{,}22\,J.mm^{-1}$. L'identification de cette limite est possible grâce à la corrélation *(Figure V-10)* vérifiée pour l'ensemble des systèmes:

[2] L'étude des milieux uniques de type granulaire s'est portée sur les compacts de poudre car, à l'inverse des LDP il est possible de les manipuler pour mesurer les dimensions de bains de fusion.
[3] Ce domaine « clou ou Keyhole » ne sera pas traité en général par le modèle de type SLA car il ne s'agit pas là d'une morphologie stable pour la construction.

$$\frac{H}{L} = a.E_l^{\alpha}$$

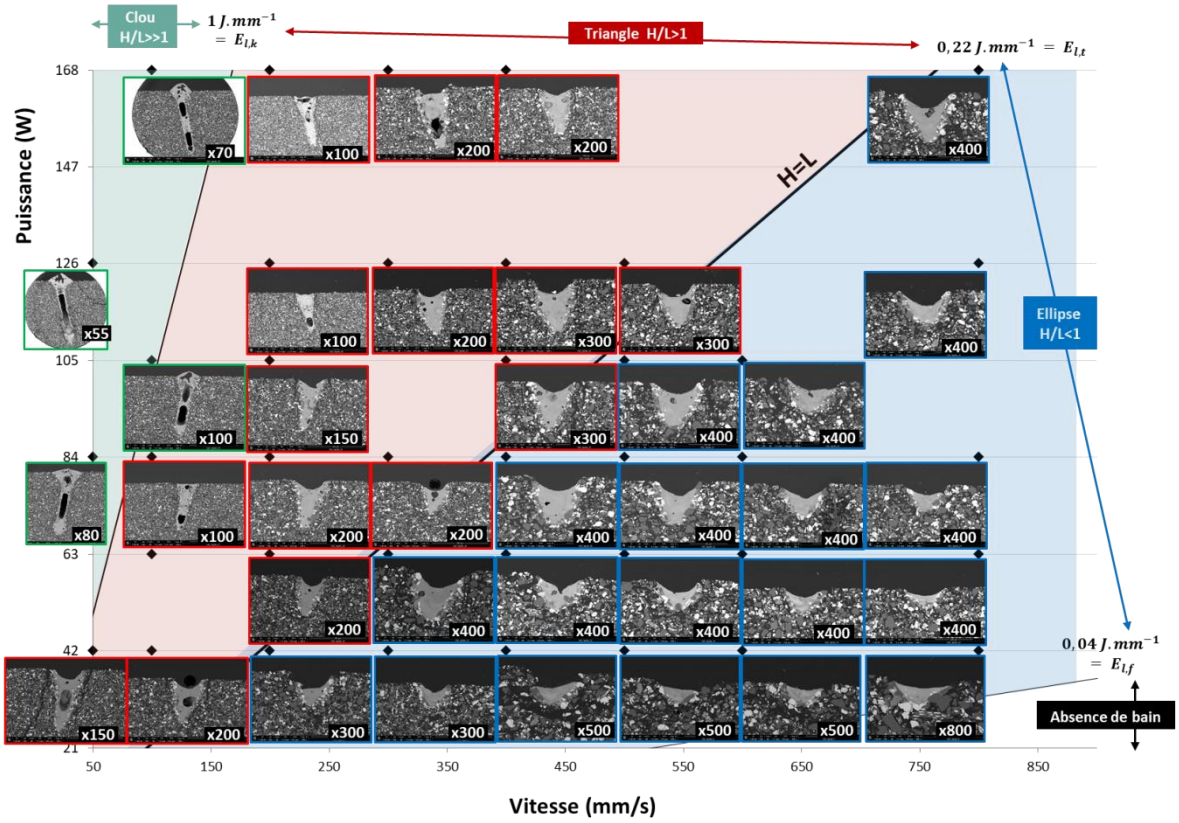


Figure V-9 : Morphologies des bains en fonction de la puissance P, la vitesse V et l'énergie linéique pour le compact de poudre de réception {CAZ}

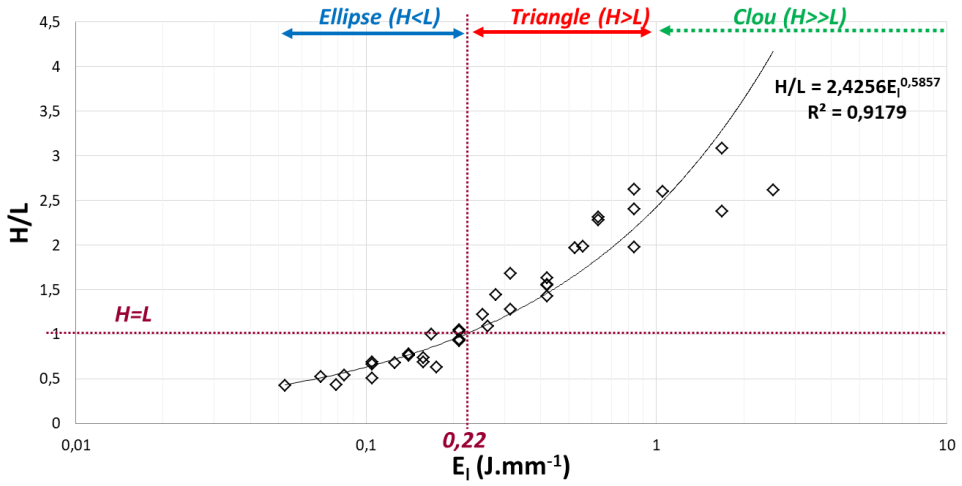


Figure V-10 : Evolution de H/L en fonction de l'énergie linéique et identification des domaines morphologiques pour le compact de poudre de réception {CAZ}

D'après ce qui a été énoncé au *Chapitre IV*, le domaine elliptique correspond à une interaction majoritaire avec le LDP en amont du bain de fusion et le domaine triangulaire majoritairement avec le bain liquide. Pour chaque domaine *(Tableau V-2)*, sont définis les :

- coefficients d'absorption α_{abs}^{I} et α_{abs}^{II}
- énergies linéiques minimales : $(E_{l\ min}^{I}, E_{l\ min}^{I*})$ *et* $(E_{l\ min}^{II}, E_{l\ min}^{II*})$

- diamètres d'interaction ϕ_{int}^{I} et ϕ_{int}^{II}

L'application des *équations (V.1) et (V.5)* aux dimensions expérimentales des bains révèle une bonne concordance (*Figure V-11* par exemple pour le compact d'$Al_2O_3 - ZrO_2$). Le modèle de type SLA permet l'identification de deux domaines I- elliptique et II-triangulaire qui permettent une meilleure description des points expérimentaux que le domaine unique.

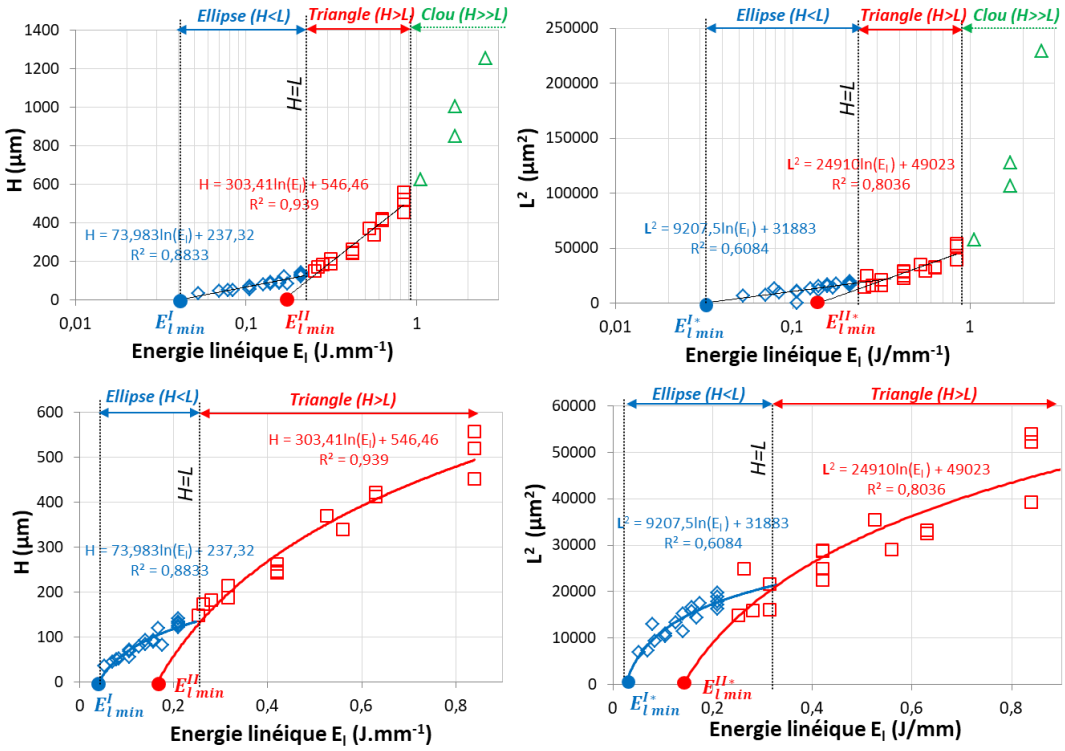


Figure V-11 : Variations des dimensions des bains (profondeur H et carré de la largeur L) en fonction de l'énergie linéique pour le compact de poudre de réception {CAZ} en échelle semi-logarithmique et en échelle linéaire

Tableau V-2 : Paramètres d'interaction laser-matière tirés du modèle SLA appliqué au compact de poudre de réception {CAZ}

	Domaine I	Domaine II
Coefficient d'absorption α_{abs} (mm^{-1})	13,5	3,3
Diamètre d'interaction Φ_{int} (µm)	136	223
Energie linéique minimale en profondeur $E_{l\,min}$ $(J.mm^{-1})$	0,04	0,17
Energie linéique minimale en largeur $E_{l\,min}^{*}$ $(J.mm^{-1})$	0,03	0,14

Dans le cas des matériaux métalliques *(Annexe E)*, on retrouve ces résultats. Néanmoins, les morphologies elliptiques et triangulaires sont remplacées par des formes circulaires (en un seul arc de cercle ou deux arcs de cercle de rayons distincts) à faible énergie linéique ($H < L$) et par des formes elliptiques à plus forte mais moyenne énergie linéique ($H < L$). Le domaine keyhole ($H \gg L$) est amorcé à plus haute énergie linéique que pour les matériaux céramiques (> 2,5 J.mm^{-1} pour les compacts). On note aussi que la profondeur de bains H est nettement inférieure à celle des céramiques.

V.2 Modèle évolutif

Le modèle de type SLA permet une approche simplifiée et rapide donnant accès aux énergies linéiques minimales de fusion en profondeur et en largeur, au coefficient d'absorption et au diamètre d'interaction du laser avec un compact de poudre (milieu diffusant) ou un substrat dense (milieu peu diffusant). Cependant ce modèle reste limité à un milieu unique et oblige à raisonner par morphologie de bain. L'introduction d'un modèle plus réaliste et progressif qui (i) rend compte de l'avancement pas à pas du front de fusion dans un milieu unique et (ii) prend en compte le changement d'état solide-liquide au cours du temps d'interaction, va alors permettre une description plus précise des propriétés d'interaction laser-matière grâce au couplage avec les mesures de réflexion menées au *Chapitre IV*. Ce modèle dit « évolutif » a été introduit par (Defillon et al., 2014) pour un milieu unique (compact de poudre). La base de son développement est similaire au modèle de type SLA car il repose sur l'irradiation d'une surface au moyen d'un laser à distribution gaussienne avec une atténuation progressive de l'intensité transmise dans le volume du matériau suivant une décroissance exponentielle (loi de Beer-Lambert). La différence entre ce modèle évolutif et le modèle de type SLA repose sur l'introduction du paramètre temps t et la distinction entre les coefficients d'absorption du solide α_{abs} (particules de poudre) et du liquide α_f (bain de fusion). Ce modèle initialement appliqué à un milieu unique (compact de poudre d'épaisseur infinie) est ensuite transposé au milieu représentatif de la fabrication additive par LBM {LDP+Substrat}. Signalons que ce modèle évolutif appliqué au LBM considère une interaction laser-matière progressive, ce qui constitue la plus grande limite à ce modèle puisqu'en réalité, l'interaction laser-matière est rapide et se fait de manière globale à travers tous les milieux en même temps. Néanmoins, ce modèle progressif « pas à pas » possède l'avantage d'exprimer sur une grande plage d'énergie linéique et de manière continue les valeurs des dimensions des bains et des sections mises en jeu (S_{app}, S_{ZR} *et* S_0) sous forme analytique. La valeur et la forme de S_0 qui se trouve être la section irradiée et fusionnée du compact de poudre (ou LDP) aura un grand intérêt lorsque l'on voudra connaître parfaitement la zone de consolidation au *Chapitre VI* en l'absence d'échange de matière pour laquelle S_{app} représente précisément la partie dense de S_0.

V.2.1 Cas du milieu unique : approche analytique

De manière similaire au modèle de type SLA, on définit la puissance surfacique $[W.mm^{-2}]$ émise par le laser :

$$D_0(x,y,t) = \frac{2P}{\pi r_0^2}\exp\left(\frac{-2r^2}{r_0^2}\right)$$

Le faisceau laser se déplaçant à la vitesse V, on définit la puissance surfacique reçue à l'instant t par le point (x,y):

$$\boldsymbol{D_0(x,y,t) = \frac{2P}{\pi r_0^2}\exp\left(-2\,\frac{(x-V.t)^2+y^2}{r_0^2}\right)}$$

V.2.1.1 Absorption avant formation du bain de fusion

En l'absence de fusion, le milieu unique irradié (LDP par exemple) est considéré comme un milieu homogène dans lequel la loi de Beer-Lambert s'applique avec un coefficient d'absorption α_{abs}. Le développent est le même que pour le modèle de type SLA avec l'introduction des coordonnées (x,y) et de la variable temps t *(Figure V-12)*. La puissance surfacique transmise en surface vaut :

$$\boldsymbol{D_{t,z=0}(x,y,z,t) = (1-R_{nf}).D_0(x,y,t)}$$

avec R_{nf} la réflexion en surface non fondue du milieu unique issue des mesures radiatives *(Chapitre IV)*. Le *Tableau V-3* présente les valeurs de réflectance du LDP solide comme du liquide pour les différents milieux étudiés.
La puissance surfacique transmise à la profondeur z de la surface dans le milieu solide s'exprime comme suit et dépend du coefficient d'absorption α_{abs} du milieu considéré :

$$\boldsymbol{D_t(x,y,z,t) = D_{t,z=0}(x,y,z,t).\, e^{-\alpha_{abs}\cdot z} = (1-R_{nf}).\, D_0(x,y,t).\, e^{-\alpha_{abs}\cdot z}}$$

Tableau V-3 : Valeurs des coefficients de réflexion pour différents états de la matière (non fondue et fondue) et les différents systèmes étudiés (compact et substrat dense)

	R_{nf} (%)	R_f
CA ($fv_p = 64\%$)	77,2	$0{,}119.\, E_l^{-0{,}419}$
CAZ ($fv_p = 64\%$)[4]	34,9	$0{,}046.E_l^{-0{,}356}$
SA	46,1	$0{,}116.\, E_l^{-0{,}406}$
SAZ[5]	61,6	$0{,}041.\, E_l^{-0{,}639}$

Enfin, on en déduit la puissance volumique absorbée dans le volume du lit de poudre à une profondeur z de la surface :

$$\boldsymbol{D_{a,v}\,(x,y,z,t) = -\frac{\partial D_t}{\partial z}(x,y,z,t) = \alpha_{abs}\,.\,D_t(x,y,z,t) = \alpha_{abs}\,.\,(1-R_{nf}).\,D_0(x,y,t).\,e^{-\alpha_{abs}\cdot z}} \qquad \text{V.7}$$

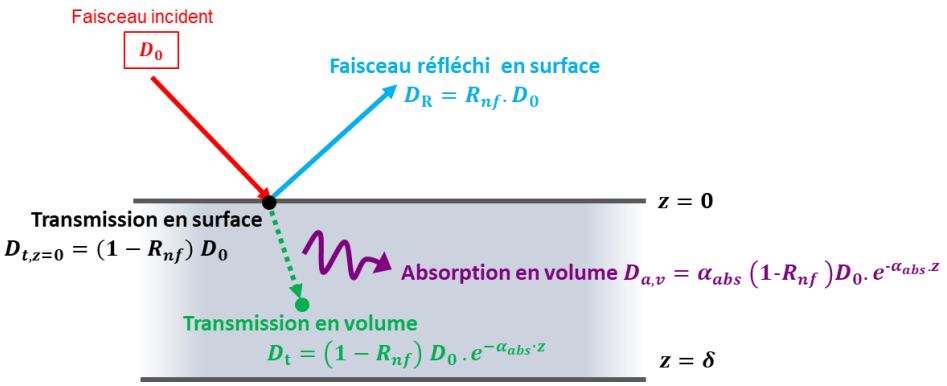


Figure V-12 : Interaction laser-matière en surface et en volume suivant le modèle évolutif avant fusion ($t < t_f$)

On note que ce modèle peut s'appliquer aussi bien aux substrats denses ($R_{nf} = R_s$) qu'aux milieux granulaires ($R_{nf} = R_p$).

V.2.1.2 Absorption après formation du bain de fusion

Dès lors que la fusion opère à $t = t_f\ (x,y)$, la profondeur de la zone fondue notée $\boldsymbol{z_f(x,y,t)}$ varie au cours du temps *(Figure V-13)*. Le coefficient d'absorption vaut alors :

$$\alpha = \begin{cases} 0 \ si\ z < z_{app} \\ \alpha_f \quad \text{si } z < z_f(x,y,t) \\ \alpha_{abs} \quad \text{si } z > z_f(x,y,t) \end{cases}$$

[4] Rappelons que le lot de poudre correspondant au {CAZ} n'est pas pur et contient en masse 0,11% de carbone et 0,46% de Fe.
[5] De même, le lot de poudre associé au {SAZ} n'est pas pur et contient en masse 1,60% de carbone et 0,48% de Fe.

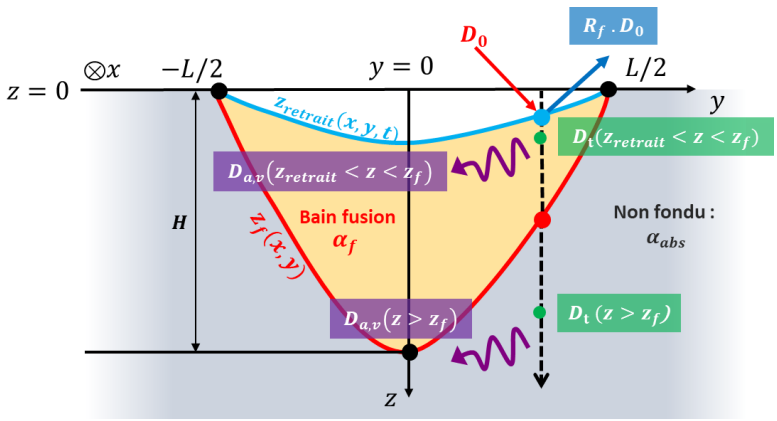


Figure V-13 : Interaction laser-matière en surface et en volume suivant le modèle évolutif après fusion ($t > t_f$)

La conservation de la matière sans échange d'une zone à l'autre étant supposée respectée *(Chapitre VI)*, la consolidation du lit de poudre permet de définir : $\boldsymbol{z_{retrait}(x, y, t) = Pt.\, z_f(x, y, t)}$.

- Pour $\boldsymbol{z < z_{retrait}}$ **et** $\boldsymbol{\alpha = 0}$, l'interaction est nulle.

- Lorsque $\boldsymbol{z_{retrait} \leq z < z_f}$, la puissance surfacique transmise au point $(x, y, z_{retrait})$ à la profondeur z du bain de fusion s'exprime :

$$D_t(x, y, z_{retrait} \leq z < z_f, t) = (1 - R_f).\, D_0(x, y, t).\, e^{-\alpha_f .(z - z_{retrait})}$$
$$\boldsymbol{D_t(x, y, z_{retrait} \leq z < z_f, t) = (1 - R_f).\, D_0(x, y, t).\, e^{-\alpha_f .(z - z_f .Pt)}}$$

Quant à la puissance volumique absorbée à la profondeur $z_{retrait} \leq z < z_f$, elle s'écrit comme suit :

$$\boldsymbol{D_{a,v}(x, y, z_{retrait} \leq z < z_f, t) = \alpha_f .\, (1 - R_f).\, D_0\ (x, y, t).\, e^{-\alpha_f .(z - z_f .Pt)}}$$

avec R_f la réflexion de la surface fondue, mesurée au *Chapitre IV* et dépendante de l'énergie linéique *(Tableau V-3)*. Notons qu'on utilise les valeurs globales mesurées de réflexion R_f et le coefficient d'absorption α_f qui englobent la partie fondue et non fondue en profondeur. Il aurait été plus judicieux d'introduire R_l et α_l pour la partie liquide et R_{nf} à l'interface sous le bain de fusion. Cependant, R_l et α_l n'étant pas mesurable dans notre cas, nous simplifions par R_f et α_f.

- Pour $\boldsymbol{z = z_{retrait}}$:

$$\boldsymbol{D_t(x, y, z = z_{retrait}, t) = (1 - R_f).\, D_0(x, y, t)}$$
$$\boldsymbol{D_{a,v}(x, y, z = z_{retrait}, t) = \alpha_f .\, (1 - R_f).\, D_0\ (x, y, t)}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z \geq z_f}$, *i.e.* sous le bain de fusion, la puissance surfacique transmise à la profondeur z après la formation du bain de fusion s'exprime de la façon suivante :

$$D_t(x, y, z \geq z_f, t) = D_t(x, y, z_f(x, y, t), t).\, e^{-\alpha_{abs}(z - z_f)}$$
$$D_t(x, y, z \geq z_f, t) = (1 - R_f).\, D_0\ (x, y, t).\, e^{-\alpha_f .\,(z_f - z_f .Pt)}.\, e^{-\alpha_{abs}(z - z_f)}$$
$$\boldsymbol{D_t(x, y, z \geq z_f(x, y, t), t) = (1 - R_f).\, D_0\ (x, y, t).\, e^{z_f(\alpha_{abs} - \alpha_f(1 - Pt))}.\, e^{-\alpha_{abs} z}}$$

Aussi, la puissance volumique absorbée à la profondeur $z \geq z_f$ s'écrit alors comme suit :

$$D_{a,v}(x, y, z, t) = \alpha_{abs}.\, D_t(x, y, z > z_f(x, y, t), t)$$

$$\boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z \geq z_f(x,y,t),t) = \alpha_{abs}(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\,z_f(\alpha_{abs}-\alpha_f(1-Pt))}.e^{-\alpha_{abs}z}} \qquad \text{V.8}$$

- Pour $\boldsymbol{z = z_f}$:

$$\boldsymbol{D_t(x,y,z=z_f,t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\,-\alpha_f.z_f(1-Pt)}}$$
$$\boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z=z_f,t) = \alpha_{abs}(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\,-\alpha_f.z_f(1-Pt)}}$$

a) Fusion en surface : expression de L, α_{abs}, Φ_{int} et $E_{l\,min}$*

L'enthalpie volumique $\Delta h_{f,v}$ nécessaire à la fusion du matériau est la somme de celle demandée pour atteindre la température de fusion T_f à partir de la température initiale T_0 et est fonction de la capacité calorifique du matériau solide C_{p_s} et de sa masse volumique ρ_s ; ainsi que de la chaleur latente volumique de fusion $L_{f,v}$ (Gusarov and Smurov, 2010) :

$$\Delta h_{f,v} = \rho_s \,.\, c_{p_s} \,.\, (T_f - T_o) + L_{f,v}$$

On considère que hors du bain de fusion, la seule source d'enthalpie volumique est l'absorption en volume par le matériau de l'énergie fournie par le laser. La fusion est donc atteinte en surface lorsque l'énergie apportée par le laser est suffisante pour échauffer le matériau jusqu'à T_f et le fondre, soit :

$$\Delta h_v\left(x,y,0,t_f(x,y)\right) = \Delta h_{f,v}$$

Dans le cas d'un régime permanent, *i.e.* après que le laser ait été allumé suffisamment longtemps, la quantité d'enthalpie volumique accumulée hors du bain de fusion vaut :

$$\Delta h_v(x,y,z,t) = \int_{-\infty}^{t} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt' \qquad \text{V.9}$$

Or d'après l'*équation (V.7)* en surface $(z=0)$ et $t < t_f\,(x,y)$:

$$\Delta h_v(x,y,0,t) = \int_{-\infty}^{t} D_{a,v}(x,y,0,t')\,dt' = \alpha_{abs}(1-R_{nf})\int_{-\infty}^{t} D_0(x,y,t')\,dt'$$

Or d'après (Defillon et al., 2014) – *Annexe E* :

$$\int_{t_1}^{t_2} D_0(x,y,t')\,dt' = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{Vt_2-x}{r_0}\right) - \mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_1-x}{r_0}\right)\right] \qquad \text{V.10}$$

Donc :

$$\Delta h_v(x,y,0,t) = \alpha_{abs}(1-R_{nf})\frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t-x}{r_0}\right)+1\right]$$

Ainsi, la condition de fusion en un point $(x,y,z=0)$ prend la forme suivante :

$$\Delta h_{f,v} \leq \Delta h_v(x,y,0,t\to+\infty)$$
$$\Delta h_{f,v} \leq \alpha_{abs}(1-R_{nf})\frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\times 2$$
$$\Delta h_{f,v} \leq \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_{abs}(1-R_{nf})\mathrm{E_l}}{r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)$$

Pour $y = \frac{L}{2}$, la moitié de la largeur du bain, correspondant à la frontière de la zone fondue et donc à l'égalité de l'enthalpie volumique de fusion, l'équation précédente équivaut à :

$$\boldsymbol{L^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_{abs}(1-R_{nf})E_l}{r_0\,\Delta h_{f,v}}\right)} \qquad \text{V.11}$$

$$L^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}{r_0\,\Delta h_{f,v}}\right) + 2r_0^2.\ln(E_l) \qquad \text{V.12}$$

On retrouve alors le modèle de type SLA et en identifiant terme à terme la *relation (V.3)* avec l'*équation (V.11)*, on en déduit l'expression de $\boldsymbol{E^*_{l\,min}}$:

$$\boldsymbol{E^*_{l\,min} = \sqrt{\frac{\pi}{2}}\frac{r_0.\,\Delta h_{f,v}}{\alpha_{abs}.(1-R_{nf})}} \qquad \text{V.13}$$

Toutefois, nous avons vu qu'afin de décrire au mieux les points expérimentaux, il convient d'introduire un diamètre d'interaction Φ_{int} dans le modèle de type SLA. L'*équation (V.11)* ne peut alors représenter les points expérimentaux. Dans le cas du modèle évolutif, plutôt qu'un remplacement de Φ_L par Φ_{int} comme dans l'*équation (V.5),* on choisit de calculer l'inconnue restante, α_{abs}. On suppose alors que α_{abs} est une fonction de l'énergie linéique. Il est possible à partir de l'*équation (V.11)* de construire une courbe α_{abs} fonction de l'énergie linéique en prenant en compte que la largeur L de la zone fondue est également dépendante de E_l *(Figure V-14)* :

$$\boldsymbol{\alpha_{abs}(E_l) = \sqrt{\frac{\pi}{2}}\frac{r_0\Delta h_{f,v}}{(1-R_{nf})E_l}\exp\left(\frac{L^2}{2r_0^2}\right)} \qquad \text{V.14}$$

Les résultats montrent que le coefficient d'absorption α_{abs} croît avec l'énergie linéique, probablement en lien avec l'augmentation de la température du milieu et un possible frittage des particules de poudre. Toutefois, on note que α_{abs} est supérieur pour le système Al_2O_3-ZrO_2 par rapport au système Al_2O_3 moins absorbant, ce qui équivaut pour ce dernier système à une plus faible valeur de α_{abs} et donc à une plus grande profondeur d'absorption, δ_{abs}. On note de plus que les valeurs très élevées de α_{abs} peuvent être dues au fait qu'on traite le milieu comme homogène alors qu'en réalité le milieu est hétérogène et diffusant d'un point de vue optique. Les valeurs des coefficients obtenus avec les modèles hétérogènes sont nettement plus faibles *(Chapitre IV)*.

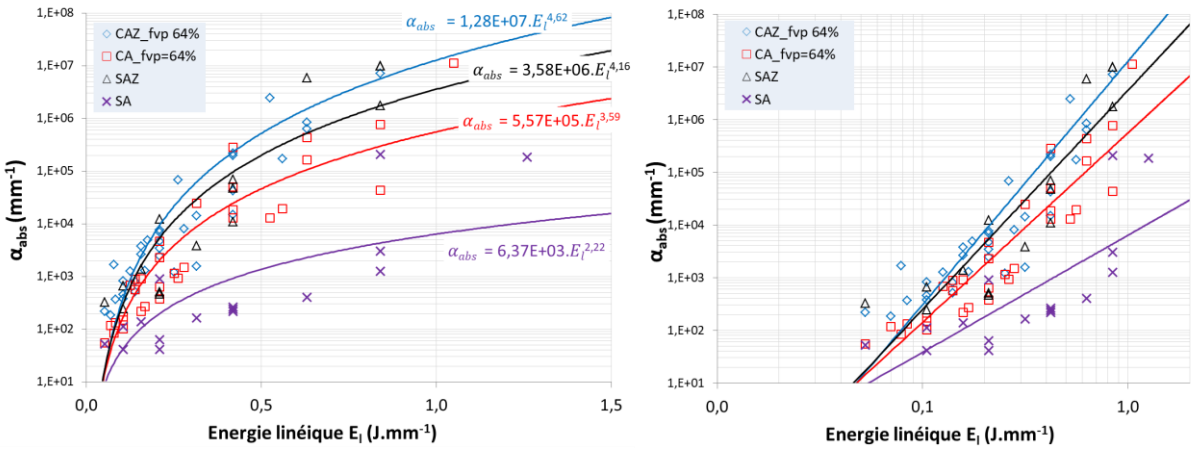


Figure V-14 : Evolution de α_{abs} en fonction de l'énergie linéique pour les différents systèmes étudiés (compact et substrat) à partir des céramiques à l'état de réception

Le coefficient α_{abs} augmente avec l'énergie linéique *(Figure V-14)* tel que :

$$\boldsymbol{\alpha_{abs} = \beta . E_l^{\gamma}} \qquad \text{V.15}$$

avec (β, γ) un couple distinct de paramètres pour chaque système : SA, SAZ, CA et CAZ.

En substituant l'*équation (V.15)* dans l'*équation (V.12)*, on peut alors écrire que :

$$L^2 = 2r_0^2 . \ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\beta(1 - R_{nf})}{r_0 \, \Delta h_{f,v}}\right) + 2r_0^2 . \ln\left(E_l^{1+\gamma}\right) \qquad \text{V.16}$$

La largeur du bain de fusion est donc une fonction logarithmique de l'énergie linéique de type $\boldsymbol{L^2 = a . ln(E_l^{1+\gamma}) + c}$. L'application de cette équation aux points expérimentaux quel que soit le système permet de retrouver $\boldsymbol{a = 2r_0^2 \approx 0,0024\ mm^2}$ **soit** $\boldsymbol{r_0 = 35\ \mu m}$, ce qui correspond au rayon nominal du faisceau laser, *(Figure V-15)*. Contrairement au modèle SLA, les points expérimentaux s'alignent sur une même droite lors d'une représentation en échelle semi-logarithmique de L^2 fonction de $E_l^{1+\gamma}$ comme de E_l et ce jusqu'à une valeur de $1\ J.mm^{-1}$.

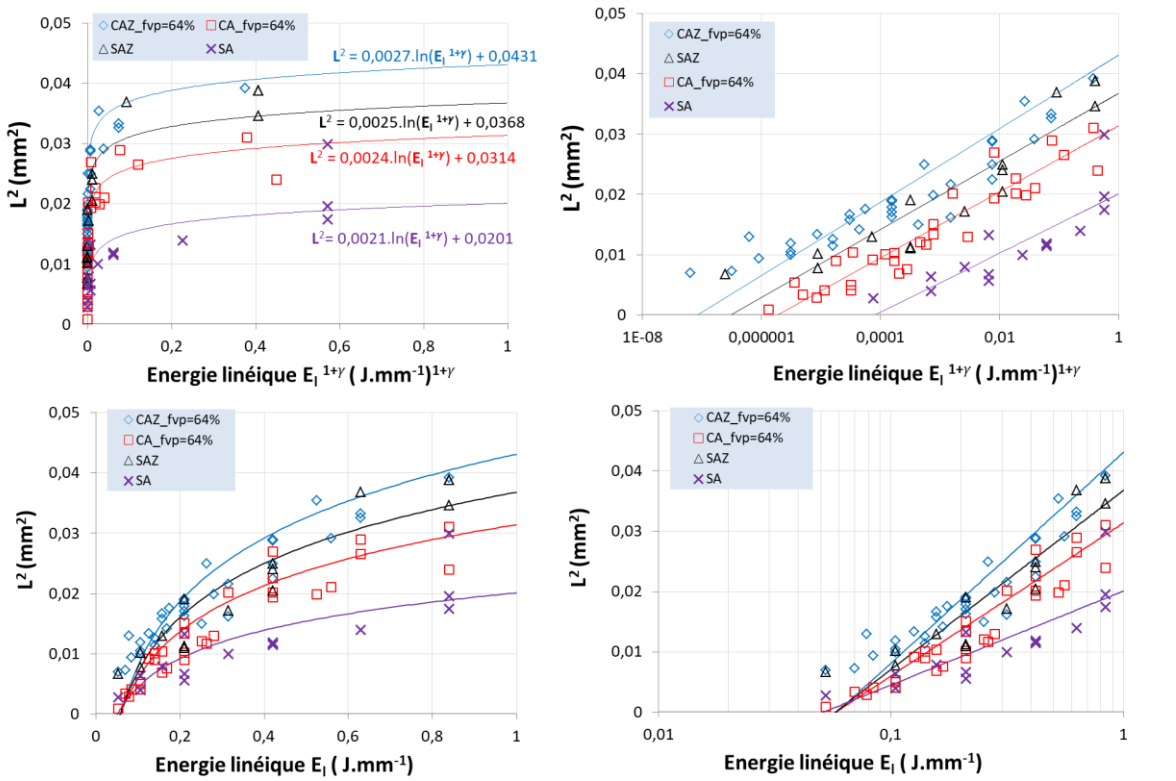


Figure V-15 : Evolution de L^2 en fonction de l'énergie linéique pour les différents systèmes étudiés (compact, substrat) à partir des céramiques à l'état de réception

En réarrangeant *l'équation V.16,* on aboutit à:

$$L^2 = \frac{\emptyset_L^2}{2} . \frac{(1+\gamma)}{(1+\gamma)} . \ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\beta(1 - R_{nf})}{r_0 \, \Delta h_{f,v}}\right) + \frac{\emptyset_L^2}{2} . (1+\gamma) . \ln(E_l) \qquad \text{V.17}$$

Une comparaison terme à terme entre cette *équation (V.17)* et l'*équation (V.5)* du modèle de type SLA permet d'identifier les égalités suivantes :

$$\begin{cases} \Phi_{int} = \Phi_L . \sqrt{(1+\gamma)} & \text{V.18} \\ E_{l\,min}^{*} = \left(\sqrt{\frac{\pi}{2}} . \frac{r_0 . \Delta h_{f,v}}{\beta . (1 - R_{nf})}\right)^{1/(1+\gamma)} & \text{V.19} \end{cases}$$

Les grandeurs Φ_{int} et $E_{l\,min}^{*}$ dépendent respectivement de γ et de (β, γ) et sont indépendantes de l'énergie linéique E_l mais différentes d'un système à l'autre. On constate que le diamètre d'interaction est

proportionnel au diamètre nominal du faisceau laser. Connaissant les coefficients β *et* γ pour chacun des systèmes étudiés, il est donc possible de calculer Φ_{int} et $E^*_{l\,min}$ en prenant $r_0 = 35\ \mu m$. Nous verrons plus loin *(Tableau V-4)* que Φ_{int} est plus petit pour les substrats quasiment denses comparés aux compacts qui diffusent le rayonnement incident et élargissent le diamètre d'interaction. Concernant $E^*_{l\,min}$, elle est plus élevée pour le matériau moins absorbant (alumines SA et CA) que pour l'Al_2O_3-ZrO_2 (CAZ comme SAZ) qui contient des impuretés absorbantes dont du carbone et qui est le matériau le moins réfractaire des deux.

Le modèle de type SLA introduisait un diamètre d'interaction Φ_{int} et prévoyait un découpage selon les morphologies types des bains avec des énergies linéiques minimales et des coefficients d'absorption constants (indépendants de E_l) et propres à chaque morphologie (elliptique et triangulaire) dans un domaine spécifique d'énergie linéique. Ici, le modèle évolutif prend en compte la variation de α_{abs} avec l'énergie linéique qui s'avère être une fonction en loi puissance, permettant de retrouver l'*équation (V.5)* et ainsi de décrire parfaitement les points expérimentaux tout en conservant le diamètre nominal du faisceau laser Φ_{L} qui est lié au diamètre d'interaction Φ_{int}. De plus, on retrouve que l'énergie linéique minimale $E^*_{l\,min}$ est une constante vis-à-vis de l'énergie linéique.

A $\boldsymbol{t = t_f(x,y)}$, $\Delta h_v\left(x,y,0,t_f(x,y)\right) = \Delta h_{f,v}$ et :

$$\Delta h_{f,v} = \alpha_{abs}(1-R_{nf})\frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)+1\right]$$

$$\boldsymbol{\frac{1}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})} = \frac{\mathrm{E_l}.\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)}{\sqrt{2\pi}r_0.\Delta h_{f,v}}\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)+1\right]} \qquad \text{V.20}$$

b) Pénétration du bain de fusion : expression de la profondeur fondue $z_p(y)$, H et α_f

A la verticale du point (x,y) après que la surface du lit de poudre soit entrée en fusion ($t > t_f(x,y)$), la profondeur de fusion $z_f(x,y,t)$ progresse par l'accumulation de suffisamment d'énergie pour former le bain de fusion :

$$\Delta h_v\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right) = \Delta h_{f,v} \qquad \text{V.21}$$

La dérivation des termes de cette équation en fonction du temps aboutit à :

$$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial z}\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right).\frac{\partial z_f}{\partial t}(x,y,t) + \frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right) = 0$$

Lorsque $\boldsymbol{t > t_f(x,y)}$, sous le bain de fusion ($\boldsymbol{z > z_f}$), le milieu est encore solide et d'après l'*équation (V.9)*:

$$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}(x,y,z,t) = D_{a,v}(x,y,z,t)$$

Et d'après l'*équation (V.8) :*

$$\boldsymbol{\frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}(x,y,z,t) = \alpha_{abs}.(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{z_f(\alpha_{abs}-\alpha_f(1-Pt))}.e^{-\alpha_{abs}z}} \qquad \text{V.22}$$

Avant la fusion, pour $\boldsymbol{t < t_f(x,y)}$, d'après les *équations (V.9) et (V.7)*:

$$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}(x,y,z,t) = D_{a,v}(x,y,z,t) = \alpha_{abs}\,.\left(1-R_{nf}\right).D_0(x,y,t).\,e^{-\alpha_{abs}\,.\,z} \qquad \text{V.23}$$

La variation totale d'enthalpie volumique s'écrit comme la somme de deux composantes correspondant à l'accumulation d'énergie avant et après fusion du bain à $\boldsymbol{t} > \boldsymbol{t_f}$:

$$\Delta h_v(x,y,z,t) = \int_{-\infty}^{t_f} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt' + \int_{t_f}^{t} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt'$$

$$\Delta h_v(x,y,z,t) = \int_{-\infty}^{t_f} \alpha_{abs}\,.\left(1-R_{nf}\right).D_0(x,y,t).\,e^{-\alpha_{abs}\,.\,z}\,dt' + \int_{t_f}^{t} \alpha_{abs}.\left(1-R_f\right).D_0\,(x,y,t).\,e^{\,z_f(\alpha_{abs}-\alpha_f(1-Pt))}\,.\,e^{-\alpha_{abs}z}$$

$$\Delta h_v\,(x,y,z,t) = f(x,y,t)e^{-\alpha_{abs}.z}$$

avec $f(x,y,t)$ une fonction indépendante de z. Donc :

$$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial z}(x,y,z,t) = -\alpha_{abs}.\Delta h_v(x,y,z,t)$$

Et d'après l'*équation (V.21)* :

$$\boldsymbol{\frac{\partial \Delta h_v}{\partial z}\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right) = -\alpha_{abs}.\Delta h_v\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right) = -\alpha_{abs}.\Delta h_{f,v}} \qquad \text{V.24}$$

La vitesse de propagation du bain de fusion s'exprime alors comme suit :

$$\frac{\partial z_f}{\partial t}\,(x,y,t) = -\frac{\frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right)}{\frac{\partial \Delta h_v}{\partial z}\left(x,y,z_f(x,y,t),t\right)}$$

En substituant les *équations (V.22) et (V.24)* dans l'équation précédente avec $z = z_f(x,y,t)$:

$$\boldsymbol{\frac{\partial z_f}{\partial t}\,(x,y,t) = \frac{\left(1-R_f\right)}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t).\,e^{-\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)}} \qquad \text{V.25}$$

De plus, on peut écrire mathématiquement que :

$$\frac{\partial z_f}{\partial t}.\,e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)} = \frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)}}{\alpha_f\,.\,(1-Pt)}\right)$$

Et d'après l'*équation (V.25)* :

$$\boldsymbol{\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)}}{\alpha_f\,.\,(1-Pt)}\right) = \frac{\left(1-R_f\right)}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t)}$$

En intégrant entre l'instant de début de fusion $t = t_f(x,y)$ et l'infini, il est possible de déterminer la profondeur maximale z_p de la zone fondue :

$$\frac{e^{\alpha_f\,(1-Pt).\,z_f(x,y,t\to+\infty)}}{\alpha_f\,.\,(1-Pt)} - \frac{e^0}{\alpha_f\,.\,(1-Pt)} = \int_{t_f(x,y)}^{+\infty} \frac{\left(1-R_f\right)}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t')\,dt'$$

On note que $z_f(x,y,t\to+\infty) = z_p$ puis $z_f\left(x,y,t=t_f\right) = 0$ et en se rapportant à l'*équation (V.10)*, la relation précédente devient :

$$\frac{e^{z_p.\alpha_f(1-Pt)} - 1}{\alpha_f.\left(1-R_f\right).(1-Pt)} = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[1-\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)\right]$$

En additionnant les termes de cette dernière égalité avec l'*équation (V.20)*, on a :

$$\frac{e^{z_p.\alpha_f(1-Pt)}-1}{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}+\frac{1}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)$$

On en déduit alors l'expression de la limite en profondeur de la zone fondue z_p qui ne dépend que de y et pas de x :

$$\boldsymbol{z_p(y)=\frac{1}{(1-Pt)\alpha_f}ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}+1\right]}\qquad \text{V.26}$$

Lorsque $y=0$, $z_p(0)=H$, la profondeur du bain de fusion vaut :

$$\boldsymbol{H=\frac{1}{(1-Pt)\alpha_f}ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\,\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}-\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}+1\right]}\qquad \text{V.27}$$

Il est alors possible de calculer $\boldsymbol{\alpha_f}$ par la méthode numérique des moindres carrés. Ce coefficient d'absorption du liquide varie de manière décroissante avec l'énergie linéique selon l'équation $\boldsymbol{\alpha_f=\varepsilon.E_l^{-\delta}}$ **avec $\boldsymbol{\delta\approx1}$** *(Figure V-16)*. De plus, il semble que $\boldsymbol{\alpha_f}$ soit quasi identique pour les systèmes denses et le facteur (1-Pt) différencie les compacts de poudre des milieux denses. Une fois la porosité comblée, les absorbants consommés et l'état liquide atteint, le coefficient $\boldsymbol{\alpha_f}$ est simplement fonction de la température et est d'autant plus faible que l'énergie linéique est importante (suggérant que l'ensemble du liquide et du matériau solide sous-jacent est moins absorbant). Cette dépendance étonnante avec E_l est sans doute liée à l'utilisation des propriétés de l'ensemble fondu R_f *et* α_f (liquide sur milieu sous-jacent solide) plutôt que de R_l et α_l (propriétés du liquide seul) qui est difficilement mesurable dans notre étude.

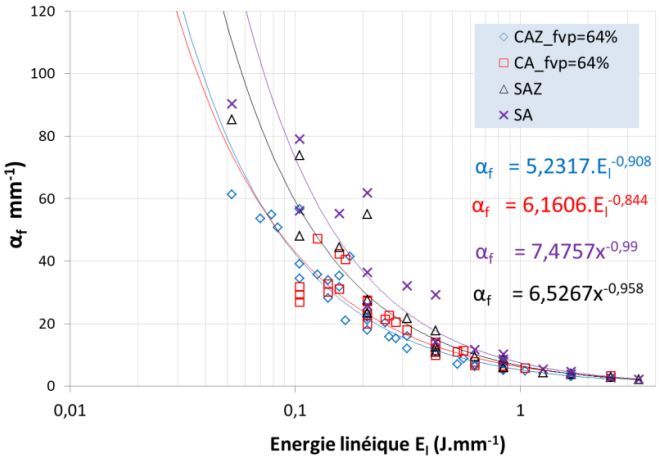


Figure V-16 : Evolution de α_f en fonction de l'énergie linéique pour les différents systèmes étudiés (compact, substrat) à partir des céramiques à l'état de réception

On note que la résolution de l'équation $z_p(y)=0$ conduit à $y=\frac{L}{2}$ *où L est* la largeur du bain de fusion en surface. En effet, on retrouve l'équation *(V.11)*.

Le *Tableau V-4* résume les résultats issus du modèle évolutif pour les échantillons de réception, denses et poreux.

Tableau V-4 : Grandeurs calculées par le modèle évolutif pour les différents échantillons de réception

	Φ_{int} (µm)	α_{abs} (mm^{-1})	α_f (mm^{-1})	$E^*_{l\,min}$ ($J.mm^{-1}$)
SA	58	$6{,}37.10^3 . E_l^{2,22}$	$8{,}5. E_l^{-0,86}$	0,062
SAZ	80	$3{,}58.10^6 . E_l^{4,16}$	$6{,}6. E_l^{-0,94}$	0,054
CA ($fv_p = 64\%$)	74	$5{,}57.10^5 . E_l^{3,59}$	$5{,}9. E_l^{-0,88}$	0,065
CAZ ($fv_p = 64\%$)	87	$1{,}28.10^7 . E_l^{4,62}$	$5{,}2. E_l^{-0,90}$	0,050

c) Approximation de la profondeur H

Au sein de l'*équation (V.27)*, on note que le second terme $\left(\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}\right)$ est négligeable devant le premier terme $\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)\,(1-Pt)E_l}{r_0\Delta h_{f,v}}\right)$ - *(Figure V-17.a)*. Dans ce cas, la profondeur H du bain de fusion peut alors être approximée par :

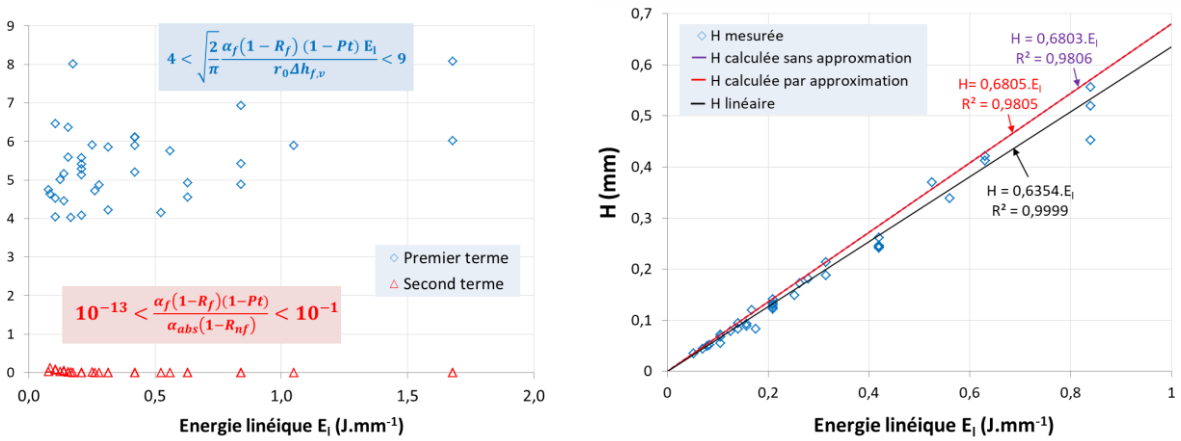
$$H = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\,E_l}{r_0\Delta h_{f,v}} + 1\right] \qquad \text{V.28}$$

Cette expression simplifiée décrit bien les points expérimentaux malgré une légère déviation avec l'augmentation de l'énergie linéique *(Figure V-17.b)*. L'écart est minime entre les valeurs expérimentales, celles déduites sans approximation par l'*équation (V.27)* et celles approximées par l'*équation (V.28)*.

Aussi, puisque $\alpha_f \approx \varepsilon . E_l^{-1}$, la profondeur H s'approxime également à partir de la relation précédente :

$$H = \frac{E_l}{\varepsilon(1-Pt)} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{(1-Pt)(1-R_f).\varepsilon}{r_0\Delta h_{f,v}} + 1\right] \qquad \text{V.29}$$

La profondeur H est alors une fonction linéaire de l'énergie linéique d'équation $H = E_l . a . ln\, b$ qui possède comme ordonnée à l'origine $H = 0$. On remarque que cette formule décrit mieux les points expérimentaux que les formules calculées avec et sans approximation *(V.27 et V.28)* et elle s'applique sur tout le domaine d'énergie linéique explorée *(Figure V-17.b et Figure V-18)*.



a) b)

Figure V-17 : Pour le compact {CAZ} avec fv_p=64%, soit Pt=36%
a) Variation des différents termes de l'expression logarithmique de H en fonction de l'énergie linéique et
b) Evolution de H en fonction de l'énergie linéique : valeurs mesurées et calculées avec et sans approximation

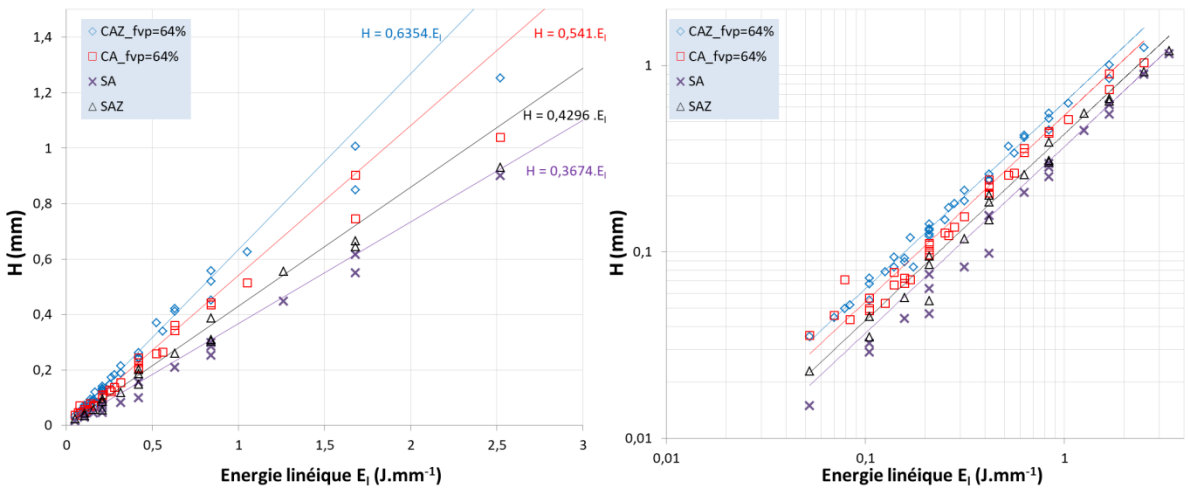


Figure V-18 : Evolution de H en fonction de l'énergie linéique pour les différents systèmes étudiés (compact, substrat) à partir des céramiques à l'état de réception

V.2.1.3 Cas limite $\alpha_{abs} \approx \alpha_f$ (1-Pt) : expression de la forme de la zone fondue et de $E_{l,\,min}$

Si $\alpha_{abs} \approx \alpha_f(1-Pt)$ et $R_f \approx R_{nf}$, il s'agit de la condition de fusion à la frontière de la zone fondue. Ce cas est atteint lorsque localement l'énergie E_l atteint la valeur minimale $E_{l,x}$ ne permettant plus l'avancée du front de fusion. A partir de l'*équation (V.26)* et en introduisant l'*équation (V.14),* on exprime :

$$z_p(y) = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f} ln\left[\exp\left(\frac{L^2}{2r_0^2}\right)\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\right]$$

$$z_p(y) = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f}\left(\frac{L^2}{2r_0^2} - 2\frac{y^2}{r_0^2}\right) = -\frac{2}{r_0^2(1-Pt)\alpha_f}y^2 + \frac{L^2}{2r_0^2(1-Pt)\alpha_f} \qquad \text{V.30}$$

Pour $z_p(0) = H$:

$$H = \frac{L^2}{2r_0^2\alpha_f(1-Pt)}$$

On exprime alors le rapport des dimensions du bain suivant :

$$\frac{H}{L^2} = \frac{1}{2r_0^2\alpha_f(1-Pt)} \qquad \text{V.31}$$

La zone fondue $z_p(y)$ s'exprime donc sous la forme d'une parabole d'équation $z_p(y) = ay^2 + b$ avec :

$$\begin{cases} a = -\dfrac{2}{r_0^2(1-Pt)\alpha_f} = -\dfrac{2}{r_0^2(1-Pt)\varepsilon}E_{l,x}^{\delta} \\ b = \dfrac{L^2}{2r_0^2(1-Pt)\alpha_f} = H \end{cases}$$

Or d'après le rapport des dimensions du bain (équation V.31) :

$$-\frac{2}{r_0^2(1-Pt)\alpha_f} = -H.\frac{4}{L^2} = a$$

On a donc la parabole d'équation :

$$z_p(y) = ay^2 + b = -H.\frac{4}{L^2}y^2 + H \qquad \text{V.32}$$

avec comme apex le point $(y = 0, z = H)$ et qui passe par $(L/2\,,0)$ et $(-L/2,0)$. Effectivement, par comparaison avec les résultats expérimentaux, l'expression sous forme de parabole permet une description précise des bains fondus *(Figure V-19)* pour les différents systèmes. Rappelons que l'équation parabolique était également retrouvée par le modèle de type SLA *(équation V.6)*.

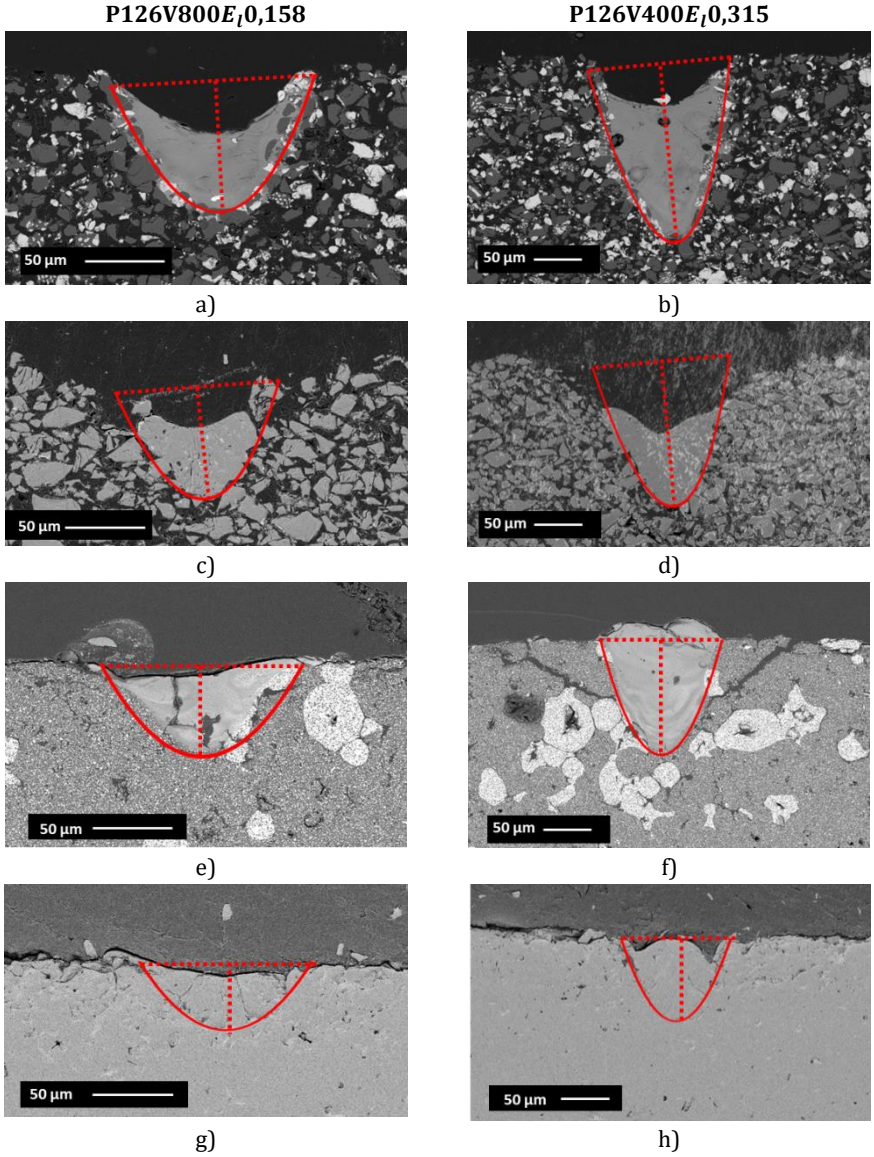


Figure V-19 : Comparaison de la forme des bains expérimentaux et celle des sections paraboliques calculées pour CAZ_fvp=64% (a et b), CA_fvp=64% (c et d), SAZ (e et f) et SA (g et h)

Pour cette configuration ($\alpha_{abs} \approx (1 - \mathrm{Pt}).\alpha_f$ et $R_f \approx R_{nf}$,), on exprime alors la profondeur H à partir de l'*équation (V.27)* pour $\mathrm{E_l} = \mathrm{E_{l,x}}$ qui est de l'ordre des valeurs de $E_{l\,min}$ *et* $E^*_{l\,min}$:

$$\boldsymbol{H = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\,\mathrm{E_{l,x}}}{r_0 \Delta h_{f,v}}\right]}$$

Le modèle de type SLA peut être retrouvé en comparant cette dernière équation avec l'*expression (V.1)*:

$$\frac{1}{\alpha_f(1-Pt)} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\,\mathrm{E_{l,x}}}{r_0 \Delta h_{f,v}}\right] = \frac{1}{\alpha_{abs}} ln\left[\frac{\mathrm{E_{l,x}}}{E_{l\,min}}\right]$$

$$ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\ \mathrm{E_{l,x}}}{r_0\Delta h_{f,v}}\right]=\frac{\alpha_f(1-Pt)}{\alpha_{abs}}ln\left[\frac{\mathrm{E_{l,x}}}{E_{l\,min}}\right]$$

$$\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\ \mathrm{E_{l,x}}}{r_0\Delta h_{f,v}}=\frac{\mathrm{E_{l,x}}}{E_{l\,min}}$$

$$\boldsymbol{E_{l\,min}=\sqrt{\frac{\pi}{2}}\frac{r_0\Delta h_{f,v}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}} \qquad \text{V.33}$$

$E_{l\,min}$ est donc ici fonction de l'énergie linéique. Ce qui peut là encore s'expliquer par la prise en compte de l'état fondu et non simplement liquide.

V.2.2 Relation entre $E_{l,\,min}$ et $E_{l,\,min}$*

En recombinant l'*équation (V.19)*, on obtient :

$$E^*_{l\,min}{}^{(1+\gamma)}=\sqrt{\frac{\pi}{2}}\frac{r_0\Delta h_{f,v}}{\beta(1-R_{nf})}$$

En remplaçant cette précédente équation dans l'*équation (V.33)*:

$$E_{l\,min}=\frac{\beta.(1-R_{nf})}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}.E^*_{l\,min}{}^{(1+\gamma)}$$

Or, $\alpha_{abs}=\beta.E_l^{\gamma}$ donc pour $E_l=E_{l\,min}$, on a $\beta=\alpha_{abs}E_{l\,min}^{-\gamma}$. L'équation ci-dessus s'écrit alors :

$$E_{l\,min}=\frac{\alpha_{abs}.(1-R_{nf})E_{l\,min}^{-\gamma}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}.E^*_{l\,min}{}^{(1+\gamma)}$$

Soit

$$\frac{E_{l\,min}}{E^*_{l\,min}}=\left[\frac{\alpha_{abs}.(1-R_{nf})}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\right]^{1/(1+\gamma)}$$

Et

$$\boldsymbol{E_{l\,min}=E^*_{l\,min}.\left[\frac{\alpha_{abs}.(1-R_{nf})}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\right]^{1/(1+\gamma)}} \qquad \text{V.34}$$

L'énergie linéique minimale $E_{l\,min}$ pour fondre en profondeur est proportionnelle à $E^*_{l\,min}$. On retrouve comme dans le modèle de type SLA, $E^*_{l\,min}<E_{l\,min}$ puisque d'après la *Figure V-17*, $10<\frac{\alpha_{abs}.(1-R_{nf})}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}<10^{13}$.

V.2.3 Cas du lit de poudre sur substrat dense

V.2.3.1 Absorption avant formation du bain de fusion ($t<t_f$)

En absence de fusion, le système {LDP+Substrat} est découpé en deux milieux homogènes dans chacun desquels la loi de Beer-Lambert s'applique avec un coefficient d'absorption α_p *et* α_s et les coefficients de réflexion respectifs R_p *et* R_s. On suit le même développement que pour le cas unique qui consiste à faire un suivi temporel (temps t) de l'absorption de l'énergie volumique d'un point matériel de coordonnées (x,y,z) *(Figure V-20)*.

Le coefficient d'absorption varie selon la *(Figure V-20)*:

$$\alpha = \begin{cases} \boldsymbol{\alpha_p} \; si \;\; z \leq \Delta z_{poudre} \\ \boldsymbol{\alpha_s} \; si \;\; z > \Delta z_{poudre} \end{cases}$$

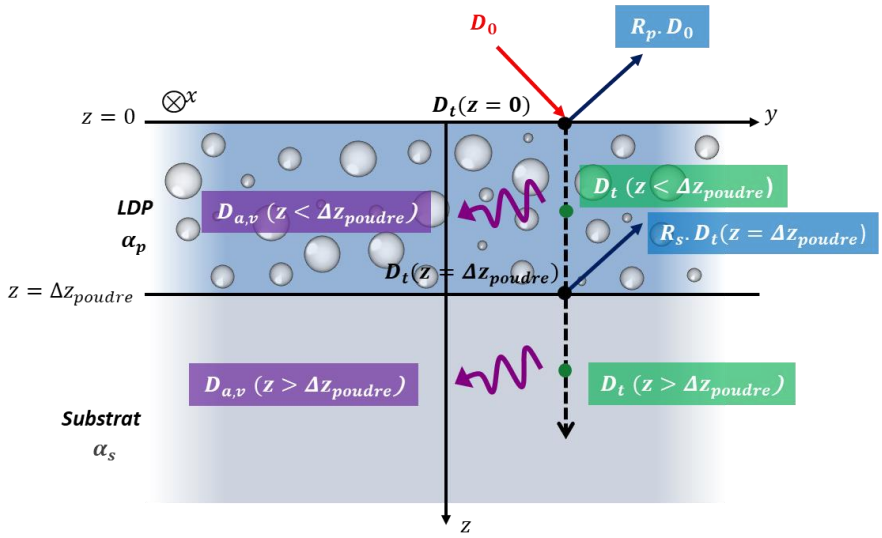


Figure V-20 : Interaction laser-matière pour le système {LDP+Substrat} en surface et en volume suivant le modèle évolutif avant fusion à la surface du LDP($t < t_f$)

- Lorsque $\boldsymbol{0 \leq z \leq \Delta z_{poudre}}$, on retrouve le cas du milieu unique appliqué au LDP. La puissance surfacique transmise à la profondeur z du LDP s'exprime alors :

$$\boldsymbol{D_t(z \leq \Delta z_{poudre}) = D_t(x, y, z = 0, t).e^{-\alpha_p . z} = (1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{-\alpha_p . z}}$$

La puissance volumique associée qui est absorbée dans le volume du lit de poudre s'écrit alors :

$$D_{a,v}\left(z \leq \Delta z_{poudre}\right) = -\frac{\partial D_t(x, y, z \leq \Delta z_{poudre}, t)}{\partial z} = \alpha_p . D_t(x, y, z \leq \Delta z_{poudre}, t) \qquad \text{V.35}$$

$$\boldsymbol{D_{a,v}(z \leq \Delta z_{poudre}) = \alpha_p . (1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{-\alpha_p . z}}$$

avec R_p la réflexion en surface non fondue du LDP.

- Lorsque $\boldsymbol{z = 0}$, la puissance surfacique transmise en surface du LDP vaut :

$$\boldsymbol{D_t(x, y, z = 0, t) = (1 - R_p).D_0(x, y, t)}$$

$$\boldsymbol{D_{a,v}\ (x, y, z = 0, t) = \alpha_p . (1 - R_p).D_0(x, y, t)}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z = \Delta z_{poudre}}$, en prenant en compte la réflexion sur le substrat R_s :

$$\boldsymbol{D_t(x, y, z = \Delta z_{poudre}, t) = (1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{-\alpha_p . \Delta z_{poudre}}}$$

$$\boldsymbol{D_{a,v}(x, y, z = \Delta z_{poudre}, t) = \alpha_p.(1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{-\alpha_p . \Delta z_{poudre}}}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z > \Delta z_{poudre}}$, la puissance surfacique transmise au-delà de Δz_{poudre} prend en compte la traversée des deux milieux et de l'interface :

$$D_t(z > \Delta z_{poudre}) = (1 - R_s).D_t(x, y, z = \Delta z_{poudre}, t).e^{-\alpha_s .(z - \Delta z_{poudre})}$$

$$D_t(z > \Delta z_{poudre}) = (1 - R_s).(1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{-\alpha_p . \Delta z_{poudre}}.e^{-\alpha_s (z - \Delta z_{poudre})}$$

$$\boldsymbol{D_t(z > \Delta z_{poudre}) = (1 - R_s).(1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{\Delta z_{poudre}(\alpha_s - \alpha_p)}.e^{-\alpha_s . z}}$$

On en déduit la puissance volumique absorbée dans le volume du substrat à une profondeur z de la surface:

$$\boldsymbol{D_{a,v}(z > \Delta z_{poudre}) = \alpha_s(1 - R_s)(1 - R_p).D_0(x, y, t).e^{\Delta z_{poudre}(\alpha_s - \alpha_p)}.e^{-\alpha_s . z}} \qquad \text{V.36}$$

V.2.3.2 Absorption après formation du bain de fusion dans le lit de poudre (t_i>t>t_f)

Le coefficient d'absorption varie selon, *(Figure V-21)* :

$$\alpha = \begin{cases} 0 \; si \; z < z_{retrait} \\ \boldsymbol{\alpha_f} \quad \text{si } z_{retrait} < z < z_f(x,y,t) \\ \boldsymbol{\alpha_s} \; si \; z > z_f(x,y,t) \; et \quad \text{si } z > \Delta z_{poudre} \\ \boldsymbol{\alpha_p} \; si \; z > z_f(x,y,t) \; et \quad \text{si } z \leq \Delta z_{poudre} \end{cases}$$

Pour $\boldsymbol{z \leq \Delta z_{poudre}}$ on retrouve le cas du milieu unique.

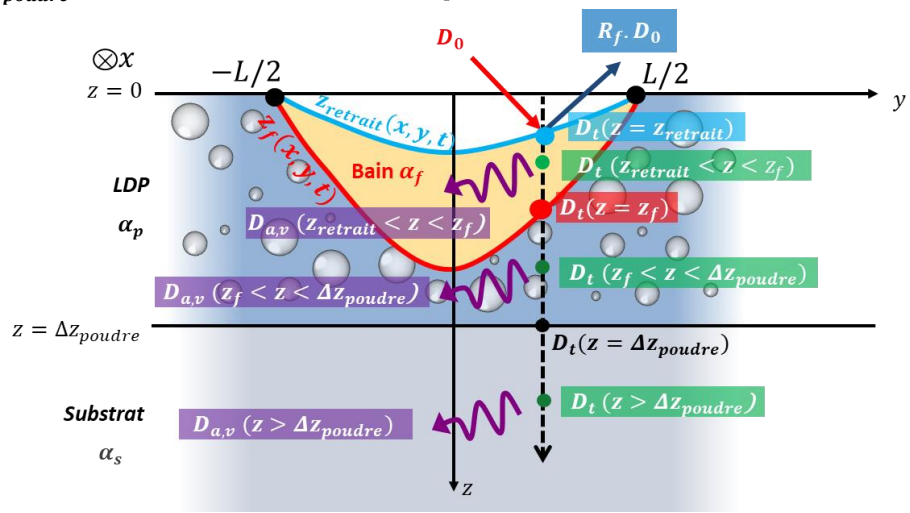


Figure V-21 : Interaction laser-matière pour le système {LDP+Substrat} en surface et en volume suivant le modèle évolutif après fusion dans le LDP ($t_f < t < t_i$)

On note que la prise en compte de la réflexion aux interfaces liquide/poudre et poudre/substrat est globalisée dans la mesure de $R_f = f(E_l)$ car les configurations de nos mesures optiques *(Chapitre IV)* ne permettent pas de distinguer R_l *de* R_p (ou R_s). Ne sont pas également pris en compte les réflexions R_p à l'interface liquide/solide et R_s à l'interface poudre/substrat.
Selon la conservation de la matière et l'absence supposée d'échange de matière lors de la consolidation du lit de poudre, on peut définir $\boldsymbol{z_{retrait}(x,y,t) = Pt.z_f(x,y,t)}$. Comme vu précédemment, la forme de z_{app}(x, y) dépend du matériau et des paramètres du procédé, notamment dans le cas du *balling* où il s'agit d'une sphère. Ce cas limite sera alors plus simplement pris en compte par la section S_{app} .

- Lorsque $\boldsymbol{0 \leqslant z} < z_{retrait}$, aucune absorption ($\boldsymbol{\alpha = 0}$).

- Lorsque $\boldsymbol{z_f > z} \geq z_{retrait}\boldsymbol{(x,y,t)}$, le rayonnement traverse le liquide :

$$\begin{cases} D_t(x,y,z_{retrait} \leq z < z_f,t) = (1-R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_{retrait})} \\ D_{a,v}(x,y,z_{retrait} \leq z < z_f,t) = \alpha_f.(1-R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_{retrait})} \end{cases}$$

Soit :

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z_{retrait} \leq z < z_f,t) = (1-R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_f.Pt)}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z_{retrait} \leq z < z_f,t) = \alpha_f.(1-R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_f.Pt)}} \end{cases}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z} = z_{retrait}\boldsymbol{(x,y,t)}$:

$$\boldsymbol{D_t(x,y,z = z_{retrait},t) = (1-R_f).D_0(x,y,t)}$$
$$\boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z = z_{retrait},t) = \alpha_f.(1-R_f).D_0\ (x,y,t)}$$

En dessous du bain de fusion ($\boldsymbol{z \geq z_f(x,y,t)}$), l'interaction laser-matière va dépendre du milieu de propagation :

- Lorsque $\boldsymbol{z_f(x,y,t) \leq z < \Delta z_{poudre}}$, le rayonnement traverse le liquide et le LDP :

$$D_t(x,y,z_f \leq z < \Delta z_{poudre},t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f.(1-Pt)z_f}.e^{-\alpha_p\,.\,(z-z_f)}$$

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z_f \leq z < \Delta z_{poudre},t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{z_f.(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}.e^{-\alpha_p\,.\,z}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z_f \leq z < \Delta z_{poudre},t) = \alpha_p.(1-R_f).D_0(x,y,t).e^{z_f.(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}.e^{-\alpha_p\,.\,z}} \end{cases} \quad \text{V.37}$$

- A l'interface $\boldsymbol{z = z_f(x,y,t)}$

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z=z_f,t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f(1-Pt)z_f}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z=z_f,t) = \alpha_p.(1-R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f(1-Pt)z_f}} \end{cases}$$

- Lorsque $\boldsymbol{\Delta z_{poudre} \leq z}$, le rayonnement traverse le liquide, le LDP et une partie du substrat :

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z \geq \Delta z_{poudre},t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{z_f.\,(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}.e^{\Delta z_{poudre}(\alpha_s-\alpha_p)}.e^{-\alpha_s\,.\,z}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z \geq \Delta z_{poudre},t) = \alpha_s.(1-R_f).D_0(x,y,t).e^{z_f.(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}.e^{\Delta z_{poudre}(\alpha_s-\alpha_p)}.e^{-\alpha_s\,.\,z}} \end{cases} \quad \text{V.38}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z = \Delta z_{poudre}}$:

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z=\Delta z_{poudre},t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{z_f.(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}e^{-\alpha_p\,.\,\Delta z_{poudre}}} \\ \boldsymbol{D_{av}(x,y,z=\Delta z_{poudre},t) = \alpha_s.(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{z_f.(\alpha_p-\alpha_f(1-Pt))}e^{-\alpha_p\,.\,\Delta z_{poudre}}} \end{cases}$$

V.2.3.3 Absorption à l'interface lit de poudre/substrat (t=t$_i$)

a) Expression de la frontière de la zone apparente z_{app} et de la surface apparente $S_{app,i}$

Une fois la totalité de l'épaisseur de poudre fondue, la courbure de la partie fondue du lit de poudre $z_i\,(x,y,t \geq t_i)$ s'inverse et s'apparente à $z_{app}(x,y,t \geq t_i)$ *(Figure V-22)* puis mouille le substrat qui fond à son tour *(Figure V-25)*. L'angle de mouillage et la profondeur de fusion dans le substrat sont fonction du matériau, de la température et donc de l'énergie linéique restante. L'enveloppe de la matière fondue à partir du lit de poudre $z_{app}(x,y,t \geq t_i)$ s'apparente à une parabole qui s'appuie sur une largeur $L_i = e_{app,i}$. La hauteur $H_{app,i}$ et la largeur $e_{app,i}$ et donc L_i varient jusqu'à l'établissement de la complète zone refondue dans le substrat *(voir paragraphe §V.2.3.3)*.

Il a été vu que la zone fondue d'un milieu unique est une parabole qui dans le cas du lit de poudre s'écrit comme suit *(équation V.32)* :

$$\boldsymbol{z_p(y) = -H.\frac{4}{L^2}y^2 + H}$$

Si on considère le moment où la fusion du lit de poudre atteint l'interface LDP/substrat ($t = t_i$), la hauteur fondue vaut $H = \Delta z_{poudre}$ et la largeur fondue associée vaut $L = L_i$. La forme de la zone fondue à l'interface $\boldsymbol{z_i(y)}$ peut alors s'écrire:

$$\boldsymbol{z_i(y) = -\Delta z_{poudre}.\frac{4}{{L_i}^2}y^2 + \Delta z_{poudre} = \Delta z_{poudre}(1-\frac{4}{{L_i}^2}y^2)} \quad \text{V.39}$$

La profondeur consolidée $z_i(y)$ est égale à :

$$\boldsymbol{z_i(y).(1-Pt) = \Delta z_{poudre}(1-\frac{4}{{L_i}^2}y^2).(1-Pt)}$$

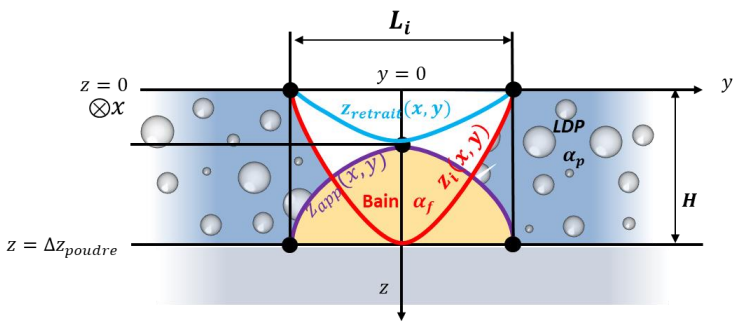


Figure V-22 : Etat du système {LDP+Substrat} à $t = t_i$

Afin de prendre en compte le mouillage du substrat par la calotte liquide de section $S_{app,i}$ égale à celle de la partie fusionnée et consolidée du LDP, on considère d'une part l'inversion de cette partie consolidée et d'autre part un décalage des hauteurs de Δz_{poudre}. Dans le repère (y, z) tel qu'il est défini à la *Figure V-22*, la limite de la zone apparente notée $z_{app}(y)$ s'écrit comme suit :

$$\boldsymbol{z_{app}(y) = -z_i(y).(1 - Pt) + \Delta z_{poudre} = \Delta z_{poudre}\left(\frac{4}{L_i^{\,2}}y^2 - 1\right).(1 - Pt) + \Delta z_{poudre}}$$

$$\boldsymbol{z_{app}(y) = \Delta z_{poudre}\left[\frac{4}{L_i^{\,2}}y^2(1 - Pt) + Pt\right]} \qquad \text{V.40}$$

Pour y=0, l'*équation (V.40)* vaut :

$$z_{app}(0) = \Delta z_{poudre}.Pt$$

Or le sommet de la zone consolidée est définie par :

$$z_{app}(0) = \Delta z_{poudre} - H_{app,i}$$

Donc par combinaison des deux dernières équations, on retrouve l'équation bien connue de la conservation de la matière :

$$H_{app,i} = \Delta z_{poudre}(1 - Pt)$$

Pour $\boldsymbol{y = \frac{e_{app,i}}{2}}$, $\boldsymbol{z_{app}(y) = \Delta z_{poudre}}$ *(Figure V-25)* et l'*équation (V.40)* vaut :

$$\boldsymbol{\Delta z_{poudre}\left[\frac{e_{app,i}^2}{L_i^{\,2}}(1 - Pt) + Pt\right] = \Delta z_{poudre}}$$

Ce qui mène comme attendu à $e_{app,i} = L_i$.
De plus, pour $\boldsymbol{y = \frac{e_{app,i}}{2}}$, on remarque que $\boldsymbol{z_i(y) = 0}$ *(Figure V-25).*

Enfin, il est important de vérifier qu'au temps t=t_i, la surface fondue à partir de $z_i(y)$ est égale à la surface de $z_{app}(y)$. Pour ce faire, il convient d'écrire que :

$$S_{app,i} = (1 - Pt).\int_{-Li/2}^{Li/2} z_i(y).dy = \Delta z_{poudre}.L_i - \int_{-\frac{Li}{2}}^{\frac{Li}{2}} z_{app}(y).dy$$

Après intégration, on trouve que :

$$S_{app,i} = \frac{2}{3}.\Delta z_{poudre}(1 - Pt).L_i = \frac{2}{3}.H_{app,i}.L_i = \frac{2}{3}.H_{app,i}.e_{app,i}$$

b) Expression de l'énergie linéique d'interface $E_{l,i}$ et de la largeur $e_{app,i}$

Après la fusion sur la hauteur du lit du poudre, $\boldsymbol{H = \Delta z_{poudre}}$ à $t = t_i$, et $E_l = E_{l,i}$ correspondant à l'énergie linéique nécessaire à la fusion du LDP jusqu'à l'interface LDP/substrat, l'*expression (V.27)* s'écrit alors :

$$\Delta z_{poudre} = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\,\mathrm{E_{l,i}}}{r_0 \Delta h_{f,v}} - \frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})} + 1\right] \qquad \text{V.41}$$

Soit :

$$\mathbf{E_{l,i}} = \sqrt{\frac{\pi}{2}}\frac{r_0.\Delta h_{f,v}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\left(e^{\alpha_f(1-Pt)\Delta z_{poudre}} + \frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)} - 1\right) \qquad \text{V.42}$$

$E_{l,i}$ est fonction des coefficients d'absorption et de réflectance du LDP et du liquide, de la porosité et de l'épaisseur du lit de poudre. L'épaisseur de poudre a une influence bien plus marquée que la porosité du lit de poudre sur la valeur de $E_{l,i}$ *(Tableau V-5)*. Le calcul pour deux matériaux à coefficients d'absorption différents montre que cette énergie linéique $E_{l,i}$ augmente avec l'épaisseur de poudre et diminue avec le caractère absorbant du matériau. Cette même valeur de $E_{l,i}$ diminue avec l'augmentation de la porosité car le rayonnement est plus facilement transmis à l'interface.

Tableau V-5: Valeur calculée de l'énergie linéique nécessaire à la fusion du LDP jusqu' à l'interface LDP/Substrat pour a) AZ et Al_2O_3 b) AZ à Δz_{poudre} =50 µm

Δz_{poudre} (µm)	$E_{l,i}$ $(J.mm^{-1})$	
	AZ (Pt 55%)	A (Pt 58%)
30 µm	0,026	0,038
50 µm	0,047	0,087
87 µm	0,080	0,115
92 µm	0,105	0,139
100 µm	0,118	0,169

a)

$\Delta z_{poudre} = 50\ \mu m$	Pt (%)	$E_{l,i}$ $(J.mm^{-1})$
	40	0,055
	50	0,049
	60	0,044
	70	0,039

b)

Pour $\mathrm{E_l} = E_{l,i}$, l'*équation V.11* vaut :

$$L_i^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_p(1-R_p)E_{l,i}}{r_0\,\Delta h_{f,v}}\right)$$

Puis en en combinant avec l'*équation V.42* :

$$L_i^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\frac{\alpha_p(1-R_p)}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\left[e^{\alpha_f(1-Pt)\Delta z_{poudre}} + \frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)} - 1\right]\right)$$

$$\boldsymbol{L_i^2 = e_{app,i}^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\frac{\alpha_p(1-R_p)e^{\alpha_f(1-Pt)\Delta z_{poudre}}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)} + 1 - \frac{\alpha_p(1-R_p)}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\right)} \qquad \text{V.43}$$

L'application numérique et la comparaison avec les mesures expérimentales montrent que $L \geq L_i$ *(Figure V-23)*. Pour les faibles valeurs d'énergie linéique, $L = L_i$ car la fusion à l'interface n'est pas atteinte.

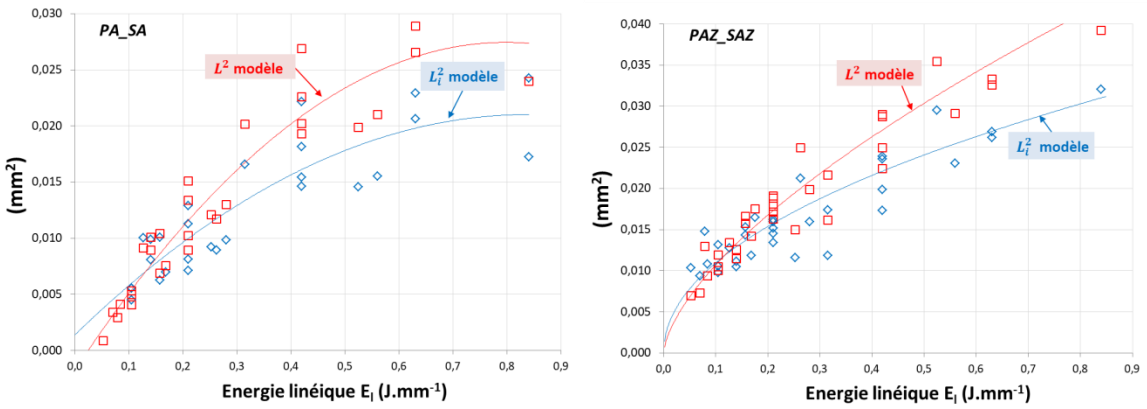


Figure V-23 : Valeurs des différentes largeurs au carré (L^2 , L_i^2) calculées par le modèle évolutif en fonction de l'énergie linéique

c) Expression de la largeur d'interaction à l'interface e_i

Lorsque $\boldsymbol{z_p(e_i/2) = \Delta z_{poudre}}$ *(Figure V-24)*, et en remplaçant dans l'équation *(V.26)* on obtient :

$$\Delta z_{poudre} = \frac{1}{(1-Pt)\alpha_f} ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-\frac{e_i^2}{2r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}+1\right]$$

$$e^{\Delta z_{poudre}(1-Pt)\alpha_f} = \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-\frac{e_i^2}{2r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_{abs}(1-R_{nf})}+1$$

$$\frac{\left[\alpha_{abs}(1-R_{nf})e^{\Delta z_{poudre}(1-Pt)\alpha_f}+\alpha_f(1-R_f).(1-Pt)-\alpha_{abs}(1-R_{nf})\right]r_0\Delta h_{f,v}}{\sqrt{\frac{2}{\pi}}\alpha_{abs}(1-R_{nf}).\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\mathrm{E_l}} = \exp\left(-\frac{e_i^2}{2r_0^2}\right)$$

$$\boldsymbol{e_i{}^2 = 2r_0^2 ln\left[\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_{abs}(1-R_{nf}).\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)\mathrm{E_l}}{\left[\alpha_{abs}(1-R_{nf})e^{\Delta z_{poudre}(1-Pt)\alpha_f}+\alpha_f(1-R_f).(1-Pt)-\alpha_{abs}(1-R_{nf})\right]r_0\Delta h_{f,v}}\right]}$$

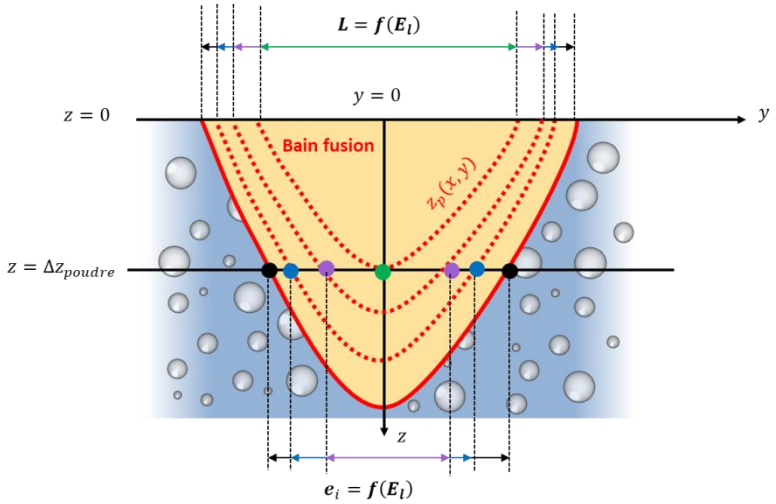


Figure V-24 : Surfaces d'interaction au sein du milieu granulaire suivant la variation d'énergie linéique et variation de la largeur d'interaction à l'interface e_i avec E_l

Si $e_i = 0$, on retrouve bien $\mathrm{E_l} = E_{l,i}$ c'est à dire l'*équation (V.42)*.

Pour $t \to +\infty$, d'après l'*équation (V.32)*, lorsque $\boldsymbol{z_p(e_i/2) = \Delta z_{poudre}}$, on peut écrire :

$$\Delta z_{poudre} = -H.\frac{e_i^2}{L^2} + H$$

Soit

$$\boldsymbol{e_i^2 = \left(1 - \frac{\Delta z_{poudre}}{H}\right).L^2} \qquad \text{V.44}$$

V.2.3.4 Absorption après formation du bain de fusion dans le substrat ($t>t_i$)

Le coefficient d'absorption varie selon, *(Figure V-25)*:

$$\alpha = \begin{cases} \mathbf{0} & \text{si } z < z_{app}(x,y,t) \\ \boldsymbol{\alpha_f} & \text{si } z < z_f(x,y,t) \\ \boldsymbol{\alpha_s} & si\ \ z > z_f(x,y,t) \end{cases}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z = 0}$ et $\boldsymbol{0 < z < z_{app}(x,y,t} > t_i)$, aucune absorption ne se produit ($\boldsymbol{\alpha = 0}$).

- Lorsque $\boldsymbol{z_{app}(x,y,t > t_i) \leq z < \Delta z_{poudre}}$, le rayonnement traverse le liquide issu de la consolidation du lit de poudre:

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z_{app} \leq z < \Delta z_{poudre},t) = (1 - R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_{app})}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z_{app} \leq z < \Delta z_{poudre},t) = \alpha_f.(1 - R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f.(z-z_{app})}} \end{cases}$$

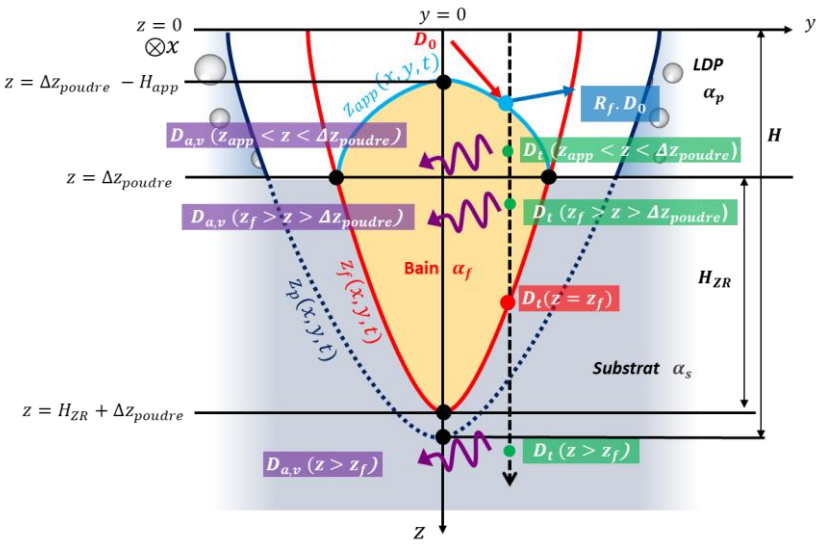


Figure V-25 : Interaction laser-matière pour le système {LDP+Substrat} en surface et en volume suivant le modèle évolutif après une fusion avancée dans le substrat ($t > t_i$)

- Lorsque $\boldsymbol{\Delta z_{poudre} \leq z < z_f(x,y,t)}$, le rayonnement traverse en plus le liquide issu de la refusion du substrat :

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z_{app} \leq z < z_f,t) = (1 - R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f.(\Delta z_{poudre}-z_{app})}e^{-\alpha_f.(z-\Delta z_{poudre})}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z_{app} \leq z < z_f,t) = \alpha_f.(1 - R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f.(\Delta z_{poudre}-z_{app})}e^{-\alpha_f.(z-\Delta z_{poudre})}} \end{cases}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z = \Delta z_{poudre}}$ **:**

$$\begin{cases} \boldsymbol{D_t(x,y,z = \Delta z_{poudre},t) = (1 - R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(\Delta z_{poudre}-z_{app})}} \\ \boldsymbol{D_{a,v}(x,y,z = \Delta z_{poudre},t) = \alpha_f.(1 - R_f).D_0(x,y,t).e^{-\alpha_f.(\Delta z_{poudre}-z_{app})}} \end{cases}$$

- Lorsque $\boldsymbol{z \geq z_f(x,y,t)}$, le rayonnement traverse le liquide et le substrat :

$$\begin{cases} D_t(x,y,z \geq z_f,t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f\,.\,(\Delta z_{poudre}-z_{app})}e^{-\alpha_f\,.\,(z_f-\Delta z_{poudre})}.e^{-\alpha_s\,(z-z_f)} \\ D_{a,v}(x,y,z \geq z_f,t) = \alpha_s.(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{-\alpha_f\,.\,(\Delta z_{poudre}-z_{app})}e^{-\alpha_f\,.\,(z_f-\Delta z_{poudre})}.e^{-\alpha_s\,(z-z_f)} \end{cases}$$

$$\begin{cases} D_t(x,y,z \geq z_f,t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\alpha_f\,.\,z_{app}}.e^{(\alpha_s-\alpha_f)\,.\,z_f}.e^{-\alpha_s.z} \\ D_{a,v}(x,y,z \geq z_f,t) = \alpha_s.(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\alpha_f\,.\,z_{app}}.e^{(\alpha_s-\alpha_f)\,.\,z_f}.e^{-\alpha_s.z} \end{cases} \qquad \text{V.45}$$

- Lorsque $z = z_f(x,y,t)$:

$$\begin{cases} D_t(x,y,z = z_f,t) = (1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\alpha_f\,.\,z_{app}}.e^{-\alpha_f\,.\,z_f} \\ D_{a,v}(x,y,z = z_f,t) = \alpha_s.(1-R_f).D_0\,(x,y,t).e^{\alpha_f\,.\,z_{app}}.e^{-\alpha_f\,.\,z_f} \end{cases}$$

a) Bilans

En suivant le même schéma que pour le milieu unique *(§V.2.1.2.2)*, la variation totale d'enthalpie volumique s'écrit comme la somme des composantes correspondant à l'accumulation d'énergie avant et après fusion du bain pour chaque milieu:

- Pour $z < \Delta z_{poudre}$ l'accumulation de l'énergie nécessaire à la formation par fusion de la section apparente de poudre pour $t < t_i$, est exprimée à partir des relations *(V.35)* pour $t < t_f$ et *(V.37)* pour $t_i > t > t_f$:

$$\Delta h_v(x,y,z,t) = \int_{-\infty}^{t_f} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt' + \int_{t_f}^{t_i} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt'$$

- Pour $z > \Delta z_{poudre}$, l'accumulation de l'énergie nécessaire à la formation par fusion de la section refondue du substrat correspondant avant et après fusion du bain à partir des relations *(V.36)* pour $t < t_f$, *(V.38)* pour $t_i > t > t_f$ et *(V.45)* pour $t_i < t$:

$$\Delta h_v(x,y,z,t) = \int_{-\infty}^{t_f} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt' + \int_{t_f}^{t_i} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt' + \int_{t_i}^{t} D_{a,v}(x,y,z,t')\,dt'$$

On retrouve dans le *Tableau V-6* pour les différents milieux LDP ($z < \Delta z_{poudre}$) et {LDP+Substrat} ($z > \Delta z_{poudre}$) les expressions clés pour exprimer la vitesse de propagation du bain de fusion dans chaque milieu.

Tableau V-6 : Expression des dérivées partielles de Δh_v et de la vitesse de propagation des bains pour les différents milieux

	$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial z}(x,y,z_f(x,y,t),t)$	$\frac{\partial \Delta h_v}{\partial t}(x,y,z_f(x,y,t),t)$	$\frac{\partial z_f}{\partial t}(x,y,t)$
$z < \Delta z_{poudre}$	$-\alpha_p.\Delta h_{f,v}$	$\alpha_p.(1-R_f).D_0.e^{-\alpha_f.(1-Pt)\,.\,z_f}$	$\frac{(1-R_f).D_0.e^{-\alpha_f.(1-Pt)\,.\,z_f}}{\Delta h_{f,v}}$
$z > \Delta z_{poudre}$	$-\alpha_s.\Delta h_{f,v}$	$\alpha_s.(1-R_f).D_0\,.e^{-\alpha_f.\,z_f}\,.e^{\alpha_f.\,z_{app}}$	$\frac{(1-R_f).D_0\,.e^{-\alpha_f.\,z_f}\,.e^{\alpha_f.\,z_{app}}}{\Delta h_{f,v}}$

b) Conditions limites dans le lit de poudre

La condition de fusion en surface ($z = 0$) est la même que pour le cas unique appliqué au LDP avec $R_{nf} = R_p$ et $\alpha_{abs} = \alpha_p$, on ne fait donc que redévelopper ici *l'équation V.16* :

$$\frac{1}{\alpha_p(1-R_p)} = \frac{E_l}{\Delta h_{f,v}\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right).\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)+1\right] \qquad \text{V.46}$$

De même, la condition de fusion est la même que pour le cas unique appliqué au LDP. Pour $t \to +\infty$ dans le LDP, et pour $y = \frac{L}{2}$, la moitié de la largeur du bain dans le lit de poudre, correspondant à la frontière de

la zone fondue dans le LDP s'exprime d'après l'égalité de l'enthalpie volumique de fusion *(équation V.11)*, soit :

$$\boldsymbol{L^2 = 2r_0^2.\ \ln\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha_p(1-R_p)E_l}{r_0\,\Delta h_{f,v}}\right)} \qquad \text{V.47}$$

La vitesse de propagation du bain de fusion **pour** $\boldsymbol{z < \Delta z_{poudre}}$ s'exprime à partir du *Tableau V-6*, tel que :

$$\frac{\partial z_f}{\partial t}.e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)} = \frac{(1-\mathrm{R_f}).\mathrm{D_0}(x,y,t)}{\Delta h_{f,v}} = \frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)(1-Pt)}}{\alpha_f\,.\,(1-Pt)}\right)$$

$$\int_{t_f}^{t_i}\frac{1}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t')\,dt' = \frac{\mathrm{e}^{\alpha_f(1-\mathrm{Pt}).z_f(x,y,t\to t_i)} - \mathrm{e}^{\alpha_f.(1-\mathrm{Pt}).z_f(x,y,t\to t_f)}}{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)} = \frac{e^{\alpha_f.(1-\mathrm{Pt}).z_i} - 1}{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}$$

Or :

$$\int_{t_f(x,y)}^{t_i(x,y)}\frac{1}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t')\,dt' = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_i(x,y)-x}{r_0}\right) - \mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)\right]$$

Donc :

$$\boldsymbol{\frac{e^{\alpha_f.(1-\mathrm{Pt}).z_i} - 1}{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)} = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_i(x,y)-x}{r_0}\right) - \mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_f(x,y)-x}{r_0}\right)\right]} \qquad \text{V.48}$$

c) Conditions limites dans le substrat et expression des dimensions du bain de fusion (profondeur H_{ZR}, et largeur refondue e_{ZR})

En intégrant la vitesse de propagation du bain **pour** $\boldsymbol{z > \Delta z_{poudre}}$ entre le début de fusion du substrat pour $t = t_i$ et l'infini, il est possible d'exprimer la profondeur refondue du bain $z_{ZR}(y)$:

$$\frac{\partial z_f}{\partial t}.e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)} = \frac{(1-R_f)}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t).e^{\alpha_f\,.\,z_{app}} = \frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{e^{\alpha_f\,.\,z_f(x,y,t)}}{\alpha_f}\right)$$

Ici, on considère que la variation de z_{app} est négligeable entre t_i et $t \to +\infty$. Cette fonction est donc constante vis-à-vis du temps, on a alors :

$$\int_{t_i}^{+\infty}\frac{1}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t')\,dt' = \frac{e^{\alpha_f.z_f(x,y,t\to+\infty)} - e^{\alpha_f.z_f(x,y,t\to t_i)}}{\alpha_f.e^{\alpha_f z_{app}}(1-R_f)} = \frac{e^{\alpha_f z_{ZR}} - e^{\alpha_f.z_i}}{\alpha_f.e^{\alpha_f z_{app}}(1-R_f)}$$

Or :

$$\int_{t_i(x,y)}^{+\infty}\frac{1}{\Delta h_{f,v}}.D_0\,(x,y,t')\,dt' = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[1 - \mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_i(x,y)-x}{r_0}\right)\right]$$

Donc :

$$\boldsymbol{\frac{e^{\alpha_f z_{ZR}} - e^{\alpha_f.z_i}}{\alpha_f.e^{\alpha_f z_{app}}(1-R_f)} = \frac{\mathrm{E_l}}{\sqrt{2\pi}r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[1 - \mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{V.t_i(x,y)-x}{r_0}\right)\right]} \qquad \text{V.49}$$

Or en additionnant cette équation avec les *relations (V.46) et (V.48)*, on obtient :

$$\frac{e^{\alpha_f z_{ZR}} - e^{\alpha_f.z_i}}{\alpha_f.e^{\alpha_f z_{app}}(1-R_f)} + \frac{e^{\alpha_f.(1-Pt).z_i} - 1}{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)} + \frac{1}{\alpha_p(1-R_p)} = \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)$$

$$(1-Pt)(e^{\alpha_f z_{ZR}} - e^{\alpha_f.z_i}).e^{-\alpha_f z_{app}} + e^{\alpha_f.(1-Pt).z_i} - 1$$

$$= \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right) - \frac{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}$$

$$(1-Pt)\left[e^{\alpha_f(z_{ZR}-z_{app})}-e^{\alpha_f.(z_i-z_{app})}\right]+e^{\alpha_f.(1-Pt).z_i}$$
$$=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{E_l.\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}+1$$

$$\boldsymbol{z_{ZR}(y)=\frac{1}{\alpha_f}ln\left[\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{E_l.\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}+1-e^{\alpha_f.(1-Pt).z_i}\right).\frac{1}{(1-P_t)}+e^{\alpha_f.(z_i-z_{app})}\right]+z_{app}(y)} \quad \text{V.50}$$

Si on vient combiner l'*égalité (V.26)* avec l'équation précédente, on obtient :

$$\boldsymbol{z_{ZR}(y)=\frac{1}{\alpha_f}ln\left[\frac{e^{\alpha_f(1-Pt).z_p}-e^{\alpha_f(1-Pt).z_i}}{(1-P_t)}+e^{\alpha_f.(z_i-z_{app})}\right]+z_{app}(y)} \quad \text{V.51}$$

Pour **y= $e_{ZR}/2$** *(Figure V-26)*, on a à partir de cette dernière *équation (V.50)*:

$$\begin{cases} z_{ZR}(e_{ZR}/2)=\Delta z_{poudre} \\ z_{app}\left(\frac{e_{ZR}}{2}\right)=\Delta z_{poudre}\left[\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}(1-Pt)+Pt\right] \\ z_i\left(\frac{e_{ZR}}{2}\right)=\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}\right) \end{cases} \text{d'après les relations (V.39) et (V.40)}$$

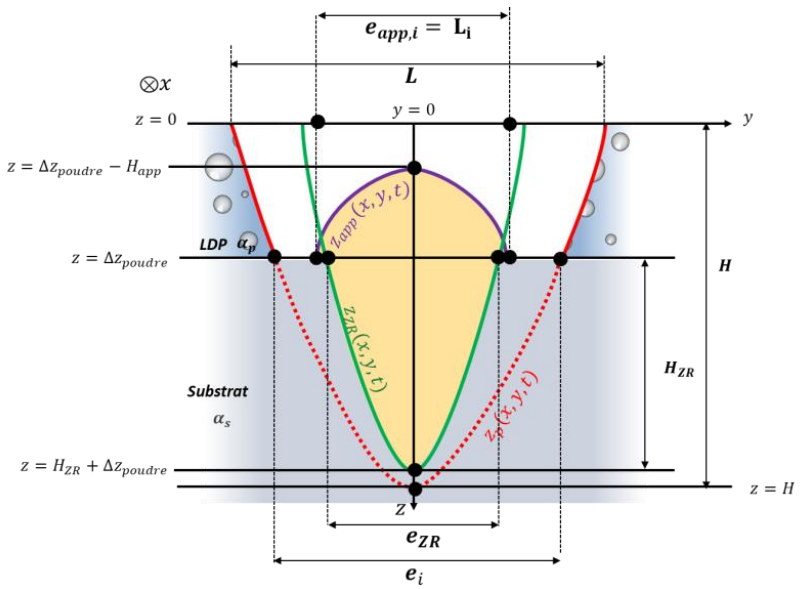


Figure V-26 : Identification des grandeurs caractéristiques du cordon de fusion 1D à t → +∞

Il est alors possible d'exprimer e_{ZR}, la largeur de la zone refondue en remplaçant les termes précédents dans l'*équation (V.51)*:

$$\Delta z_{poudre}=\frac{1}{\alpha_f}ln\left[\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{E_l.\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}+1-e^{\alpha_f.(1-Pt).\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}\right)}\right).\frac{1}{(1-P_t)}+e^{\alpha_f\left(\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}\right)-\Delta z_{poudre}\left[\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}(1-Pt)+Pt\right]\right)}\right]+\Delta z_{poudre}\left[\frac{e_{ZR}^2}{L_i^2}(1-Pt)+Pt\right]$$

$$\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}(1-Pt)-Pt\right)$$
$$=\frac{1}{\alpha_f}ln\left[\left(\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}\exp\left(-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}\right)-\frac{\alpha_f.(1-R_f).(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}+1\right.\right.$$
$$\left.\left.-e^{\alpha_f.(1-Pt).\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)}\right).\frac{1}{(1-P_t)}+e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-Pt+\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}(Pt-2)\right)}\right]$$

$$e^{\alpha_f.\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}$$
$$=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f)}{r_0\Delta h_{f,v}}e^{-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}}-\frac{\alpha_f.(1-R_f)}{\alpha_p(1-R_p)}+\frac{1}{(1-Pt)}-\frac{1}{(1-Pt)}e^{\boldsymbol{\alpha_f.(1-Pt).\Delta z_{poudre}}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)}$$
$$+e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-Pt+\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}(Pt-2)\right)}$$

$$e^{\alpha_f.\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}$$
$$=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f)}{r_0\Delta h_{f,v}}e^{-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}}-\frac{\alpha_f.(1-R_f)}{\alpha_p(1-R_p)}+\frac{1}{(1-Pt)}-\frac{1}{(1-Pt)}e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right).(1-Pt)}$$
$$+e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left[\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right).(1-Pt)-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right]}$$

$$e^{\alpha_f.\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}$$
$$=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f)}{r_0\Delta h_{f,v}}e^{-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}}-\frac{\alpha_f.(1-R_f)}{\alpha_p(1-R_p)}+\frac{1}{(1-Pt)}-\frac{1}{(1-Pt)}e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right).(1-Pt)}$$
$$+e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}.e^{-\alpha_f\Delta z_{poudre}.\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}}$$

$$\left(1+\frac{1}{(1-Pt)}\right).e^{\alpha_f.\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}$$
$$=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f)}{r_0\Delta h_{f,v}}e^{-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}}-\frac{\alpha_f.(1-R_f)}{\alpha_p(1-R_p)}+\frac{1}{(1-Pt)}+e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}.e^{-\alpha_f\Delta z_{poudre}.\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}}$$

En multipliant chaque terme par (1-Pt) :

$$\boldsymbol{(2-P_t).e^{\alpha_f.\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right)(1-Pt)}}$$
$$\boldsymbol{=\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\mathrm{E_l}.\alpha_f.(1-R_f)(1-Pt)}{r_0\Delta h_{f,v}}e^{-\frac{e_{ZR}^2}{2r_0^2}}-\frac{\alpha_f.(1-R_f)(1-Pt)}{\alpha_p(1-R_p)}+1}$$
$$\boldsymbol{+(1-Pt).e^{\alpha_f\Delta z_{poudre}\left(1-\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}\right).(1-Pt)}.e^{-\alpha_f\Delta z_{poudre}.\frac{e_{ZR}^2}{L_i^{\,2}}}} \qquad \text{V.52}$$

L'expression de e_{ZR} n'est pas simple. Toutefois, il est possible de calculer e_{ZR} par la méthode des moindres carrés *(Figure V-27)*.

Les valeurs calculées de la largeur de la zone refondue $\boldsymbol{e_{ZR}}$ sont légèrement inférieures aux valeurs mesurées *(Figure V-27)*. Cet écart peut s'expliquer par deux phénomènes. D'une part, il peut être lié à la limite du modèle évolutif qui considère que la consolidation de la calotte est issue de l'interaction jusqu'à $t=t_i$. D'autre part, l'écart peut être expliqué par les phénomènes physiques non pris en compte par ce modèle comme la conduction au sein du substrat ou les échanges de matières lié aux particules solides du LDP ou éjectas liquides. Aux faibles énergies linéiques, lorsque la fusion n'a pas atteint l'interface ($\boldsymbol{e_i}$ =0) ou alors lorsqu'elle ne se propage que faiblement dans le substrat ($\boldsymbol{e_i}$ petit et $\boldsymbol{L\approx L_i}$ – configuration en *Figure V-28*), la largeur à l'interface est de l'ordre de grandeur des largeurs de la zone refondue $\boldsymbol{e_{ZR}}$ et du cordon $\boldsymbol{e_{app}}$: $\boldsymbol{e_{ZR}\approx e_{app}}$.

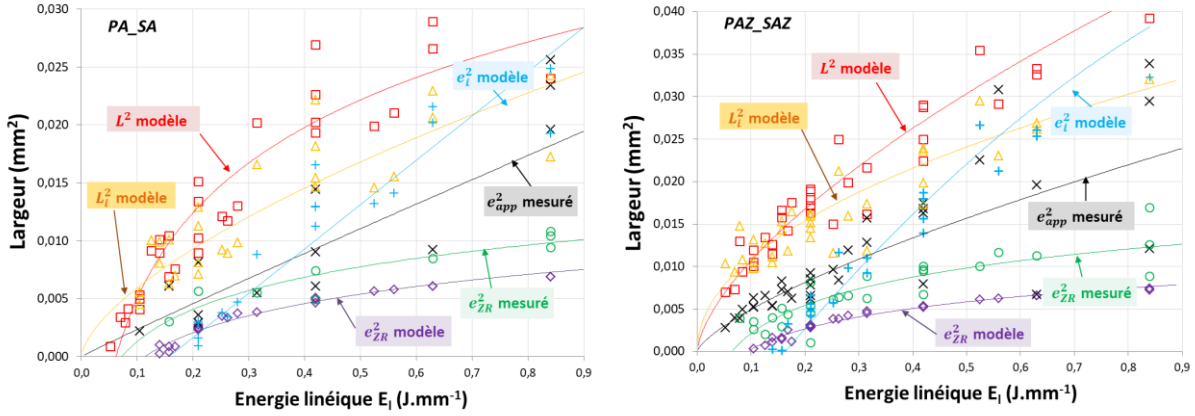


Figure V-27 : Comparaison entre les valeurs calculées et mesurées des différentes largeurs mises en jeu pour les systèmes {PA_SA} et {PAZ_SAZ}

Aux fortes énergies linéiques, on a $\boldsymbol{L > L_i \geq e_i > e_{app} > e_{ZR}}$. La largeur d'interaction $\boldsymbol{e_i}$ à l'interface devient supérieure à la largeur du cordon $\boldsymbol{e_{app}}$ tout en restant inférieure à $\boldsymbol{L_i}$ la largeur théorique consolidée lorsque l'interaction laser-matière atteint l'interface lorsque $= \boldsymbol{t_i}$. Cet écart est là encore représentatif d'un phénomène expérimental additionnel comme l'éjection de particules ou un retrait latéral provoquant une zone dénudée (configuration en *Figure V-26*).

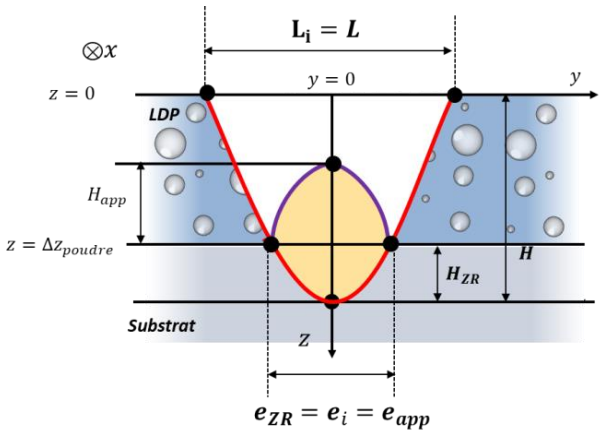


Figure V-28 : Géométrie d'interaction laser-matière à faible énergie linéique ($e_i \approx e_{ZR} \approx e_{app}$. et $L \approx L_i$)

Si $\boldsymbol{y = 0}$, on a les égalités suivantes *(Figure V-26)* :

$$\begin{cases} \boldsymbol{z_{ZR}(0) = H_{ZR} + \Delta z_{poudre}} \\ \boldsymbol{z_{app}(0) = Pt.\Delta z_{poudre}} \\ \boldsymbol{z_i(0) = \Delta z_{poudre}} \\ \boldsymbol{z_p(0) = H} \end{cases}$$

Si on vient insérer l'*équation (V.27)* dans l'équation *(V.51)*, on obtient :

$$H_{ZR} = \frac{1}{\alpha_f} ln\left[\left(e^{\alpha_f(1-Pt).H} - e^{\alpha_f.(1-Pt).\Delta z_{poudre}}\right).\frac{1}{(1-P_t)} + e^{\alpha_f.(1-Pt)\Delta z_{poudre}}\right] + Pt.\Delta z_{poudre} - \Delta z_{poudre}$$

$$H_{ZR} = \frac{1}{\alpha_f} ln\left[\frac{e^{\alpha_f(1-Pt).H} - e^{\alpha_f.(1-Pt).\Delta z_{poudre}} + (1-Pt)e^{\alpha_f.(1-Pt)\Delta z_{poudre}}}{(1-P_t)}\right] + \Delta z_{poudre}(Pt-1)$$

$$H_{ZR} = \frac{1}{\alpha_f} ln\left[\frac{e^{\alpha_f(1-Pt).H} - Pt\, e^{\alpha_f.(1-Pt)\Delta z_{poudre}})}{(1-P_t)}\right] - \Delta z_{poudre}(1-Pt) \qquad \text{V.53}$$

La valeur de H_{ZR} est une fonction de H la profondeur du bain dans le lit de poudre, de l'épaisseur de poudre, de la porosité du LDP et du coefficient d'absorption à l'état fondu. L'application numérique montre une bonne corrélation entre le modèle et les mesures. Notons toutefois des écarts à faibles énergies linéiques. Le modèle évolutif prenant en compte la conservation de la matière, il n'est pas surprenant d'observer des différences entre les résultats du modèle et la réalité. Il y a des éjections de matière lors de la fusion de l'ensemble {LDP+Substrat}, ce qui peut modifier l'interaction laser-matière et la refusion du substrat *(Chapitre VI)*.
Cette équation montre également qu'il est possible de calculer α_f à partir des profondeurs de bains issus du compact de poudre et de l'ensemble {LDP+Substrat} et ainsi de s'abstenir des mesures radiatives.

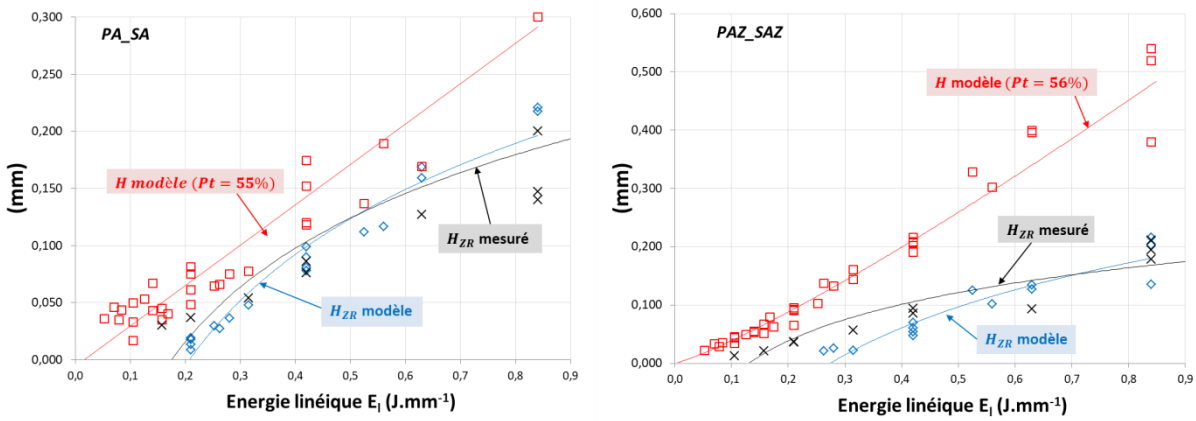


Figure V-29 : Comparaison entre les valeurs calculées et mesurées de la profondeur refondue H_{ZR} du substrat pour les systèmes {PA_SA} et {PAZ_SAZ}

On ne peut pas avec ce modèle calculer précisément H_{app}, S_{app} et e_{app} à $t \to +\infty$. C'est ce qui pourrait également expliquer les quelques écarts observés entre le modèle évolutif et les points expérimentaux. Ces écarts restent toutefois très faibles, ce qui permet de négliger l'évolution de H_{app}, S_{app} *et* e_{app}après la fusion de l'interface. Il sera donc considéré ici que $\boldsymbol{H_{app,i} = H_{app}}$, $\boldsymbol{S_{app,i} = S_{app}}$ ***et*** $\boldsymbol{e_{app,i} = e_{app}}$. Les différences entre les valeurs mesurées (donc à l'infini) et les valeurs issues du modèle sont estimées comme issues des phénomènes d'échanges de matière et seront abordées en détail au *Chapitre VI*. Concernant les grandeurs de la zone refondue H_{ZR} *et* e_{ZR}, nous avons vu que la valeur de H_{ZR} était très bien approximée par le modèle évolutif. Les valeurs obtenues pour e_{ZR} s'éloignent quant à elles des valeurs mesurées expérimentalement, ce qui montre bien la complexité de l'interaction laser-matière en largeur.

V.2.3.5 Forme de la zone refondue

Si la zone refondue est assimilée à une parabole, comme dans le cas du milieu unique de type granulaire, elle a pour apex le point $(0, \mathrm{H_{ZR}} + \Delta z_{poudre})$. L'équation de la forme de la zone refondue s'écrit alors :

$$\boldsymbol{z_{ZR}(y) = ay^2 + b}$$

avec $\mathrm{b=H_{ZR}} + \Delta z_{poudre}$

De plus, elle passe par le point $(\frac{e_{ZR}}{2}, \Delta z_{poudre})$, soit :

$$\Delta z_{poudre} = a(e_{ZR}/2)^2 + \mathrm{H_{ZR}} + \Delta z_{poudre} \quad i.e. \quad a = \frac{-4\mathrm{H_{ZR}}}{{e_{ZR}}^2}$$

La zone refondue dans le substrat s'exprime donc :

$$\boldsymbol{z_{ZR}(y) = \frac{-4\mathrm{H_{ZR}}}{{e_{ZR}}^2} y^2 + \mathrm{H_{ZR}} + \Delta z_{poudre}} \qquad \text{V.54}$$

La morphologie du cordon de fusion est donc conditionnée par les coefficients d'absorption, de réflexion et la porosité du lit de poudre en plus des paramètres du procédé (épaisseur de poudre, diamètre laser, P et V). La fusion de la partie émergente du bain, le cordon, est principalement le fruit de l'interaction du laser avec le LDP par $z_p(z < \Delta z_{poudre})$ et si la fusion atteint l'interface, par $z_i(z = \Delta z_{poudre})$. La forme de la zone refondue résulte de la combinaison de l'interaction dans le substrat après passage de l'interface définie par $z_{ZR}(z > \Delta z_{poudre})$.

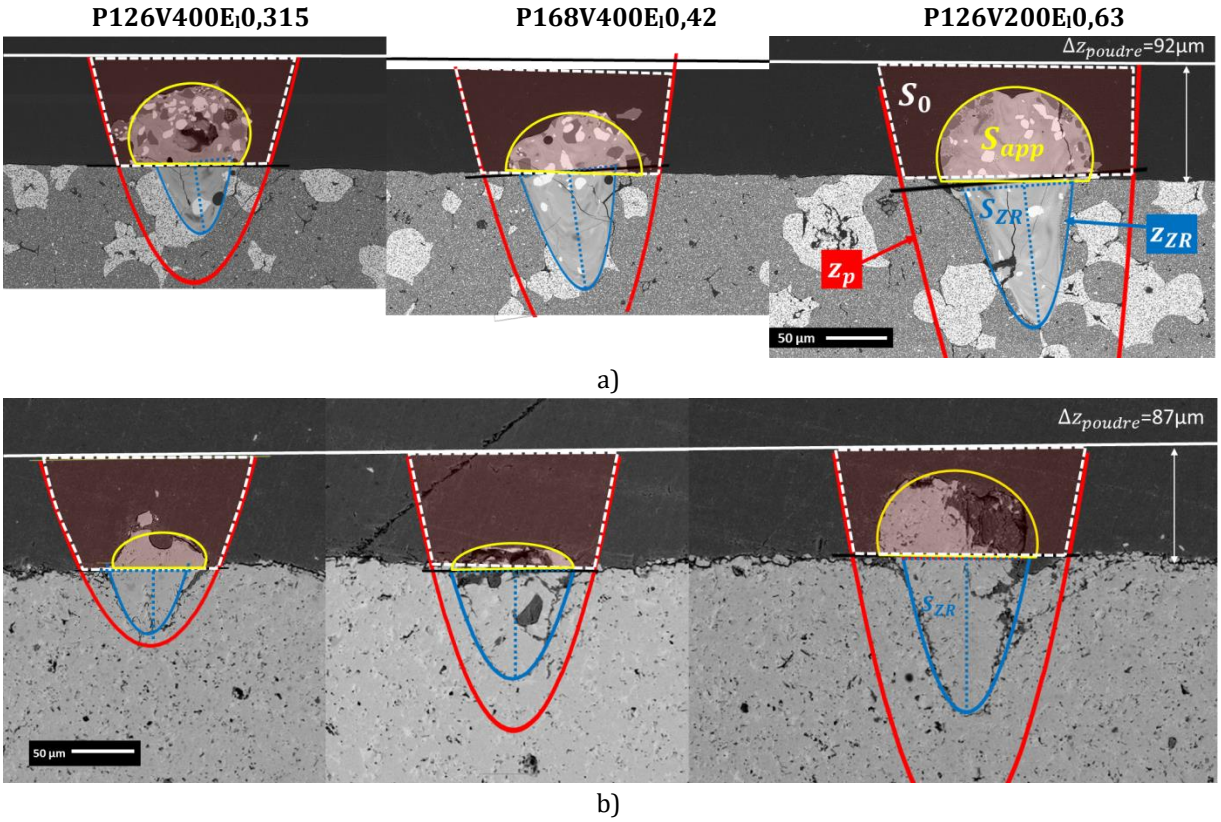


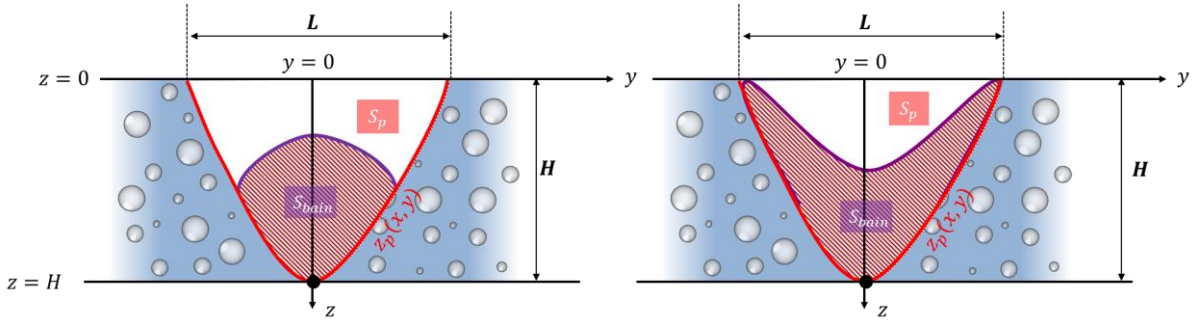
Figure V-30 : Comparaison à différentes énergies linéiques des formes réelles de bains, de la section apparente mesurée (en jaune) et des sections paraboliques issues de l'interaction Laser-LDP (z_p en rouge) et laser-substrat (z_{ZR} en bleu) calculées pour a) PAZ_SAZ et b) PA_SA

V.3 Section des bains

V.3.1 Interaction et consolidation dans le milieu granulaire (lit ou compact de poudre)

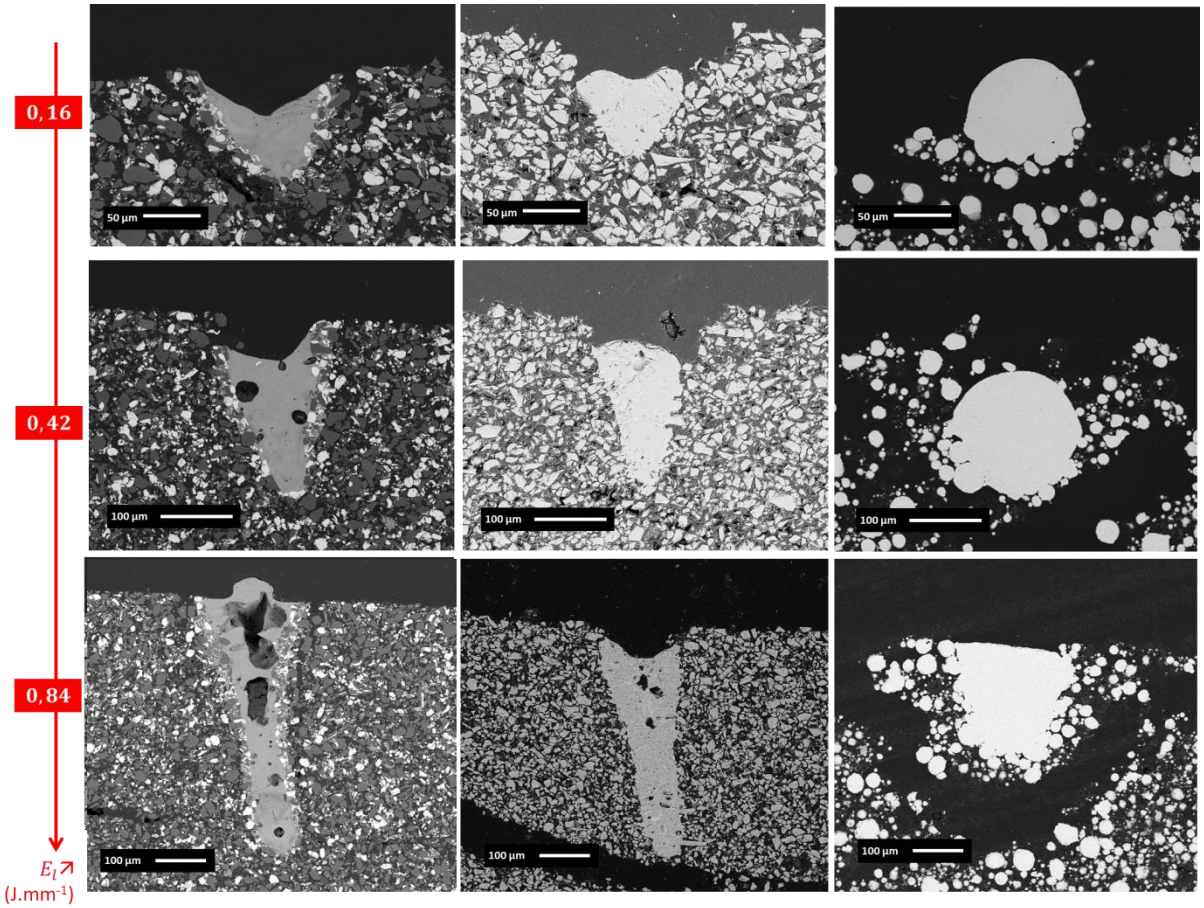
La forme géométrique de la zone d'interaction du laser avec le lit de poudre est une parabole $z_p(y)$. Le bain liquide formé par consolidation du milieu granulaire présente quant à lui une morphologie de type segment circulaire *(Chapitre VI)* qui dépend des propriétés intrinsèques du matériau (viscosité, tensions de surface liquide-vapeur et solide-liquide, conductivité…). Pour les métaux (HA188), les bains tendent à se sphéroïdiser dans le compact de poudre *(Figure V-31.a et Figure V-32.c)*. Pour l'alumine et l'alumine-

zircone de composition eutectique, les bains sont plutôt en forme de « V », c'est-à-dire en forme de triangle *(Figure V-31.b et Figure V-32.a-b)*. Cela tient également à la compacité du compact et à sa résistance mécanique. Pour un même matériau, l'effet des paramètres procédés P et V (donc E_l) influe sur la forme du bain : lorsque l'énergie linéique augmente (*i.e.* les gradients au refroidissement et T_{bain} augmentent), la forme sphéroïdale du HA188 tend vers une forme parabolique. On note de plus qu'à forte énergie linéique ($E_l = 0{,}84\ J.mm^{-1}$), l'alumine-zircone atteint l'ébullition avant l'alumine (visible par le gonflement vertical du bain et le piégeage de pores dans le bain) et l'alumine avant le métal *(Figure V-32)*. Un bain formé au sein du lit ou compact de poudre se caractérise par les grandeurs $(\boldsymbol{H}, \boldsymbol{L}, \boldsymbol{z_p(y)}, \boldsymbol{S_p}\ \boldsymbol{et}\ \boldsymbol{S_{bain}})$.



a) b)

Figure V-31 : Morphologie des bains de fusion après consolidation à partir d'un LDP ou compact a) sphéroïdisation b) forme en « V »



a) b) c)

Figure V-32 : Bains de fusion au sein des compacts de poudre pour différentes énergies linéiques : a) Al_2O_3-ZrO_2 b) Al_2O_3 c) HA188

Puisque la forme de la zone fondue $z_p(y)$ dans le lit de poudre est une parabole *(équation V.30)*, l'aire de la zone d'interaction S_p correspondante vaut :

$$S_p = \frac{2}{3}HL \qquad \text{V.55}$$

La consolidation du milieu granulaire se faisant sans échange de matière ni évaporation (hypothèse de la conservation de la masse), alors l'aire du bain consolidé S_{bain} s'écrit:

$$S_{bain} = S_p(1 - Pt) = \frac{2}{3}H.L(1 - Pt)$$

S_{bain} est calculée via les relations *(V.11)* et *(V.27)*. La comparaison des résultats expérimentaux avec les calculs du modèle indiquent une bonne corrélation pour chaque matériau *(Figure V-33)*.

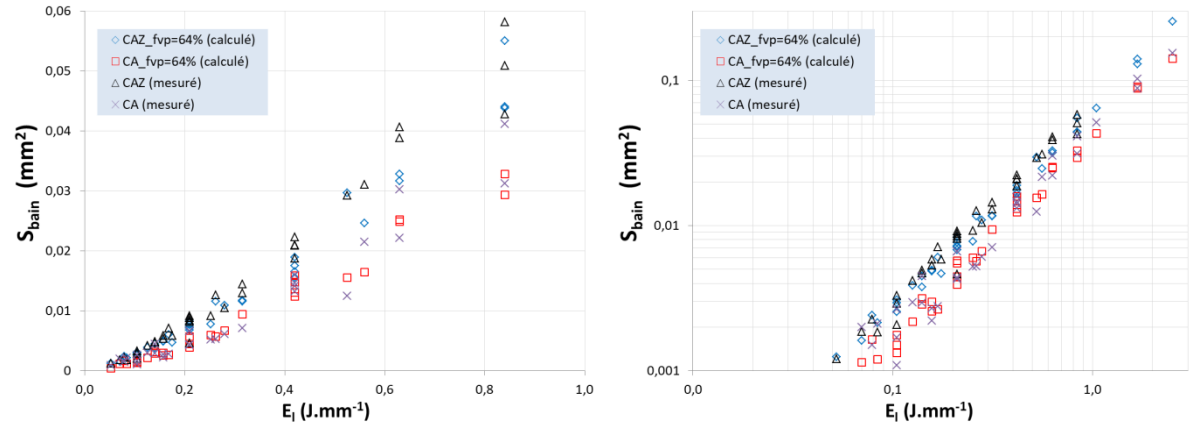


Figure V-33 : Comparaison de la surface des bains calculée par le modèle et mesurée sur les compacts de poudre

V.3.2 Interaction à l'interface

Lorsque la fusion atteint l'interface, $\boldsymbol{H = \Delta z_{poudre}}$ *(Figure V-34)*, la largeur d'interaction L_i correspondante est retrouvée à partir de l'équation de la forme de la zone fondue pour $z_p(0) = H = \Delta z_{poudre}$ et $z_p(\frac{L_i}{2}) = z_i(\frac{L_i}{2}) = 0$ comme vu en *équation (V.39)* :

$$z_i(y) = -\Delta z_{poudre}\frac{4}{L_i^2}y^2 + \Delta z_{poudre}$$

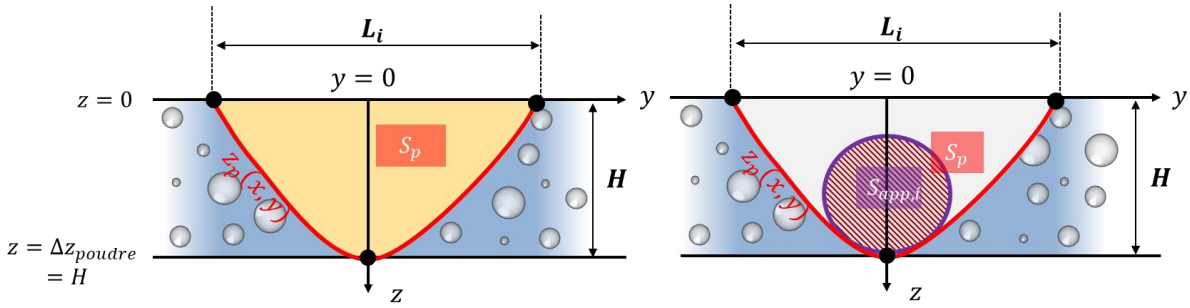


Figure V-34 : a) Section d'interaction S_p au sein du milieu granulaire pour H= Δz_{poudre} b) Section résultante consolidée $S_{app,i}$ (balling)

La section consolidée au sein du lit de poudre S_{bain} est égale à la section apparente du cordon de fusion $S_{app,i}$, c'est-à-dire à l'aire de la parabole consolidée :

$$S_{app,i} = \frac{2}{3}\Delta z_{poudre}L_i(1 - Pt) \qquad \text{V.56}$$

On peut aussi exprimer la section apparente du cordon en combinant les équations *(V.56)* et *(V.43)* :

$$S_{app,i} = \frac{2\sqrt{2}}{3}\Delta z_{poudre}.r_0.(1-Pt).\left[\ln\left(\frac{\alpha_p(1-R_p)e^{\alpha_f(1-Pt)\Delta z_{poudre}}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}+1-\frac{\alpha_p(1-R_p)}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\right)\right]^{1/2}$$

L'application numérique *(Figure V-35)* montre que la valeur issue du modèle $S_{app,i}$ et la valeur mesurée expérimentalement S_{app} sont assez différentes, malgré que les valeurs mesurées sont très dispersées. L'écart le plus marqué aux faibles énergies linéiques pour {PA_SA} où $S_{app,i} > S_{app}$ est sans doute lié aux éjections de matière observées lors de l'interaction laser-matière *(Chapitre VI)*.

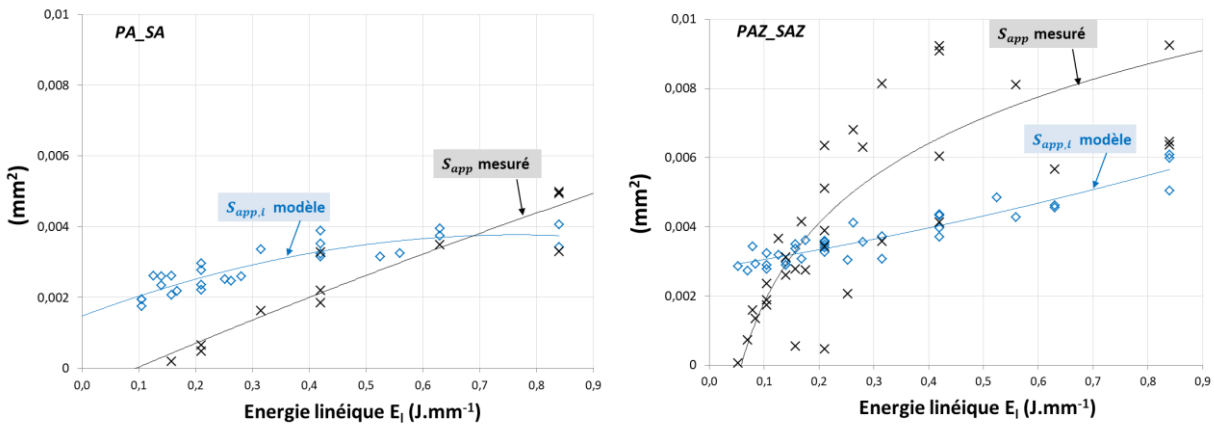


Figure V-35 : Comparaison de la section apparente calculée par le modèle et mesurée sur les ensembles {LDP+substrat}

Si on considère que cette section est assimilable à la surface d'un disque de diamètre $H_{app,i}$ alors on peut exprimer la hauteur du bain en forme de *balling* exprimé lorsque $E_l = E_{l,i}$:

$$S_{app,i} = \frac{\pi}{4}.H_{app,i}^2$$

$$H_{app,i}^2 = \frac{8}{3\pi}.\Delta z_{poudre}.L_i(1-Pt)$$

$$H_{app,i}^2 = \frac{8\sqrt{2}}{3\pi}.\Delta z_{poudre}.r_0.(1-Pt).\left[\ln\left(\frac{\alpha_p(1-R_p)e^{\alpha_f(1-Pt)\Delta z_{poudre}}}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}+1-\frac{\alpha_p(1-R_p)}{\alpha_f(1-R_f)(1-Pt)}\right)\right]^{1/2}$$

Il s'agit du cas limite avec $H_{app,i} < \Delta z_{poudre}$.

V.3.3 Interaction dans le substrat

Les formes des zones fondues dans le milieu granulaire *(Figure V-32)* ou dans le substrat *(Figure V-19)* même après la traversée du LDP *(Figure V-30)* sont bien approximées par des paraboles. Cependant la morphologie du cordon qui provient de la fusion du LDP et qui repose sur le substrat dépend fortement de la température du bain, de sa viscosité et des tensions de surface liquide/vapeur et solide/liquide. Ces grandeurs engendrent un étalement plus ou moins important de la calotte liquide sur le substrat. Il est alors difficile de prévoir la morphologie de cette calotte par ce modèle analytique. On peut tout de même observer un aplatissement marqué de la calotte avec l'accroissement de l'énergie linéique *(Figure V-36)*. On note que les sections observées ne proviennent que d'une coupe et que la grandeur H_{app} est susceptible de fluctuer le long du cordon. On prend alors en compte pour H_{app} sa valeur moyenne et la valeur maximale H_{app}^{max}.

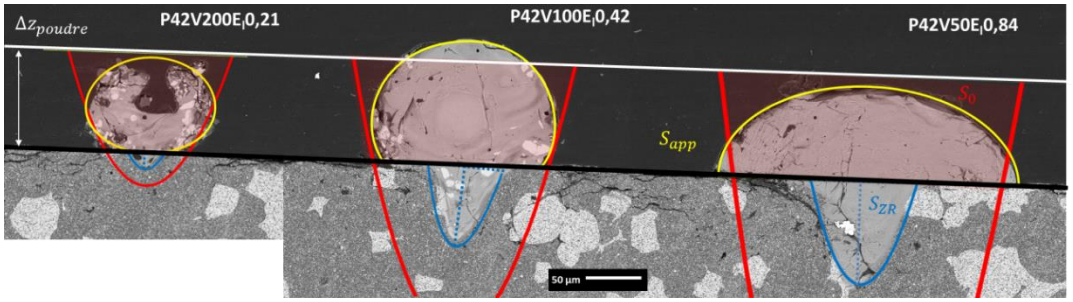


Figure V-36 : Comparaison des formes réelles de bain et des sections paraboliques issues de l'interaction Laser-LDP (ligne rouge) et laser-substrat (ligne bleu) calculées pour le système {PAZ_SAZ} à différentes énergies linéiques et pour Δz_{poudre}=92µm.

La formation de la calotte de section S_{app} (de dimensions H_{app} et e_{app}) résulte en théorie de la fermeture de la porosité au sein du lit de poudre à partir de la section du lit de poudre irradiée S_0 qui est, elle même définie par la section de poudre totalement irradiée S_p tronquée à $z = \Delta z_{poudre}$ *(Figure V-37)*.

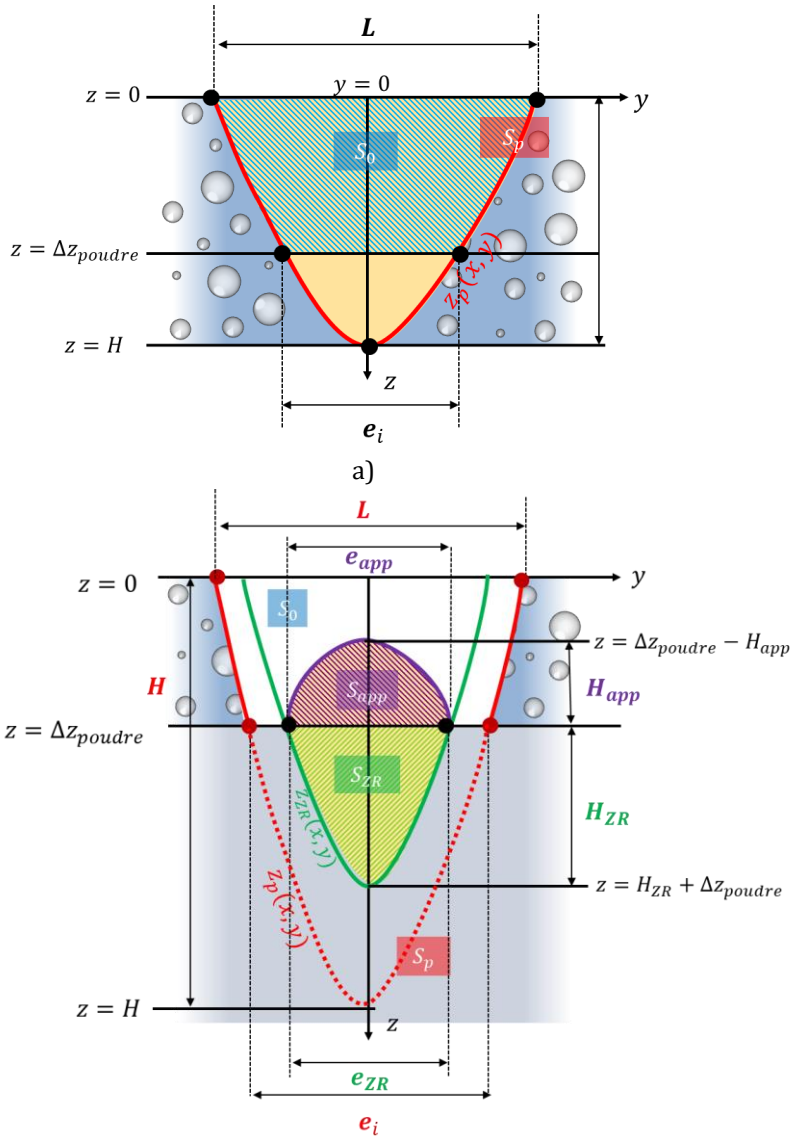


Figure V-37 : Surfaces et grandeurs d'interaction laser-matière a) au sein du lit de poudre b) au sein du système {LDP+Substrat}

La section S_0 est donc limitée par L à $z = 0$ et e_i à z= Δz_{poudre}. Connaissant S_0 à partir de S_p tronquée, il est alors possible de remonter à la section fondue S_{app} au sein du lit de poudre d'épaisseur Δz_{poudre}. La

section d'interaction au sein du lit de poudre S_0 avant consolidation par fusion s'écrit différemment selon que $H < \Delta z_{poudre}$ ou $H > \Delta z_{poudre}$:

$$S_0 = \begin{cases} S_p & si\ H < \Delta z_{poudre} \\ S_p - S_p(z < \Delta z_{poudre}) & si\ H > \Delta z_{poudre} \end{cases}$$

$$\boldsymbol{S_0 = \frac{2}{3}HL - \frac{2}{3}(H - \Delta z_{poudre})e_i = \frac{2}{3}HL - \frac{2}{3}e_iH + \frac{2}{3}(e_i\Delta z_{poudre})}$$

$$\boldsymbol{S_0 = \frac{2}{3}H(L - e_i) + \frac{2}{3}\Delta z_{poudre}e_i} \qquad \text{V.57}$$

La *Figure V-38* représente la variation de la section S_0 calculée à partir de l'*équation (V.57)* en fonction de l'énergie linéique pour les systèmes {PAZ_SAZ} et {PA_SA}.

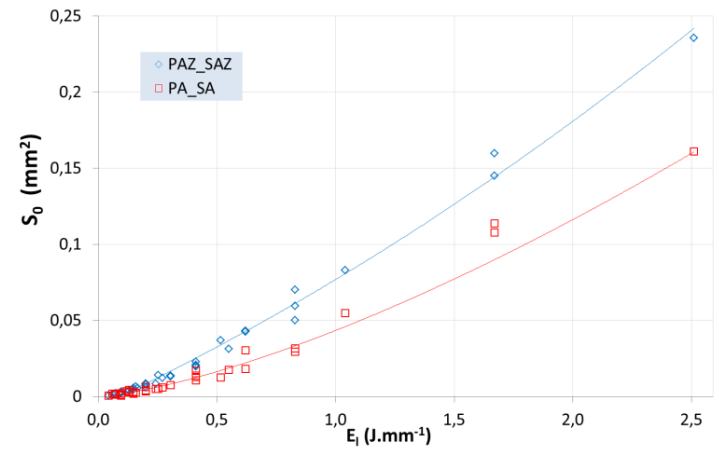


Figure V-38 : Variation de la section d'interaction au sein du lit de poudre S_0 en fonction de l'énergie linéique pour les systèmes {PAZ_SAZ} et {PA_SA}

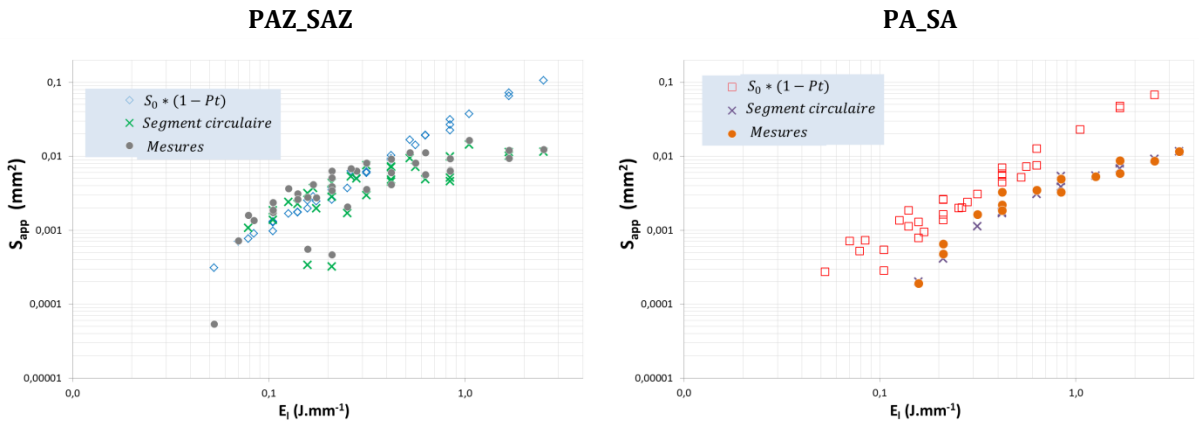
Si la consolidation par fusion du milieu granulaire se fait avec conservation de la matière, on a alors :

$$\boldsymbol{S_{app} = S_0(1 - Pt) = \frac{2}{3}\left[H(L - e_i) + \Delta z_{poudre}e_i\right](1 - Pt)}$$

Donc tout comme S_0, la section S_{app} varie linéairement avec Δz_{poudre}. Or, d'après (Marcos, 2018), cette section S_{app} s'apparente essentiellement dans la fenêtre de construction à la section d'un segment circulaire, soit :

$$\boldsymbol{S_{app} = \frac{3\left(\frac{H_{app}}{e_{app}}\right)^2 + 4}{6}\,\mathrm{H_{app}.e_{app}}}$$

Les résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle du segment circulaire sur tout le domaine d'énergie linéique car ce dernier repose sur les mesures de H_{app} *et* e_{app} . Le modèle analytique présente une bonne correspondance avec les mesures expérimentales pour les énergies linéiques intermédiaires *(Figure V-39.a-b)*. Cependant aux fortes et faibles énergies linéiques, $S_{app} < S_0(1 - Pt)$. La conservation de la matière n'est donc pas applicable sur tout le domaine d'énergies linéiques.



a) b)

Figure V-39 : Comparaison de la section moyenne du cordon S_{app} mesurée et calculée suivant le modèle du segment circulaire et l'hypothèse de la conservation de la matière définie par $S_{app} = S_0(1 - Pt)$ en fonction de l'énergie linéique pour a) {PAZ_SAZ} et b) {PA_SA}

La diminution de la section apparente du cordon semble être liée d'une part au *balling* (faibles énergies linéiques) qui provoque de fortes fluctuations le long du cordon ; et d'autre part au *keyhole* (fortes énergies linéiques) qui induit un aplatissement important du segment circulaire *(Figure V-39)*.

La conservation de la matière n'est donc pas applicable sur tout le domaine d'énergies linéiques. On note que la confrontation entre le modèle et les résultats expérimentaux peut aussi permettre l'identification des paramètres du procédé qui induisent des phénomènes perturbateurs comme l'éjection de matière *(Chapitre VI)*. Cela semble être le cas pour l'alumine-zircone à P126V800 *(Figure V-40)*, alors que la zone d'interaction laser-matière S_p semble indiquer une configuration de *balling* ($H = \Delta z_{poudre}$). La morphologie du cordon est celle d'un bain avec une zone refondue sans calotte apparente. Il semblerait que de la poudre solide ait été éjectée au passage du laser, menant à une dénudation de part et d'autre du cordon et à une consolidation très faible voire nulle de S_{app}. Nous aborderons ce point au *Chapitre VI*.

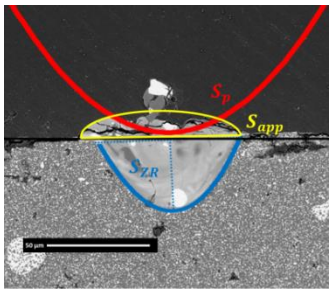
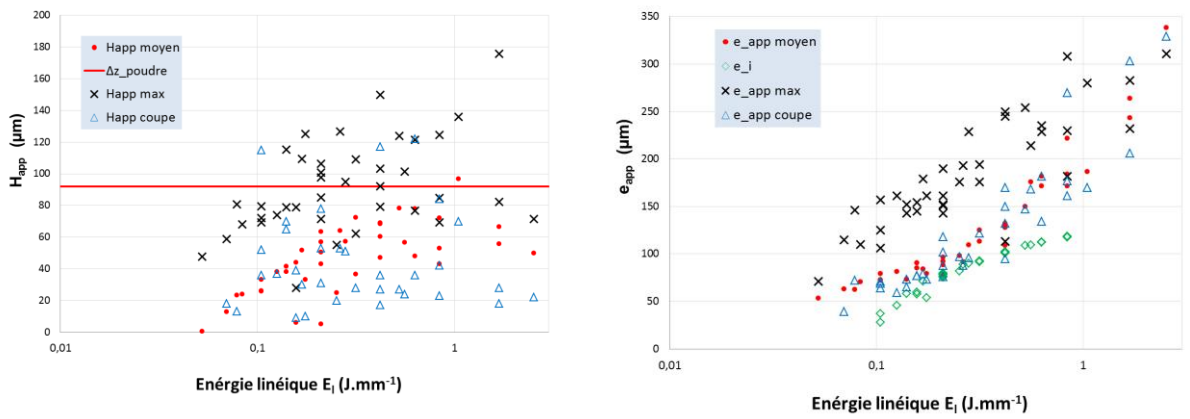


Figure V-40 : Comparaison des sections mesurée et calculées pour {PAZ_SAZ} dans les conditions P126V800El0,16

Etant donné la conservation de la matière et le retrait de consolidation par fusion, la calotte du cordon devrait être contenue dans le domaine S_0 ($e_{app} = e_i$ *et* $H_{app} < \Delta z_{poudre}$). Or, en plus d'observer une différence entre S_{app} et $S_0(1 - Pt)$, les configurations instables peuvent induire soit $e_{app} > e_i$, soit encore $H_{app} > \Delta z_{poudre}$ *(Figure V-41)*. Le modèle géométrique des retraits présenté au *Chapitre VI* permettra la différenciation de ces différentes configurations de cordons.

Enfin, la section de la zone refondue S_{ZR} dans le substrat s'apparente à une section parabolique et s'exprime suivant la relation suivante :

$$\boldsymbol{S_{ZR} = \frac{2}{3} H_{ZR} . e_{ZR}}$$



a) b)

Figure V-41 : Variation de H_{app} et de e_{app} (valeurs moyenne et maximale mesurées par profilométrie et suivant la coupe transverse mesurée au MEB) en fonction de l'énergie linéique pour {PAZ_SAZ}

La concordance entre les valeurs mesurées et celles calculées par le modèle *(Figure V-42)* est bonne dans le domaine hors keyhole ($E_l < 1\,J.mm^{-1}$).

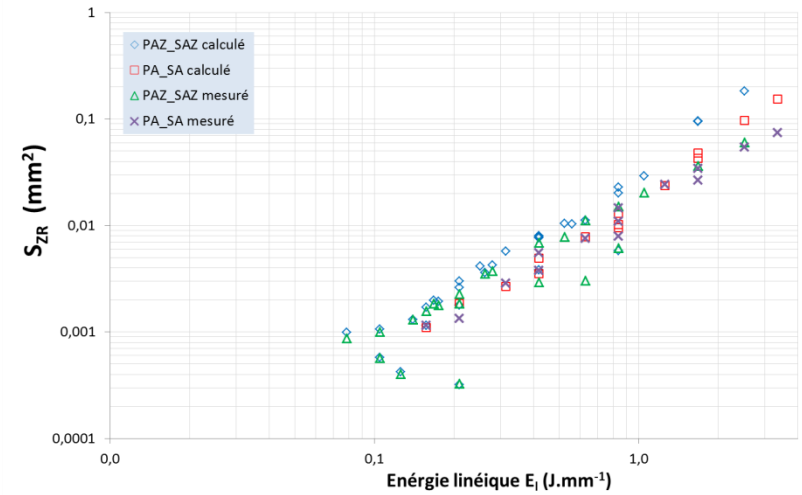


Figure V-42 : Comparaison des sections de la zone refondue S_{ZR} calculée et mesurée en fonction de l'énergie linéique pour les systèmes {PAZ_SAZ} et {PA_SA}

V.4 Comparaison des modèles et résultats

Le *modèle de type SLA* permet un simple découpage en deux domaines notés I et II à faible et moyenne énergies linéiques et définit des grandeurs constantes propres à chaque domaine (coefficient d'absorption, énergies linéiques minimales, etc.). Il introduit notamment un diamètre d'interaction $\Phi_{int} \geq \Phi_l$, rendant compte de la diffusion du rayonnement incident dans un milieu granulaire. Par l'intégration de mesures optiques dépendantes de l'énergie linéique, le *modèle évolutif* permet une description de l'interaction laser-matière sur tout le domaine d'énergie linéique (hors keyhole). Dans ce cas, la distinction de l'interaction sur un bain liquide ou un milieu solide est possible tout comme l'interaction dans un milieu dense ou granulaire. Notons que le coefficient d'absorption calculé pour un milieu solide semi-transparent devrait plutôt s'exprimer comme un coefficient d'extinction qui prendrait en compte à la fois la diffusion et l'absorption. Ainsi, un coefficient d'absorption supérieur indique une meilleure absorption et/ou une diffusion supérieure.

Suite à l'application du modèle SLA sur l'ensemble des échantillons pour un milieu unique, nous retiendrons les ordres de grandeurs qui différencient les domaines I et II *(Tableau V-7)*. Le *domaine II* à morphologie triangulaire et solidification lente se caractérise par un coefficient d'absorption plus faible que le domaine I ($\alpha_{abs}^{I} \geq \alpha_{abs}^{II}$), un diamètre d'interaction supérieur ($\Phi_{int}^{I} \leq \Phi_{int}^{II}$), ainsi que des énergies linéiques minimales requises pour la fusion du triangle plus élevées que pour la fusion de l'ellipse ($E_{l\,min}^{I} \leq E_{l\,min}^{II}$ *et* $E_{l\,min}^{I\,*} \leq E_{l\,min}^{II\,*}$). Dans le *domaine I*, l'énergie délivrée par le faisceau laser est plus absorbée et/ou diffusée et se concentre sur un diamètre plus petit *(Figure V-43)*.

Tableau V-7 : Caractéristiques des domaines identifiés pour le modèle de type SLA

	Domaine I	**Domaine II**
Morphologie	Ellipse	Triangle
Domaine de consolidation	Faible énergie linéique Solidification et consolidation rapide: (forte V, faible P)	Forte énergie linéique Solidification et consolidation lente: (faible V, forte P)
Coefficient d'absorption (mm^{-1})	$10 \leq \alpha_{abs}^{I} \leq 25$	$2 \leq \alpha_{abs}^{II} \leq 5$
Diamètre d'interaction (µm)	$\Phi_l \leq \Phi_{int}^{I} \leq 150$	$150 < \Phi_{int}^{II} \leq 250$
Energie linéique minimale en profondeur (J.mm-1)	$E_{l\,min}^{I} \leq 0{,}07$	$0{,}12 \leq E_{l\,min}^{II} \leq 0{,}23$
Energie linéique minimale en largeur (J.mm-1)	$E_{l\,min}^{I\,*} \leq 0{,}05$	$0{,}05 \leq E_{l\,min}^{II\,*} \leq 0{,}20$

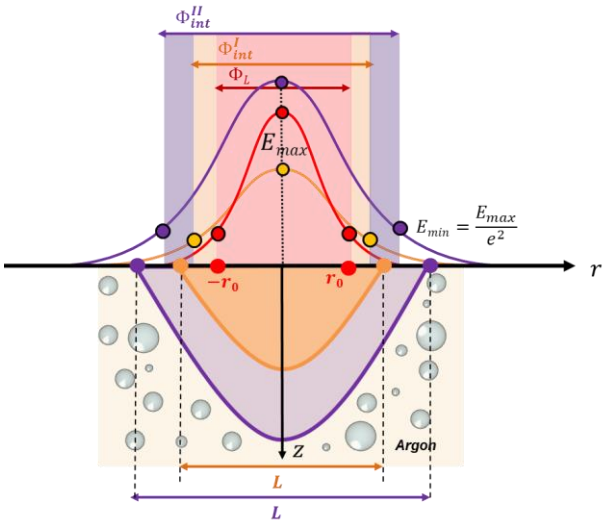


Figure V-43 : Interaction laser-matière suivant la variation du diamètre d'interaction lorsque l'énergie linéique augmente au passage du domaine I au domaine II. La distribution d'énergie en rouge est directement émise par le laser.

Par comparaison des deux modèles, on remarque que le coefficient d'absorption du domaine I aux faibles énergies linéiques α_{abs}^{I} présente un domaine de variation beaucoup moins large que le coefficient d'absorption solide α_{abs} du modèle évolutif. Celui du domaine II aux moyennes énergies linéiques α_{abs}^{II} est plus faible d'un peu plus d'une décade de celui à l'état fondu α_f . Quant aux énergies linéiques minimales, il est possible de comparer les valeurs du modèle évolutif avec celles du domaine I (représentant l'amorce de la fusion) : les bornes maximales semblent être plus faibles pour le modèle évolutif et plus précis pour les bornes minimales. Cette comparaison peut laisser envisager dans le domaine II l'atteinte de températures supérieures ou alors une interaction laser-matière préférentielle sur le liquide (V faible) ; tandis que dans le domaine I (V élevée) l'interaction laser-matière induit des températures plus faibles ou elle serait majoritairement concentrée sur la partie solide (lit de poudre). Ceci rejoint la discussion menée au *Chapitre IV*.

Tableau V-8 : Valeurs limites des coefficients calculés à travers le modèle évolutif

Coefficient d'absorption solide (mm^{-1})	$10 \leq \alpha_{abs} \leq 10^9$
Coefficient d'absorption liquide (mm^{-1})	$0 \leq \alpha_l \leq 100$
Energie linéique minimale en profondeur (J.mm^{-1})	$0{,}02 \leq E_{l\,min} \leq 0{,}14$
Energie linéique minimale en largeur (J.mm^{-1})	$0{,}02 \leq E_{l\,min}^{*} \leq 0{,}10$

Chacun des modèles permet d'identifier les variations des grandeurs optiques et énergétiques suivant la nature des échantillons (liquide ou solide, dense ou granulaire, absorbante ou semi-transparente) ; la compacité, la taille des particules ou encore la nature et la teneur en absorbant ainsi que l'atmosphère de travail.

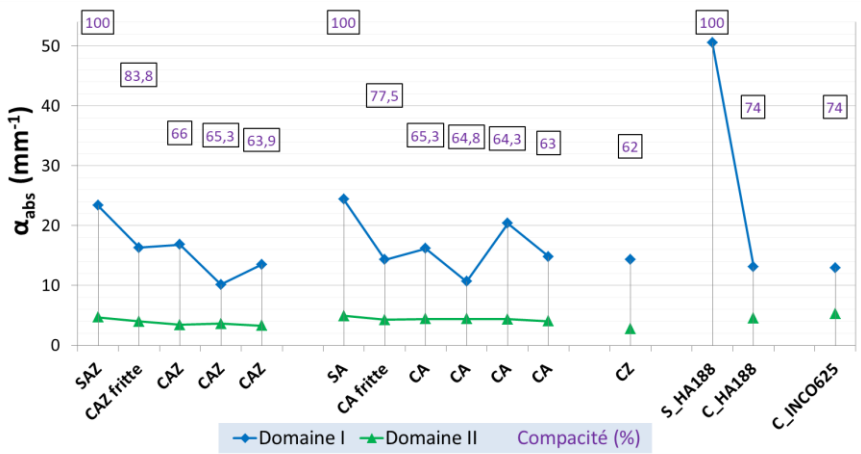
V.4.1 Nature absorbante des matériaux et compacité

Le **modèle SLA** révèle une différence marquée pour les grandeurs identifiées entre les métaux absorbants et les céramiques semi transparentes, et pour différents taux de porosité *(Figure V-44)*. Le coefficient d'absorption du domaine I, α_{abs}^{I} semble diminuer avec le taux de porosité croissant à la fois pour les matériaux céramiques et métallique (HA188). La grandeur $E_{l\,min}^{II}$ semble diminuer également avec le taux de porosité, ce qui indique que l'interaction volumique s'initie plus tôt (à plus faible énergie linéique) pour les milieux très poreux. La porosité induit une plus grande profondeur d'interaction, ce qui n'est pas sans lien avec l'augmentation du diamètre d'interaction Φ_{int}^{I}. Ces observations sont en accord avec la littérature *(§IV.1.3)*.
Dans le domaine II, le coefficient d'absorption α_{abs}^{II} varie peu entre les différents systèmes (céramiques comme métalliques). Le diamètre d'interaction Φ_{int}^{II} semble augmenter aussi avec le taux de porosité croissant. Quel que soit le domaine, on note que Φ_{int} semble supérieur pour l'alumine-zircone par rapport aux céramiques monophasées (alumine ou zircone).

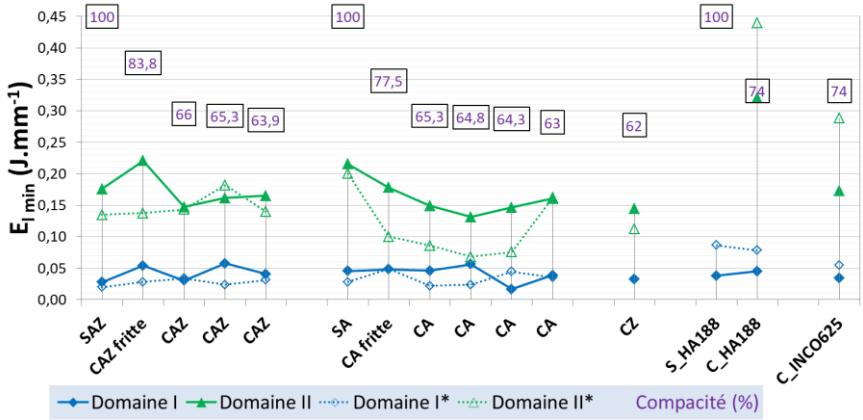
L'énergie de début de fusion en largeur du domaine I $E_{l\,min}^{I\,*}$ est plus élevée pour les matériaux métalliques car aux faibles énergies linéiques ces derniers atteignent plus tardivement l'interaction volumique. Les énergies linéiques d'amorce de la fusion en profondeur et en largeur du domaine II, $E_{l\,min}^{II}$ et $E_{l\,min}^{II\,*}$ sont de nouveau supérieures pour les métaux que pour les céramiques. En conséquence, les métaux possèdent un domaine de stabilité et donc de fabrication plus large que les matériaux céramiques. On note des valeurs particulièrement élevées de $E_{l\,min}^{II}$ et $E_{l\,min}^{II\,*}$ pour le substrat dense *SHA188.*

De plus, le coefficient d'absorption α_{abs} pour le substrat métallique dense (SHA188) est élevée et bien supérieure à celui des substrats céramiques denses (SAZ et SA). Les diamètres d'interaction sont

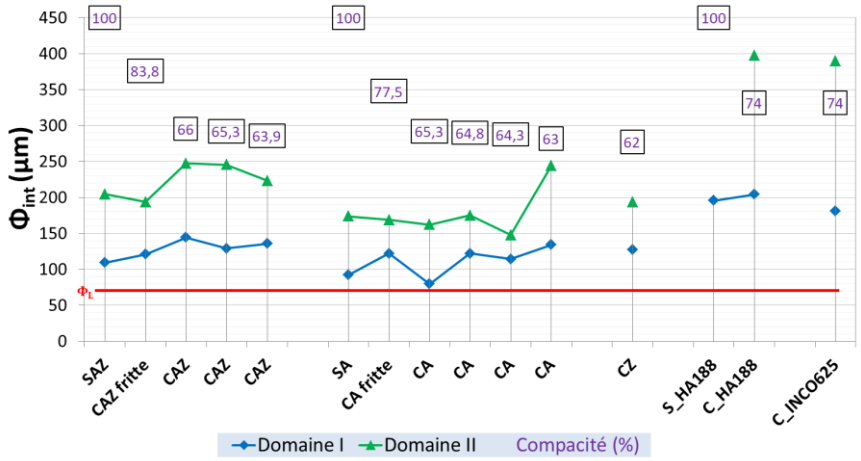
nettement supérieurs pour les métaux. On pourrait attribuer ce phénomène à un élargissement de la zone de fusion par une meilleure conduction thermique des métaux que des céramiques, ou encore à une meilleure diffusion en largeur qu'en profondeur de l'interaction laser-matière pour les matériaux opaques. En général, pour les céramiques on a $E^*_{l\,min} < E_{l\,min}$, signifiant que l'amorce de la fusion en largeur précède la fusion en profondeur. Pour les métaux, c'est l'inverse, on a $E^*_{l\,min} > E_{l\,min}$.



a)



b)



c)

Figure V-44 : Résultats du modèle de type SLA a) coefficient d'absorption b) énergies linéiques minimales c) diamètre d'interaction

Enfin, l'énergie minimale pour amorcer la fusion en profondeur $E^{I}_{l\,min}$ varie peu quelle que soit la nature de l'échantillon. On note également que dans le domaine II, α^{II}_{abs} varie peu selon qu'il s'agit de céramiques ou de métaux.

Plutôt que de séparer en deux domaines d'énergies linéiques, le **modèle évolutif** permet la description de l'interaction laser-matière en continu sur tout le domaine d'énergie linéique en dehors du domaine *keyhole*. La dispersion des points expérimentaux rend difficile la mise en évidence de l'effet de la porosité *(Figure V-45)*, d'autant plus que le substrat et les compacts de poudre ne possèdent pas exactement la même chimie et la même microstructure *(Chapitre II)*. Il semblerait néanmoins, en comparant les échantillons poreux de même composition chimique, que α_{abs} augmente avec la diminution de la porosité. De nouveau, cela rejoint les résultats issus du modèle de type SLA. Les substrats céramiques ont un coefficient d'absorption plus faible que les céramiques poreuses, ce qui est probablement lié à une diminution de la diffusion. Aussi, comme déjà observé au *§V.2*, le coefficient α_f varie de manière identique quelle que soit la nature dense ou poreux des échantillons céramiques. Une constante pour l'ensemble des échantillons est que le coefficient d'absorption augmente avec l'énergie linéique. Rappelons que le coefficient d'absorption solide se déduit de la variation de la largeur du bain en fonction de l'énergie linéique, alors que le coefficient d'absorption de l'état fondu se déduit de la variation de la profondeur du bain.

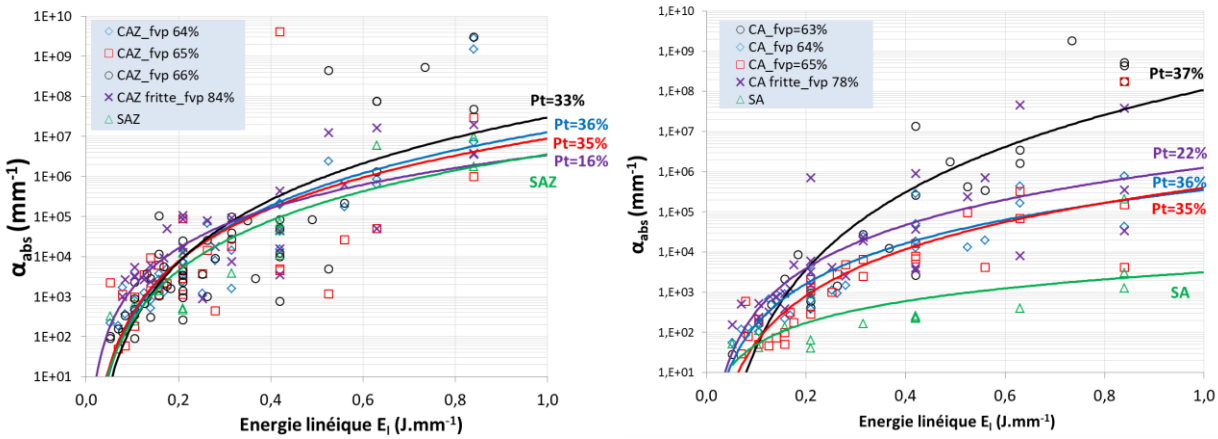
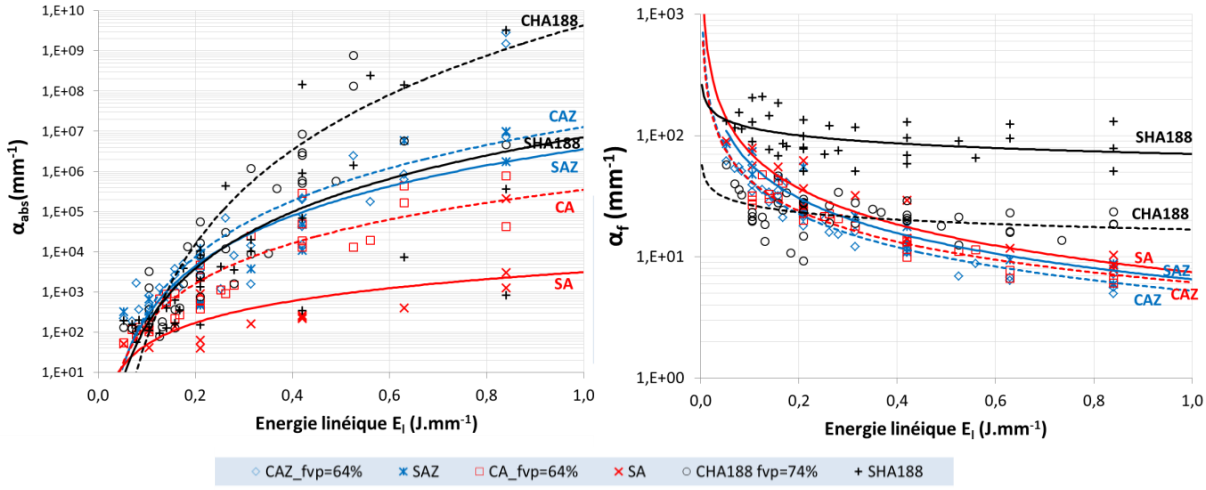


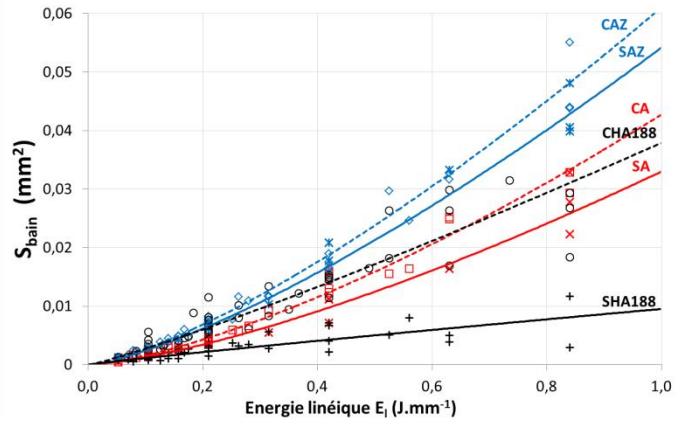
Figure V-45 : Variation du coefficient d'absorption α_{abs} en fonction de l'énergie linéique

Il est clair que les coefficients d'absorption solides α_{abs} des métaux sont nettement supérieurs à ceux des matériaux céramiques car plus absorbants à l'état solide *(Figure V-46.a)*. A l'état fondu, alors que le coefficient d'absorption α_f des céramiques décroît avec l'énergie linéique de manière à tendre vers zéro, il reste constant pour les matériaux métalliques bien que supérieur pour le substrat dense comparé au compact de poudre. Les sections transverses des bains S_{bain} sont plus larges pour les matériaux granulaires suite à une plus grande diffusion du rayonnement incident *(Figure V-46.b)*.

La comparaison au *§V.2*, des systèmes alumine et alumine-zircone montre la plus forte transparence de l'alumine, ce qui rejoint les résultats du *Chapitre VI* : le coefficient d'absorption α_{abs} est plus faible pour l'alumine que pour l'alumine-zircone *(Figure V-14)*. En revanche, les sections transverses des bains sont supérieures pour l'alumine-zircone, plus absorbante mais aussi probablement plus diffusante que l'alumine seule, étant donné les plus grands diamètres d'interaction de l'alumine-zircone. Cette meilleure absorption se matérialise principalement dans la section apparente S_{app} par rapport à la section refondue S_{ZR}, puisque le milieu granulaire constitue la plus grande part de l'absorption *(Figure V-39 et Figure V-42)*.



a)



b)

Figure V-46 : Variation en fonction de l'énergie linéique des a) coefficients d'absorption et des b) sections transverses des bains

V.4.2 Taille des particules

Le **modèle SLA** est appliqué à deux échantillons de granulométries différentes *(Figure V-47)*. Il montre que l'échantillon {CZTA20} de plus petite taille de grains présente un diamètre d'interaction élargi (sauf pour de domaine II) et des énergies minimales inférieures par rapport à l'échantillon de plus grande taille de grains {CZTA50}. On ne note toutefois pas de variation notable vis-à-vis du coefficient d'absorption.

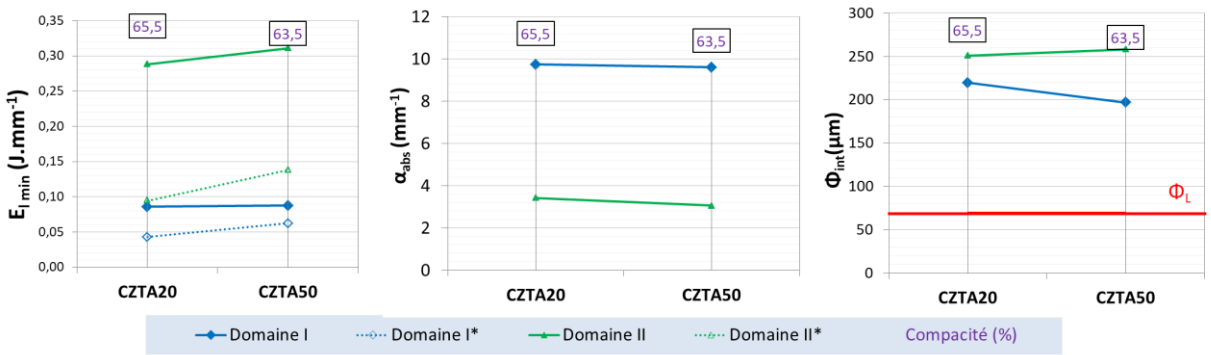
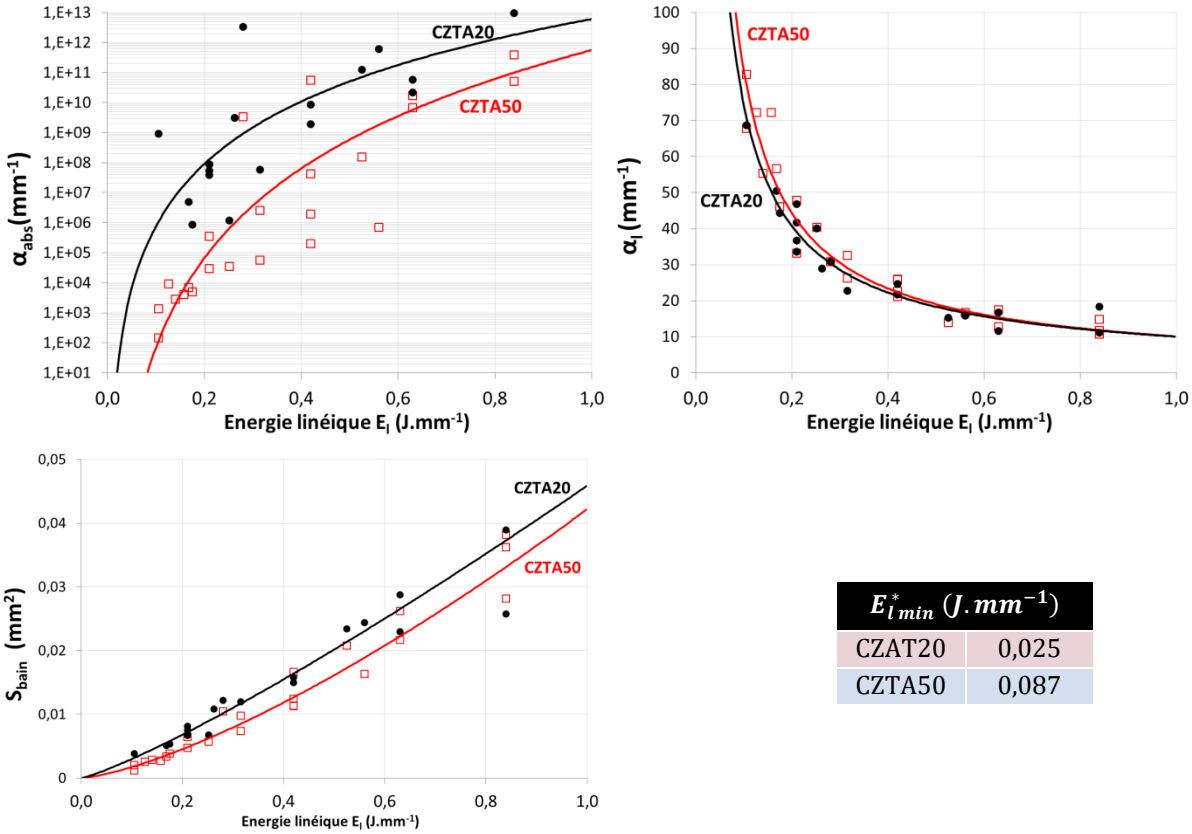


Figure V-47 : Grandeurs caractéristiques issues du modèle de type SLA pour deux tailles moyennes de particules

Le **modèle évolutif** indique plus clairement que le modèle de type SLA, un coefficient α_{abs} supérieur et une plus faible énergie linéique minimale pour fondre en largeur $E^*_{l\,min}$ pour une taille de grains inférieure plutôt que supérieure *(Figure V-48)*. Toutefois, il ne montre aucun effet de la taille des grains sur le coefficient d'absorption à l'état fondu α_f, comme le modèle de type SLA. Les paramètres d'empilement du lit de poudre influencent donc fortement l'interaction laser-matière latérale. De plus, les sections transverses des bains sont plus grandes pour une faible taille de grains à la suite d'une meilleure diffusion du rayonnement incident. Cette observation est à mettre en lien avec un diamètre d'interaction plus grand (domaine I). Ces tendances vérifient de nouveau les observations faites au *§IV.1.3* : la diminution de la taille des particules augmente la diffusion (nombre supérieur d'interfaces) et le diamètre d'interaction.



$E^*_{l\,min}$ $(J.mm^{-1})$	
CZAT20	0,025
CZTA50	0,087

Figure V-48 : Grandeurs caractéristiques issues du modèle évolutif pour deux tailles moyennes de particules

V.4.3 Nature et teneur en absorbant

V.4.3.1 Absorbants éphémères

Concernant le **modèle de type SLA**, l'ajout du carbone aux poudres céramiques de réception, tend à faire disparaitre le domaine I *(Figure V-49)*, c'est-à-dire à favoriser les bains pour lesquels H>L aux faibles énergies linéiques. Cela est certainement lié à la combustion du carbone avec une explosion des bains *(Chapitre VI)*. Cette explosion est observable à partir de 2%m.C pour l'alumine-zircone, dès 0,3%m.C pour l'alumine de réception, dès 0,5%m.C pour le SiC-β et s'observe également pour l'alumine EMSE (mélange homogène en carbone) déliantée à 2% et 4%. Les rapports d'élancement H/L intéressants pour la construction ne devant pas être trop importants, il convient de conserver des teneurs en absorbant relativement faibles (présence d'un domaine I). On note cependant qu'entre un compact de poudre et l'ensemble {LDP+Substrat}, l'ajout d'une même teneur en absorbant au sein du milieu granulaire n'a pas le même impact sur la morphologie du bain puisque l'absorbant n'est pas présent dans le substrat. Malgré un domaine I inexistant dans le cas du seul milieu granulaire, pour le même mélange de poudre déposé sur

un substrat, le domaine I (H<L) sera toujours présent. L'étude paramétrique permettra de juger précisément de la teneur limite en absorbant.
L'ajout d'un absorbant hétérogènement distribué diminue dans un premier temps les coefficients d'absorption. Puis, lorsque le domaine I n'est plus présent, le coefficient α_{abs}^{II} augmente. De la même manière, l'énergie linéique minimale pour fondre en largeur $E_{l\,min}^{*}$ et le diamètre d'interaction augmentent avant de diminuer après disparition du domaine I.

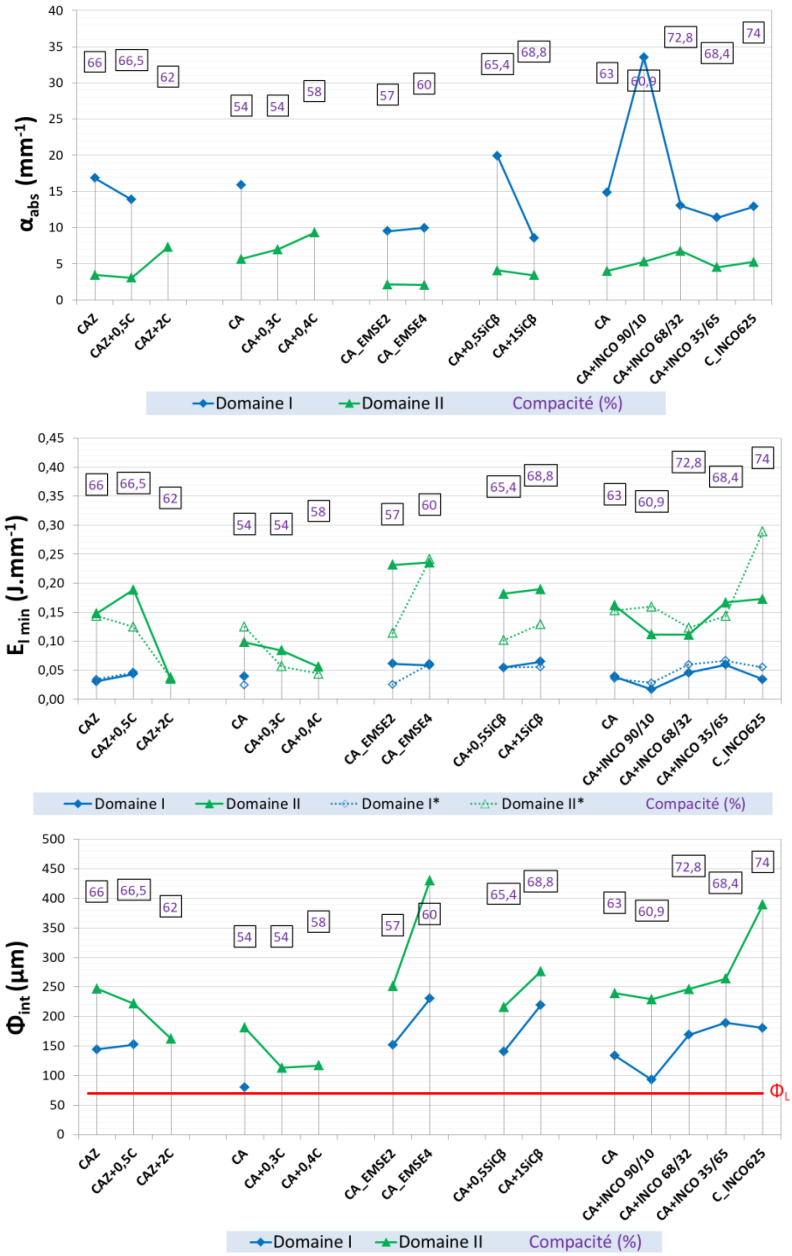


Figure V-49 : Grandeurs caractéristiques issues du modèle de type SLA pour les systèmes céramique-absorbant

Les grandeurs issues du **modèle évolutif** *(Figure V-50)* rejoignent les résultats du modèle de type SLA. Le coefficient d'absorption passe par un maximum avec un ajout de 0,3%m.C puis diminue au-delà de 0,4%. L'ajout de l'absorbant provoque donc l'augmentation de l'absorption, et l'augmentation de la teneur en absorbant conduit à une probable diminution de la diffusion et augmentation de l'absorption. Dans le cas du carbone homogènement distribué (EMSE) et du SiC-β, l'absorption et/ou la diffusion augmente/nt avec la teneur en absorbant. Le carbone semble contribuer plus efficacement à l'absorption comme vu au *Chapitre IV*. Le coefficient d'absorption à l'état fondu ne varie toujours pas quel que soit la nature de

l'échantillon. Concernant l'énergie linéique minimale pour fondre en largeur $E^*_{l\,min}$, on retrouve les conclusions du modèle de type SLA, à savoir qu'au fur et à mesure que la teneur en absorbant augmente, $E^*_{l\,min}$ subit une première augmentation avant de diminuer *(Tableau V-9)*.

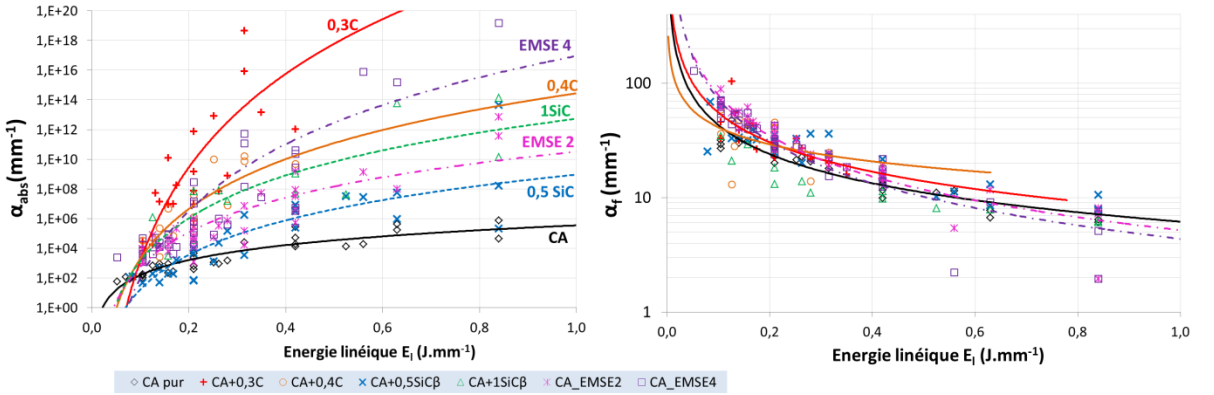


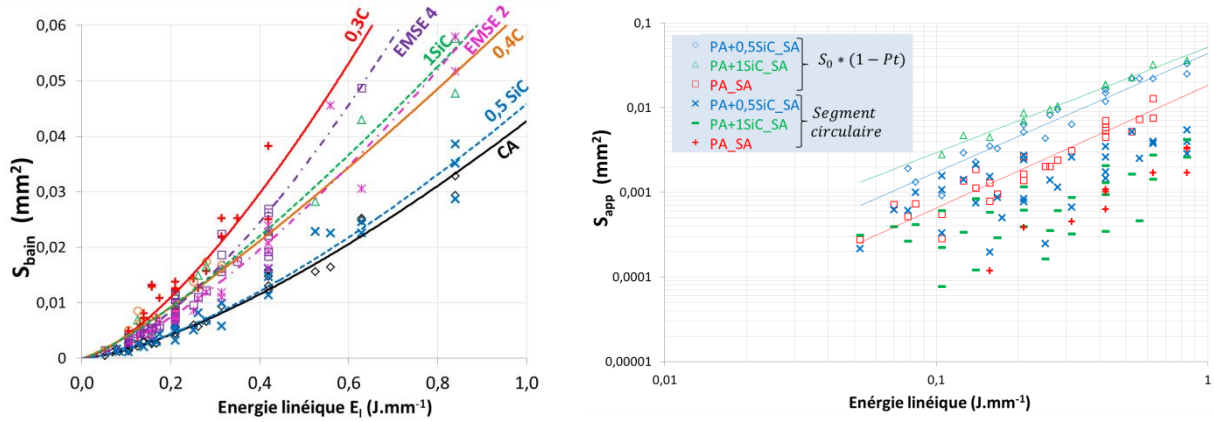
Figure V-50 : Grandeurs caractéristiques issues du modèle du modèle évolutif pour les systèmes céramique-absorbant

Dans le cas du **modèle évolutif**, on note que l'énergie linéique nécessaire pour fondre jusqu'à l'interface LDP/Substrat $E_{l,i}$ diminue avec un plus grand ajout en SiC-β *(Tableau V-9)*. La dilution est donc favorisée par l'ajout d'absorbant et la fenêtre de formation du *balling* est réduite.

Tableau V-9 : Energie linéique nécessaire pour fondre en largeur et atteindre l'interface LDP/Substrat pour $\Delta z_{poudre} = 50\mu m$ et Pt=50%

	AZ	A	0,3C	0,4C	EMSE2	EMSE4	A+0,5SiC-β	A+1SiC-β
$E^*_{l\,min}$ $(J.mm^{-1})$	0,05	0,065	0,079	0,064	0,062	0,085	0,093	0,062
$E_{l,i}$ $(J.mm^{-1})$	0,051	0,073	-	-			0,072	0,048

Les sections transverses des bains au sein de compacts de poudre augmentent proportionnellement à l'ajout d'absorbant et cet effet est lié à une meilleure absorption *(Figure V-51.a et Figure V-50)*. La section apparente des bains pour les systèmes {LDP+ substrat} augmente également avec la teneur en SiC-β. En revanche, les tendances observées et ajustées par l'équation du segment circulaire indiquent que les plus grandes sections apparentes sont stabilisées avec 0,5%mSiC-β. Dans tous les cas, les valeurs mesurées sont inférieures à celles calculées par la conservation de la matière, soit $(S_0(1-Pt))$, ce qui indique probablement une éjection de matière lors de l'interaction laser-matière.



a) b)

Figure V-51 : Sections transverses en fonction de l'énergie linéique a) des bains b) de la calotte apparente [$\Delta z_{poudre}(PA_SA) = 58\mu m$, $\Delta z_{poudre}(PA + 0{,}5SiC_SA) = 69\mu m$ et $\Delta z_{poudre}(PA + 1SiC_SA) = 47\mu m$]

V.4.3.2 Mélanges céramique-métal

En négligeant la faible variation de compacité entre les différents échantillons, l'ajout de 10%vol. de particules métalliques à l'alumine augmente assez nettement le coefficient α_{abs}^{I} obtenu via le **modèle de type SLA**. Au-delà de cette teneur, la valeur de α_{abs}^{I} s'égalise avec celle de l'Inconel 625 *(Figure V-49)*. Le coefficient α_{abs}^{II} ne semble pas quant à lui, varier de manière importante. On note enfin que les diamètres d'interaction et les énergies linéiques minimales des mélanges sont globalement moyennés entre la céramique et le métal.

A travers le **modèle évolutif**, on remarque que le coefficient d'absorption solide α_{abs} augmente avec la teneur en absorbant métallique et au-delà de 32%m., la valeur de α_{abs} du mélange {A+INCO625} est équivalent à celle du matériau métallique *(Figure V-52)*. La description des propriétés optiques par ce modèle semble donc plus cohérente qu'à travers le modèle de type SLA.

Le coefficient d'absorption à l'état fondu est supérieur pour les mélanges vis-à-vis des composés « purs », avec un maximum d'absorption pour le mélange intermédiaire à 32%m. de particules métalliques. On peut faire la même remarque pour l'énergie linéique minimale pour fondre en largeur ($E_{l\,min}^{*}$) *(Tableau V-10)*.

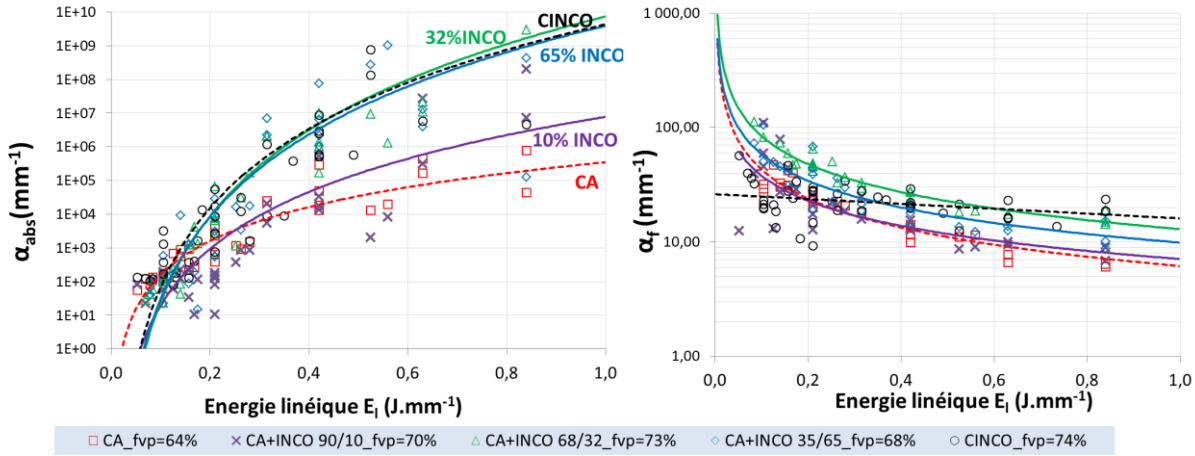


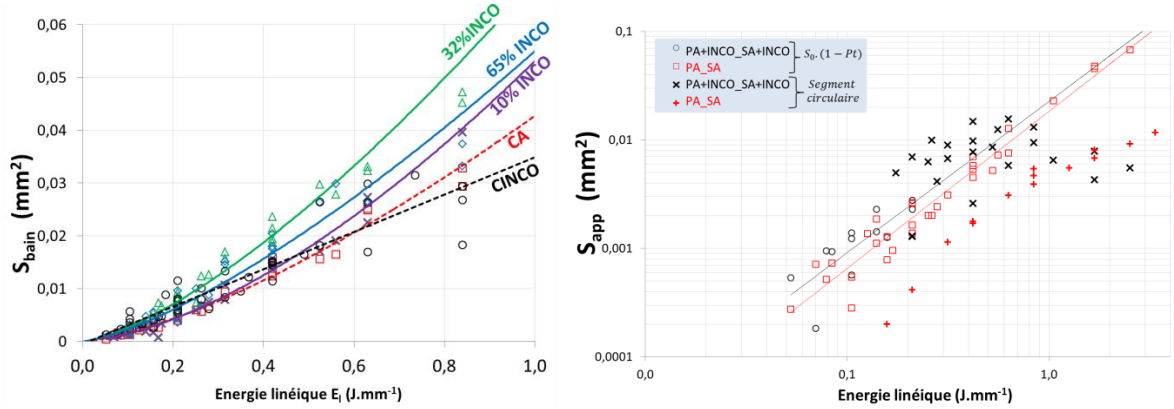
Figure V-52 : Grandeurs caractéristiques issues du modèle évolutif pour les systèmes céramique-métal

Tableau V-10 : Energie linéique nécessaire pour fondre en largeur et atteindre l'interface LDP/Substrat pour $\Delta z_{poudre} = 50\mu m$ et Pt=50%

	A	A+INCO 90/10	A+INCO 68/32	A+INCO 35/65	INCO
$E_{l\,min}^{*}\ (J.mm^{-1})$	0,065	0,088	0,089	0,086	0,077
$E_{l,i}\ (J.mm^{-1})$	0,073	0,095	-	-	-

Après calcul de l'énergie linéique nécessaire pour fondre jusqu'à l'interface LDP/substrat, on remarque que l'ajout de particules métalliques à l'alumine ne permet pas *a priori* de diminuer l'énergie linéique nécessaire *(Tableau V-10)*. Cette tendance surprenante pourrait mettre en évidence les limites du modèle évolutif vis-à-vis des systèmes absorbants tels que les mélanges céramique-métal. Toutefois, les mélanges céramique-métal voient également leurs sections transverses de bain augmenter par rapport à celles de chacun des matériaux pris individuellement. Les sections transverses des bains atteignent un maximum pour 32%m. d'absorbant métallique. Aussi pour les systèmes {LDP+substrat}, on remarque que contrairement au cas {PA_SA}, pour le système {PA+INCO_SA+INCO} les valeurs des sections apparentes calculées en imposant la conservation de la matière $[S_0(1-Pt)]$ deviennent en partie inférieures aux valeurs ajustées par l'équation du segment circulaire. Le bain d'alumine est soumis à de fortes éjections de

matière, alors que le mélange {A+INCO} subirait un gonflement qui pourrait attirer des particules dans le bain *(Chapitres I et VI)*.



a) b)

Figure V-53 : Sections transverses en fonction de l'énergie linéique a) des bains b) de la calotte apparente [$\Delta z_{poudre}(PA_SA) = 87\ \mu m$ et $\Delta z_{poudre}(PA + INCO_SA + INCO) = 119 \mu m$]

V.5 Conclusion du Chapitre V

Dans ce chapitre, deux modèles d'interaction laser-matière ont été définis. A partir d'un découpage morphologique des bains, le modèle de type SLA définit de manière simple et rapide des grandeurs optiques constantes (i.e. indépendantes de E_l). Le modèle évolutif, couplé aux mesures optiques réalisées au *Chapitre IV*, est plus précis et plus riche. Il permet en effet une description bien plus complète de l'interaction laser-matière et des grandeurs optiques en fonction de l'énergie linéique tout en distinguant l'état solide et fondu de la matière *(Figure V-54)*. Alors que le modèle de type SLA ne peut être appliqué qu'à un milieu unique (granulaire ou dense), le modèle évolutif est applicable à des milieux uniques (compact, LDP, substrat dense) ou encore à une superposition des milieux (LDP+substrat dense). Ce dernier permet une description de l'interaction laser-matière du procédé LBM. Dans ce cas, le bain de fusion est décrit selon les grandeurs géométriques $\{e_{app}; H_{app}; S_{app}; e_{ZR}; H_{ZR}; S_{ZR}; S_{bain}\}$ qui ont été définies à partir des grandeurs d'interaction au sein du lit de poudre seul $\{L; e_i; H;\ S_p\ , S_o\}$ et qui sont fonction des propriétés optiques $(R_f, R_{nf} = R_p, \alpha_{abs} = \alpha_p, \alpha_f,\ E_{l,min}, E_{l,i})$, des caractéristiques du lit de poudre (Pt, d_{50}) et des paramètres du procédé $(E_l, \Delta z_{poudre}, \Phi_L)$. Il a aussi été démontré que la zone fondue prend la forme d'une parabole. De plus, il est montré que pour les matériaux céramiques, les valeurs des sections apparentes expérimentales des bains sont inférieures à celles calculées par la conservation de la matière $\left(S_{app} = S_0(1 - Pt)\right)$. Ceci indique la présence d'éjections plutôt qu'un gain de matière. Or, ce n'est pas le cas du mélange céramique-métal.

Le modèle de type SLA établit une séparation géométrique suivant le domaine I pour $H < L$ et le domaine II pour $H > L$. Le *domaine II* à solidification lente (V faible) se caractérise par un coefficient d'absorption plus faible que le domaine I à solidification rapide ($\alpha_{abs}^{I} \geq \alpha_{abs}^{II}$), une largeur d'interaction supérieure ($\Phi_{int}^{I} \leq \Phi_{int}^{II}$), ainsi que des énergies linéiques minimales requises pour l'initiation de la fusion plus élevées ($E_{l\,min}^{I} \leq E_{l\,min}^{II}$ *et* $E_{l\,min}^{I\,*} \leq E_{l\,min}^{II\,*}$).

L'application de ces deux modèles aux différents systèmes étudiés permet une meilleure compréhension des effets énumérés ci-après. On note avant tout que le coefficient d'absorption α_{abs}^{II} varie peu entre les différents systèmes et se rapproche des propriétés du coefficient d'absorption de la matière fondue α_f

définie par le modèle évolutif. Ce coefficient α_f suit la même tendance quel que soit le matériau céramique : il diminue fortement avec une augmentation de l'énergie linéique. Il est important de garder à l'esprit que le coefficient d'absorption calculé pour un milieu solide semi-transparent tient compte à la fois de la diffusion S et de l'absorption K comme vu au *Chapitre III*. Les résultats peuvent être interprétés comme étant liés à une variation de la diffusion et/ou de l'absorption du milieu ou des deux.

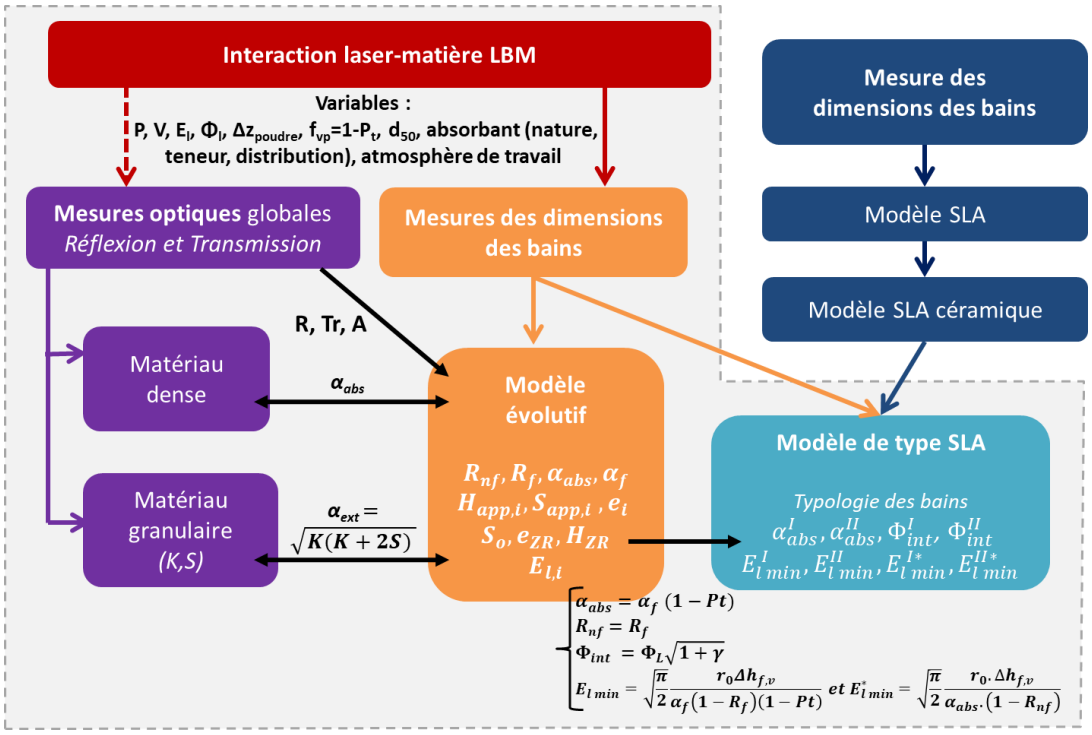


Figure V-54 : Description de l'interaction laser-matière du procédé LBM : lien entre les différents modèles et les mesures optiques

- ***Porosité***

Le modèle de type SLA indique que l'interaction volumique s'initie à plus faible énergie linéique pour les milieux très poreux et que α^I_{abs} diminue avec un taux de porosité croissant. Avec le modèle évolutif, c'est aussi le cas pour les milieux granulaires. Toutefois, c'est l'inverse pour les milieux denses, leur coefficient α_{abs}est inférieur à celui des milieux poreux. La porosité induit une diffusion du rayonnement en profondeur et en largeur plus importante et induit des sections transverses de bains plus grandes pour les milieux poreux.

- ***Céramiques vs. métaux***

Les matériaux métalliques possèdent un domaine de stabilité et donc de fabrication plus large avec des énergies linéiques de transition entre les domaines I, II et de keyhole plus élevées que pour les céramiques. Les céramiques, moins absorbantes que les métaux, atteignent rapidement le domaine d'interaction volumique. Les valeurs des coefficients d'absorption α_{abs} *et* α_f des métaux denses sont supérieures aux valeurs des céramiques denses, suite à la meilleure conductivité thermique des métaux. Les diamètres d'interaction des métaux sont nettement supérieurs et les sections transverses de bains bien plus petites. Aussi, de manière générale pour les céramiques, l'amorce de la fusion en largeur précède la fusion en profondeur tandis que pour les métaux, c'est l'inverse. La diffusion du rayonnement incident au sein des particules semi-transparentes peut favoriser la fusion.

- ***Taille des particules***

Une taille des grains décroissante augmente le coefficient d'absorption (effet bien plus marqué avec le modèle évolutif qu'avec le modèle de type SLA), le diamètre d'interaction, et amorce la fusion en largeur

du LDP à plus faible énergie linéique. La diminution de la taille des particules augmente la multi-réflexion (nombre supérieur d'interfaces) et augmente la section transverse des bains.

- ***Absorbants éphémères***

L'ajout d'absorbants éphémères favorise l'interaction volumique (initiation du domaine II à plus faible énergie linéique) et augmente les sections transverses des bains particulièrement si l'absorbant est réparti de manière hétérogène et que son pouvoir calorifique est intense.

- ***Absorbants persistants***

Le coefficient d'absorption solide α_{abs} augmente avec la teneur en absorbant métallique par augmentation de l'absorption. Au-delà de 32%m,, le coefficient α_{abs} des mélanges devient équivalent à celui du matériau métallique seul. Les sections des bains sont supérieures à celles des constituants purs : elles augmentent avant de diminuer.

Les résultats obtenus à partir de ces deux modèles ne coïncident pas toujours. Néanmoins, le modèle évolutif est plus complet par la prise en compte des mesures optiques et par la distinction des coefficients d'absorption des états fondu et solide et de la porosité du lit de poudre. Ce modèle évolutif, plus complet, donne les résultats les plus cohérents. Il faut toutefois noter qu'on ne peut pas avec ce modèle calculer précisément H_{app}, S_{app}, e_{app} à $t \to +\infty$. Sa mise en œuvre montre bien la complexité de l'interaction laser-matière en largeur. En effet, alors que la hauteur de zone refondue H_{ZR} est très bien approximée, e_{ZR} l'est moins bien. Le modèle de type SLA est quant à lui intéressant pour estimer la variation des diamètres d'interaction et des énergies minimales d'interaction en largeur et en profondeur.

Pour aller plus loin, étant donné que les propriétés radiatives issues de la construction 2D et 3D diffèrent du 1D, il serait intéressant d'adapter le modèle évolutif aux multi-passes. Egalement, il serait souhaitable de découpler l'effet P de V qui jusque-là n'ont été considérés que sous la forme d'une variable couplée (l'énergie linéique). Aussi, la mesure optique sur le bain liquide isolé et non plus de l'état fondu {liquide+matière sous-jacente}, et le calcul de la réflectance R_l et du coefficient d'absorption α_l permettrait de préciser le modèle en s'exemptant probablement de la dépendance en énergie linéique pour ces grandeurs ainsi que pour $E_{l,min}$.

CHAPITRE VI

ETUDE PARAMETRIQUE ET MODELE DE CONSOLIDATION

Afin de construire une pièce avec une bonne santé métallurgique, il est important de définir une fenêtre de stabilité du bain à partir des différents paramètres du procédé. Le nombre de paramètres étant conséquent, l'étude paramétrique se découpe en études 1D, 2D et 3D comme défini au Chapitre I. L'étude 1D consiste à étudier le monocordon seul, de manière à circonscrire le domaine paramétrique qui définit la brique élémentaire pour la construction d'une pièce, conforme au cahier des charges. L'étude 2D vise à étudier des draps (juxtaposition de monocordons) ou des murs (superposition de monocordons) afin d'ajuster le taux de recouvrement et le taux de dilution entre cordons. Enfin, l'étude 3D repose sur l'étude des cubes (superposition de draps) et doit permettre de définir la meilleure stratégie de balayage.
Cette étude paramétrique permettra également de quantifier l'impact de l'ajout d'absorbants. En effet, il a été démontré que l'ajout d'absorbant modifie en particulier la compacité du lit de poudre (Chapitre II) et ses propriétés radiatives (Chapitres IV et V), ce qui affecte également les géométries des bains et la stabilité de l'empilement des cordons.
La définition de critères de stabilité et de modèles géométriques des bains permet de prendre en considération les éventuelles perturbations au sein du lit de poudre lors du passage du faisceau laser. En effet, l'observation d'une zone dénudée de part et d'autre du cordon amène à penser que des particules du lit de poudre peuvent alimenter le bain ou alors être éjectées sur le lit de poudre en dehors de la zone d'interaction laser-matière. Le modèle de consolidation du lit de poudre défini dans les précédentes études au Centre des Matériaux *sera complété pour prendre en compte ces phénomènes récemment observés dans la littérature (Chapitre I) et qui font désormais l'unanimité dans la communauté scientifique.*

Ce *Chapitre VI* aborde donc l'étude paramétrique 1D, 2D et 3D des configurations de fabrication {LDP+Susbtrat} en prenant en compte les effets de la nature et de la teneur en absorbant et au travers de critères géométriques et de modèles de consolidation du lit de poudre. Enfin, une brève étude de post-traitements aiguillera sur les solutions à mettre en œuvre par la suite.

Sommaire du Chapitre VI

VI ETUDE PARAMETRIQUE ET MODELE DE CONSOLIDATION 292

VI.1 ETUDE 1D 294

VI.1.1 Critères de stabilité 295

VI.1.1.1 Morphologies 295

a) Continuité et rectitude 298

b) Dispersion de la hauteur 300

VI.1.1.2 Facteurs de forme 304

VI.1.2 Fenêtre de stabilité 311

VI.1.3 Ejections 312

VI.2 MODELES DE CONSOLIDATION DU LIT DE POUDRE 314

VI.2.1 Conservation de la matière 314

VI.2.2 Zone élargie d'interaction laser-matière : prise en compte des éjections ... 316

VI.2.2.1 Echanges de matière possibles 318

VI.2.2.2 Expression de la section apparente du cordon S_{app} 319

VI.2.2.1 Domaines d'interaction laser-matière 320

VI.2.2.2 Particules éjectées de la zone dénudée 322

VI.2.2.3 Taux de consolidation et taux de particules éjectées de ZD 323

VI.3 ETUDE 2D ET 3D 326

VI.3.1 Etude 2D 326

VI.3.1.1 Construction de murs 326

VI.3.1.2 Construction de draps 327

a) Effet du taux de recouvrement : stratégie en aller simple sur la couche N 328

b) Comparaison des stratégies de balayage et effet de l'énergie linéique 330

VI.3.2 Étude 3D 332

VI.3.3 Pièces 3D et traitements thermiques 335

VI.3.3.1 Ré-oxygénation 335

VI.3.3.2 Alumine et Carbone 337

VI.3.3.3 Alumine et SiC-β 338

VI.3.3.4 Alumine-zircone 339

VI.3.3.5 Mélange céramique-métal 343

VI.4 CONCLUSION DU CHAPITRE VI 344

VI.1 Etude 1D

L'étude 1D a pour objectif la définition d'une fenêtre paramétrique P, V et Δz_{poudre} qui engendre un monocordon continu, régulier et répétable et qui permet un empilement stable de cordons pour la construction 3D. Ceci suppose donc, que le domaine de stabilité est situé hors des conditions de *keyhole* ou de *balling*. Cette fenêtre est définie à l'aide de **critères de stabilité**. Ces critères sont morphologiques et géométriques, ils sont liés aux typologies de bains et prennent en compte les :

- *dimensions caractéristiques du bain*
- *rapports d'élancement du bain*
- *consolidation du cordon : retrait axial, retrait radial et taux de particules éjectées*
- *dispersion de la hauteur du cordon H_{app}*
- *rectitude du cordon*
- *angle de mouillage du cordon*

A l'image de ce qui a été fait sur les matériaux métalliques, nous avons souhaité établir des critères de stabilité morphologiques et géométriques du bain pour définir le caractère stable ou non d'une paramétrie choisie (Marcos, 2018; Vinson, 2015). Or, la semi-transparence des céramiques à la longueur d'onde de travail exacerbe la pénétration au sein du matériau, leur faible masse volumique et le travail en atmosphère air peuvent favoriser l'éjection de particules de poudre par rapport aux matériaux métalliques (consolidés sous Argon) et leur faible conductivité thermique accroit la longueur des bains. Ces différences impactent les morphologies des bains qui sont très différentes de celles obtenues pour les matériaux métalliques. Ceci implique que les critères de stabilité des bains céramiques doivent être adaptés au matériau. On note néanmoins que l'éjection de particules de poudre ne sera pas un critère décisif, car il peut être compensé en adaptant la stratégie de fabrication comme il sera abordé plus tard.

Il est possible d'étudier les paramètres {P, V, Δz_{poudre}} directement au travers d'une « manip coin » qui consiste à déposer une épaisseur de poudre variable sur un substrat (comme appliqué pour les mesures optiques au *Chapitre IV*). Dans notre cas, le nombre de systèmes à tester suivant la nature et la teneur en absorbant étant conséquent, ce sont majoritairement des « manips à plat » qui ont été réalisées. Or, ces essais à plat ne permettent pas un contrôle précis de l'épaisseur de poudre déposée. C'est la raison pour laquelle les valeurs de Δz_{poudre} présentées ne sont pas toujours identiques. Toutefois, ces essais sont supposés à Δz_{poudre} fixé et font varier {P, V}.

L'étude 1D a été réalisée sur les poudres Al_2O_3-ZrO_2 de réception et Al_2O_3 mélangées au carbone ou au SiC. Les poudres sont déposées sur un substrat dense de même nature que le LDP mais exempt de tout absorbant éphémère, de manière à simuler la couche précédemment fondue. La liste des systèmes étudiés est présentée dans le *Tableau VI-1*. Les fusions sont réalisées sous air avec un laser Yb:YAG.

La puissance laser P et la vitesse de balayage V varient respectivement entre 42 et 168 W et entre 50 et 800 mm.s^{-1} soit un domaine étendu d'énergies linéiques allant de 0,05 à 3,5 J.mm^{-1}. Certains paramètres sont fixés, tels que la taille du faisceau laser (Φ_l=70µm) et la température de préchauffage $T_{préch}$=T_{amb}=25°C car difficilement contrôlable sur la machine de fabrication utilisée. Concernant l'épaisseur de poudre, il faut discerner trois paramètres : Δz_{poudre} l'épaisseur réelle de poudre déposée, Δz_{piston} l'abaissement incrémental du piston de fabrication à chaque couche et H_{app} la hauteur apparente du cordon consolidée. A la première couche, Δz_{poudre} et Δz_{piston} sont égales. L'épaisseur de poudre déposée à la première couche est souvent mal maîtrisée, particulièrement sur une machine d'ancienne génération comme celle utilisée du *Centre des Matériaux*, du fait du positionnement peu précis du substrat (défaut d'usinage, jeu entre le substrat et le rouleau, mauvais serrage du substrat sur son support, particules de poudre gênant le verrouillage du substrat, …). Toutefois, il est possible de connaître précisément la hauteur de couche déposée et consolidée par profilométrie optique. Au bout d'une dizaine de couches, la hauteur de poudre étalée ne varie plus. De ce fait, la hauteur de poudre consolidée H_{app} à la couche *i* ne

varie plus et la consolidation est stable. En fonction du nombre de couches déposées, H_{app} tend de manière asymptotique vers Δz_{piston} correspondant au *slicing* de la pièce. En régime stabilisé de construction, Δz_{poudre} et Δz_{piston} sont alors reliés par la porosité du lit de poudre P_t: $\Delta z_{poudre,i=\infty} = \frac{\Delta z_{piston}}{1-Pt} = \frac{H_{app,i=\infty}}{1-Pt}$ (Vinson, 2015). La valeur usuelle de Δz_{piston} qui permet une bonne résolution de pièce est de 30 µm pour les matériaux métalliques, il conviendra néanmoins d'étudier sa valeur au travers d'une « manip coin » pour les matériaux étudiés.

Tableau VI-1 : Liste des systèmes utilisés pour l'étude paramétrique

Système	Etude 1D - Δz_{poudre}(µm)	Etude 2D	Etude 3D
PAZ_SAZ	92±12 Manip coin		✓
PAZ+0,5C_SA	48±15	✓	✓
PA_SA	55±5 87±4		
PA0,1C_SA	58±4 Manip coin		✓
PA0,5C_SA	60±9 101±11	✓	✓
PA+1C_SA	51±7		
PA+2C_SA	83±16		
PA-EMSE2_SA	61±9		
PA+0,1SiC_SA	92±11		
PA+0,5SiC_SA	69±13		✓
PA+1SiC_SA	47±4		
PA+INCO_SA+INCO	119±23		✓

VI.1.1 Critères de stabilité

VI.1.1.1 Morphologies

Comme vu au *Chapitre I*, les modes d'interaction laser-matière et les morphologies de bains associées sont dépendants de l'énergie linéique E_l (et donc de P et V). La cartographie {P,V} des cordons en vue de dessus *(Figure VI-1et Figure VI-2)* pour un Δz_{poudre} fixé permet de classer les différents types de cordons suivant une énergie linéique croissante :

- A : non fondus
- B : partiellement fondus
- C : discontinus à morphologie sphérique (*balling*)
- D : discontinus à morphologie allongée
- E : continus mais présentant des perturbations, des pincements ; non-rectitude
- F : continus, à section apparente bombée, dits stables ; rectitude
- K - mode keyhole : continus à section apparente aplatie, pouvant présenter des gonflements locaux, dits instables ; non-rectitude

Bien qu'ils soient de nature différente, les systèmes {PAZ_SAZ} et {PA+0,1C_SA} *(Figure VI-1 et Figure VI-2)* ont des similitudes. Ils ne présentent pas de monocordons non fondus. Aux très faibles énergies linéiques, les cordons sont discontinus : les billes caractéristiques du *balling* *(Figure VI-3)* se détachent partiellement du substrat lors du dé-poudrage. La longueur des morceaux de cordons discontinus s'allonge avec l'augmentation de l'énergie linéique jusqu'à former un cordon continu non rectiligne, avec des pincements. Aux très fortes énergies linéiques, sont identifiés des monocordons continus instables qui peuvent présenter un gonflement continu ou ponctuel caractéristique des remontées de matière liées au keyhole. Il semblerait qu'aux fortes puissances et fortes vitesses, un manque de matière impacte la consolidation du cordon et donc sa morphologie. Cet effet lié aux éjections de particules (zone dénudée) sera abordé au *§VI.1.3*.

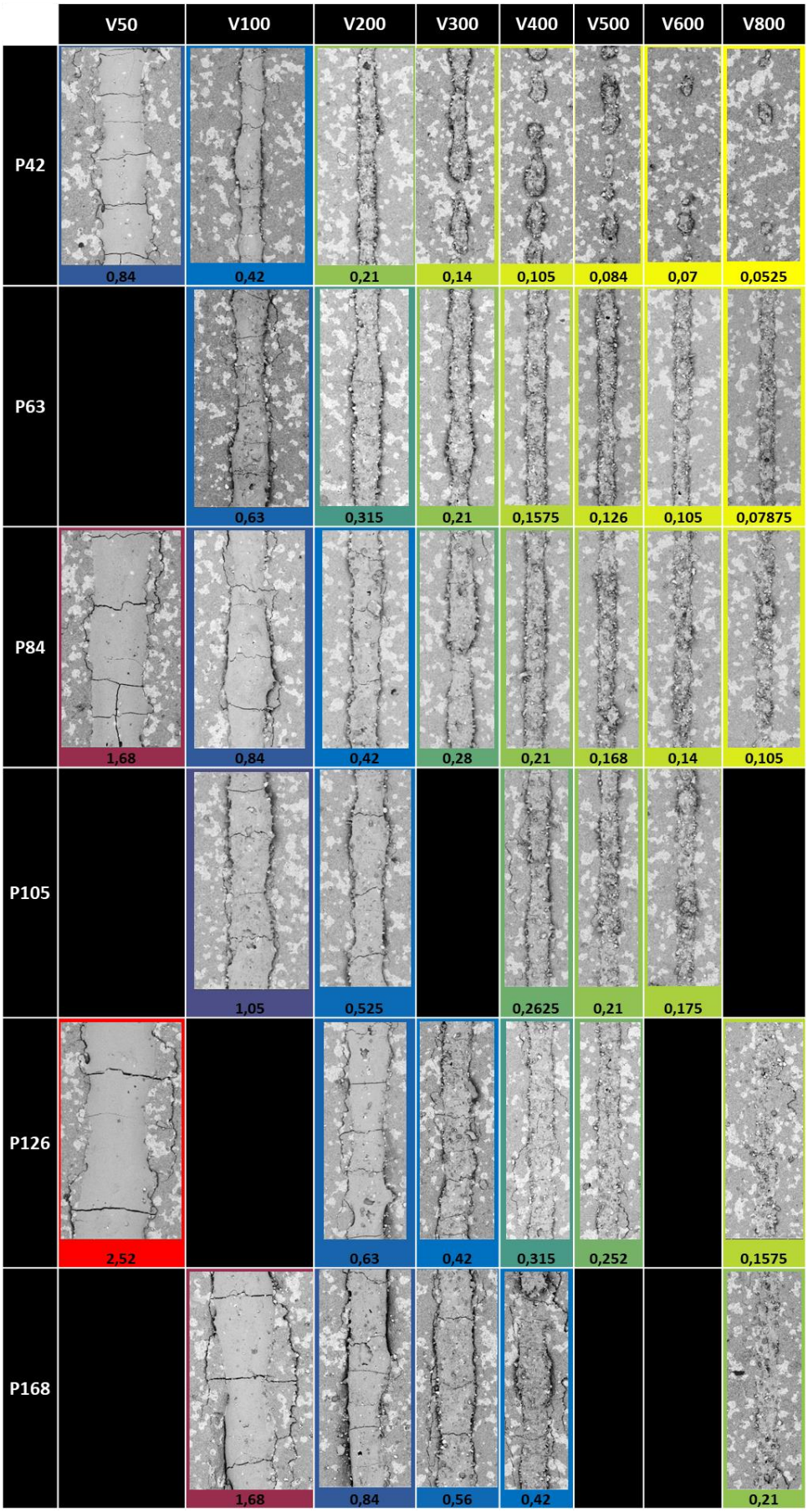


Figure VI-1 : Vue de dessus des cordons {PAZ_SAZ} pour différentes puissances P (W), vitesses V (mm.s^{-1}) et énergies linéiques (J.mm^{-1}).

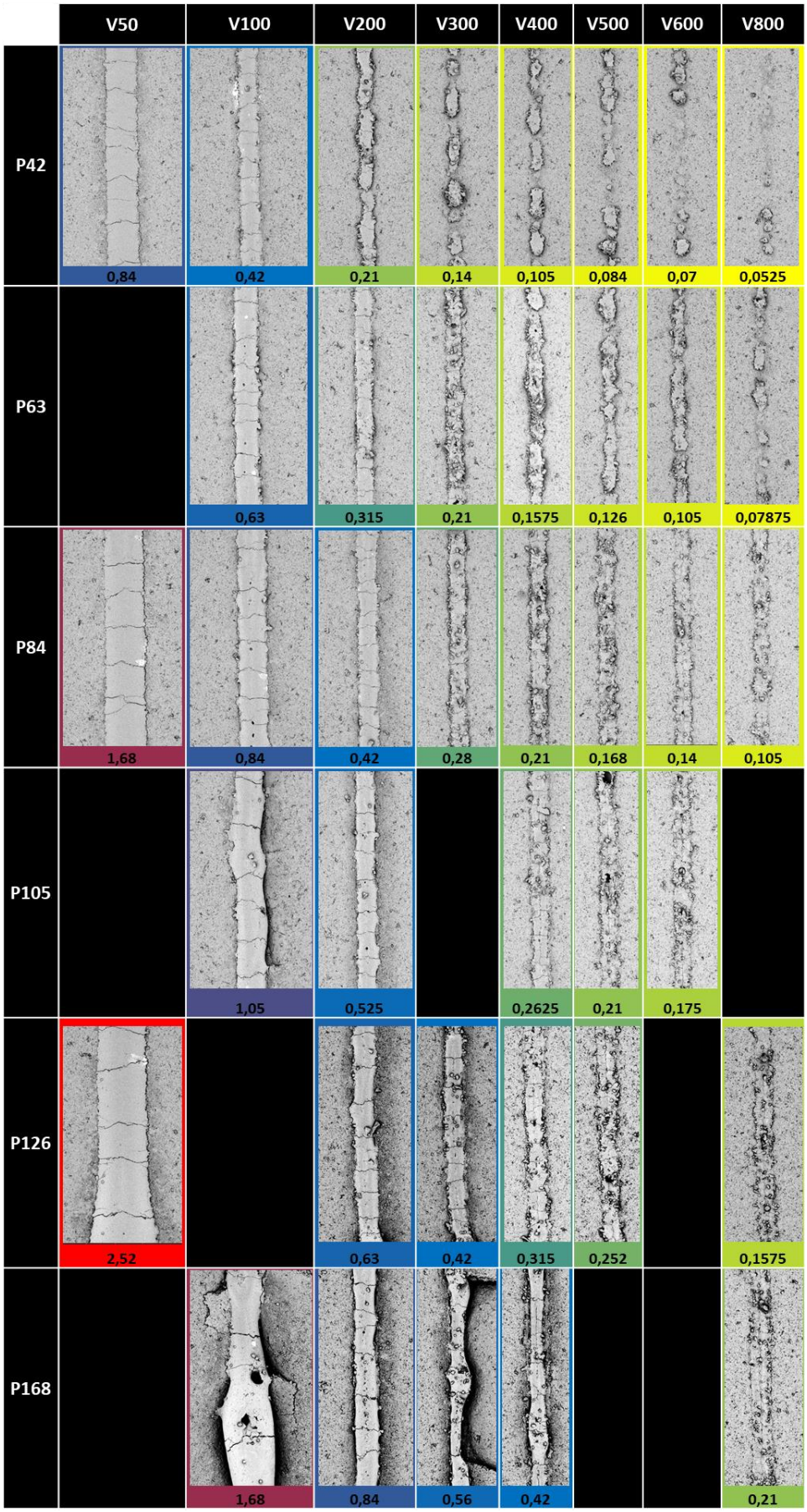


Figure VI-2 : Vue de dessus des cordons {PA+0,1C_SA} pour différentes puissances P (W), vitesses V (mm.s^{-1}) et énergies linéiques (J.mm^{-1})

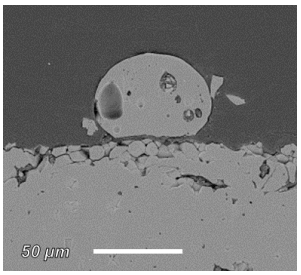


Figure VI-3 : Coupe transverse d'un cordon de {PA+0,1C_SA} à morphologie discontinue dit « balling » à P42V500

a) Continuité et rectitude

Les premiers critères qui caractérisent un cordon stable sont **sa continuité et sa rectitude**. En effet, la discontinuité (types C et D) ainsi que la non-rectitude (types E et K) sont les principales morphologies susceptibles de perturber l'empilement 3D des cordons *(Figure VI-4)*.

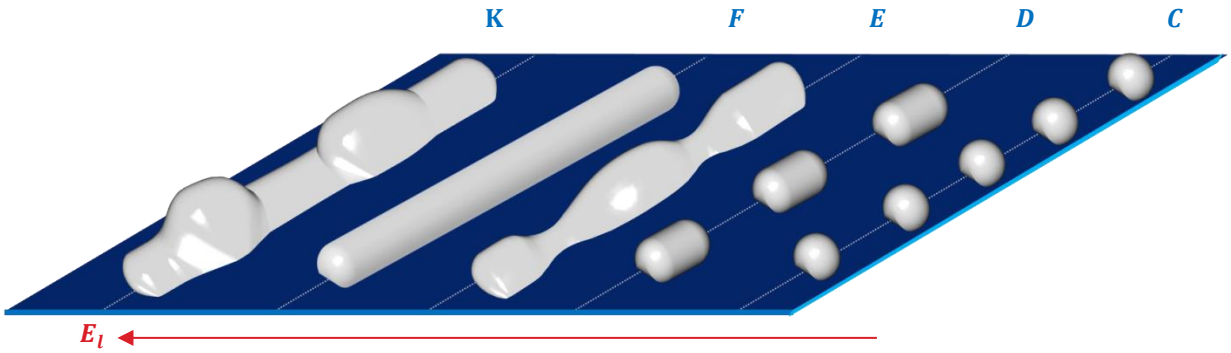
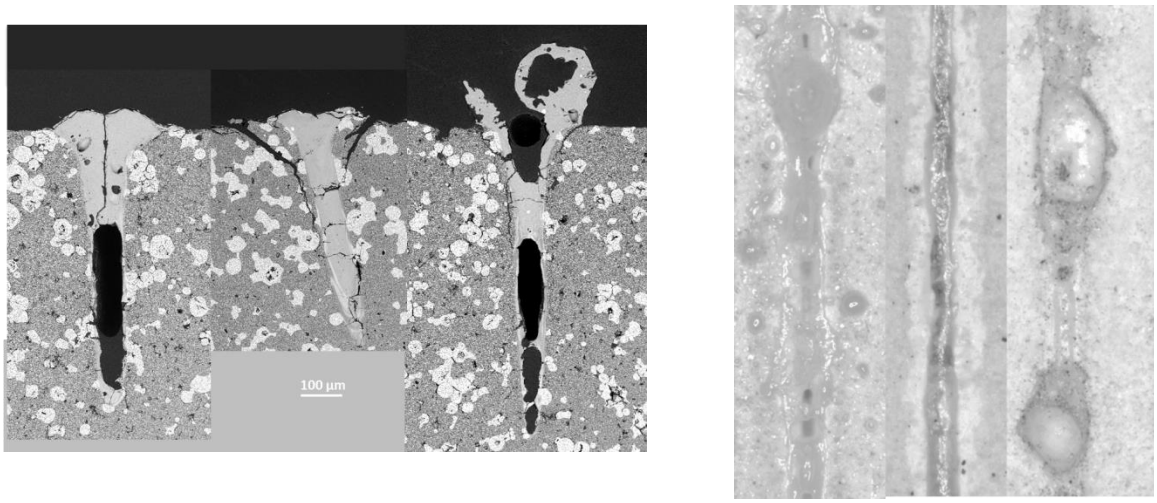


Figure VI-4 : Schématisation des types de morphologies de bains (continus, discontinus, rectilignes ou non)

L'augmentation de l'énergie linéique incidente sur un matériau céramique faiblement absorbant engendre rapidement du **keyhole** (type K) avec une remontée de liquide du bain. Rappelons que lors de la fermeture du keyhole, des pores de gaz occlus peuvent rester emprisonnés à l'intérieur du cordon. Ceci, est d'autant plus vrai que la combustion du carbone s'opère *(Figure VI-5)*. Les coupes transversales mettent en évidence des bains aux profondeurs de pénétration très importantes pour des énergies linéiques supérieures à 0,8 J.mm^{-1}. Dans certains cas, on observe des bains en forme de clou ou de trou de serrure avec une grande porosité en fond de bain ainsi qu'un gonflement en haut du bain. Ce gonflement est issu de la remontée de liquide par le capillaire gazeux engendrée par la pression de vapeur saturante agissant comme une pression mécanique à la surface du bain. Ce type K de bain présente généralement une forte dispersion de la hauteur du cordon. C'est le cas pour l'Al_2O_3-ZrO_2 (substrat sans dépôt de poudre ou avec un dépôt de poudre mélangée à du carbone). Dans le cas de l'Al_2O_3, très peu de pores sont observés en fond de bain de type K même avec l'ajout d'une forte teneur en carbone. Cette différence peut être liée d'une part à la viscosité du liquide qui semblerait plus élevée et d'autre part à la température de vaporisation qui apparait plus faible pour l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2 que pour l'Al_2O_3 *(Annexe A)*.

En mode **conduction**, l'écoulement convectif du liquide est généré depuis le fond du front avant du capillaire puis il est rapidement dévié vers l'arrière laissant apparaitre une zone pauvre en liquide où s'opère un cumul des effets de la solidification et des gradients de surface, conduisant à un pincement ou rétrécissement latéral du liquide. Si la zone pauvre en liquide est trop étroite et présente des tensions superficielles élevées, la géométrie résultante est une protubérance liquide (ou bosse) en arrière du bain. Le cordon solidifié est alors constitué d'une série d'ondulations périodiques liées à l'instabilité de Plateau-Rayleigh qui induit une perturbation de l'écoulement du bain liquide. On parle alors de morphologie avec pincements (type E).



a) b)

Figure VI-5 : Vue des bains de fusion pour P168V100 a) en coupe et b) du dessus de gauche à droite : {SAZ} , {PAZ_SAZ} et {PAZ+0,5C_SA}

Au-delà d'une énergie linéique, le cordon devient continu (type F) car la zone de fusion s'élargit et les tensions de surface du liquide dans la zone dépressionnaire diminuent. Le pincement du cordon est donc lié à un manque d'apport en énergie linéique, en termes de puissance transmise ou de vitesse de balayage.

Aux plus faibles énergies linéiques, la diminution accrue de la largeur du bain liquide accentue le phénomène de pincement et provoque la discontinuité des bains, d'abord de manière allongée (type D) puis jusqu'à leur sphéroïdisation ou *balling* (type C). Dans le cas du dépôt de poudre sur substrat, le *balling* n'est pas lié à un mauvais mouillage du substrat par le liquide mais à un manque de dilution du substrat, entrainant la sphéroïdisation du liquide sous l'effet des tensions superficielles. Dans le cas des compacts de poudre céramique ou métallique, ce *balling* est également observé *(Figure VI-6)*. Il est toutefois observé sur une plage plus étendue en énergie linéique que pour les dépôts de poudre sur substrat dense car l'absence d'accroche sur le substrat ne permet pas l'atténuation des tensions superficielles. De plus, le balling n'existe pas lors de la refusion de substrats denses sans dépôt de poudre. Cette instabilité est caractérisée par la variation du facteur de forme l_{app}/e_{app} avec l_{app} la longueur du bain liquide. Toutefois, ce rapport nécessite la mesure des dimensions du bain liquide, difficilement mesurables autrement que par des mesures thermiques après un étalonnage en température vraie. On peut aussi connaitre ce facteur de forme en calculant la vitesse critique V_{crit} en deçà de laquelle le cordon est discontinu : $\frac{l_{app}}{e_{app}} = V_{crit} \cdot \sqrt{\frac{e_{app} \cdot \rho_l}{\gamma_{LV}}}$.

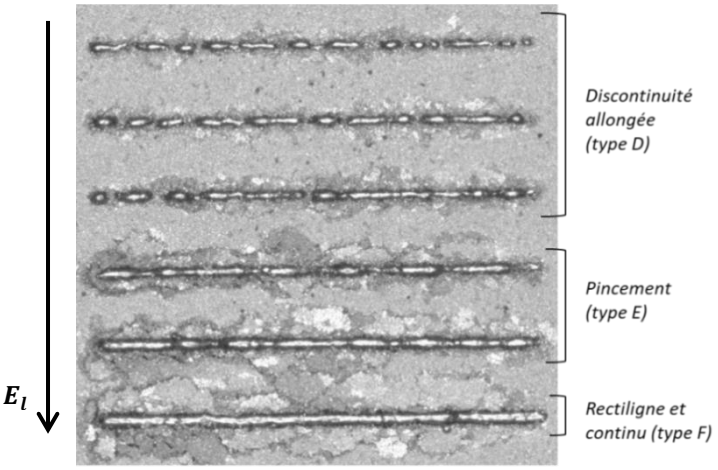


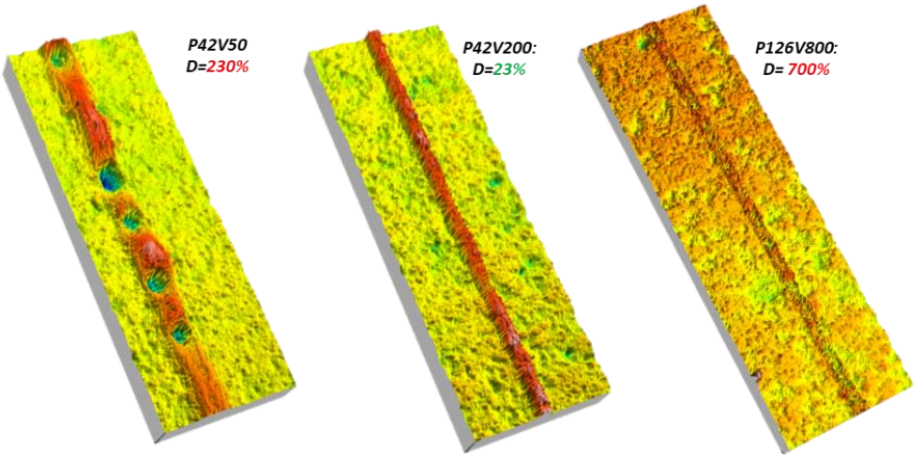
Figure VI-6 : Morphologies des bains de fusion sur compact {C_HA188} en fonction de l'énergie linéique croissante

b) Dispersion de la hauteur

Afin d'exclure les bains discontinus, non-rectilignes, présentant des porosités débouchantes, ou encore ayant subi un manque de consolidation ponctuel (issu des éjections de particules de poudre), il est intéressant d'utiliser un critère de dispersion D de la hauteur H_{app} du cordon et définie positivement telle que :

$$\boldsymbol{D} = \left| \frac{\boldsymbol{\sigma}}{\overline{\boldsymbol{H}}_{\boldsymbol{app}}} \right|$$

Où σ est l'écart-type associé aux mesures de H_{app} le long du cordon. La valeur maximale retenue arbitrairement pour D est de 50%. Au-delà, il s'agit de fortes dispersions liées à de la porosité débouchante ou à des manques de matière *(Figure VI-7)*.



a) b) c)

Figure VI-7 : Vues profilométriques de monocordons avec différentes valeurs de dispersion D de la hauteur pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} à $\Delta z_{poudre} = 57$ µm

Les cartographies {P, V} pour un Δz_{poudre} fixé permettent de comparer l'effet de l'ajout des **absorbants** aux poudres céramiques pures sur la dispersion de la hauteur le long de chaque cordon.
Dans le cas de l'Al_2O_3-ZrO_2 *(Figure VI-8)*, pour $\Delta z_{poudre} = 48$ µm, l'ajout de carbone supplémentaire réduit la fenêtre de construction correspondant à des conditions stables, à savoir $D \leq 50\%$. En effet, il a été montré au *Chapitre II* que la poudre de réception d'Al_2O_3-ZrO_2 contenait déjà des absorbants (0,11% en masse de carbone ainsi que du fer notamment).
Dans le cas de l'Al_2O_3 *(Figure VI-9)*, l'ajout de 0,1%m. de carbone à la poudre pure, pour $\Delta z_{poudre} =$ 60 et 85 µm est nettement bénéfique à la stabilité du cordon. Pour des teneurs en carbone encore plus importantes, l'effet sur la stabilité se réduit (augmentation de la dispersion D) et ceci, pour toutes les épaisseurs de poudre étudiées. Dans le cas de l'ajout de SiC-β, le même constat est fait *(Figure VI-10)*. On en conclut donc que l'ajout d'absorbant doit être minimal afin de ne pas déstabiliser le bain, par une combustion trop vive des absorbants. Il faut noter que dans le cas de la poudre d'Al_2O_3 dite *EMSE* enrichie en carbone *(Figure VI-11)*, la fenêtre de construction est inexistante, indiquant une quantité bien trop importante en absorbant, alors qu'il est uniformément distribué.
Par ailleurs, pour une teneur et une épaisseur de poudre équivalentes, notamment pour 0,1% en masse d'absorbant et un $\Delta z_{poudre} \approx 95$ µm, le SiC-β et le carbone mélangés à l'Al_2O_3 ont le même pouvoir stabilisant avec une fenêtre de construction similaire. Toutefois, à plus forte teneur en absorbant (1%m. et $\Delta z_{poudre} \approx 50$ µm), le carbone induit une plus large fenêtre de construction que le SiC-β.

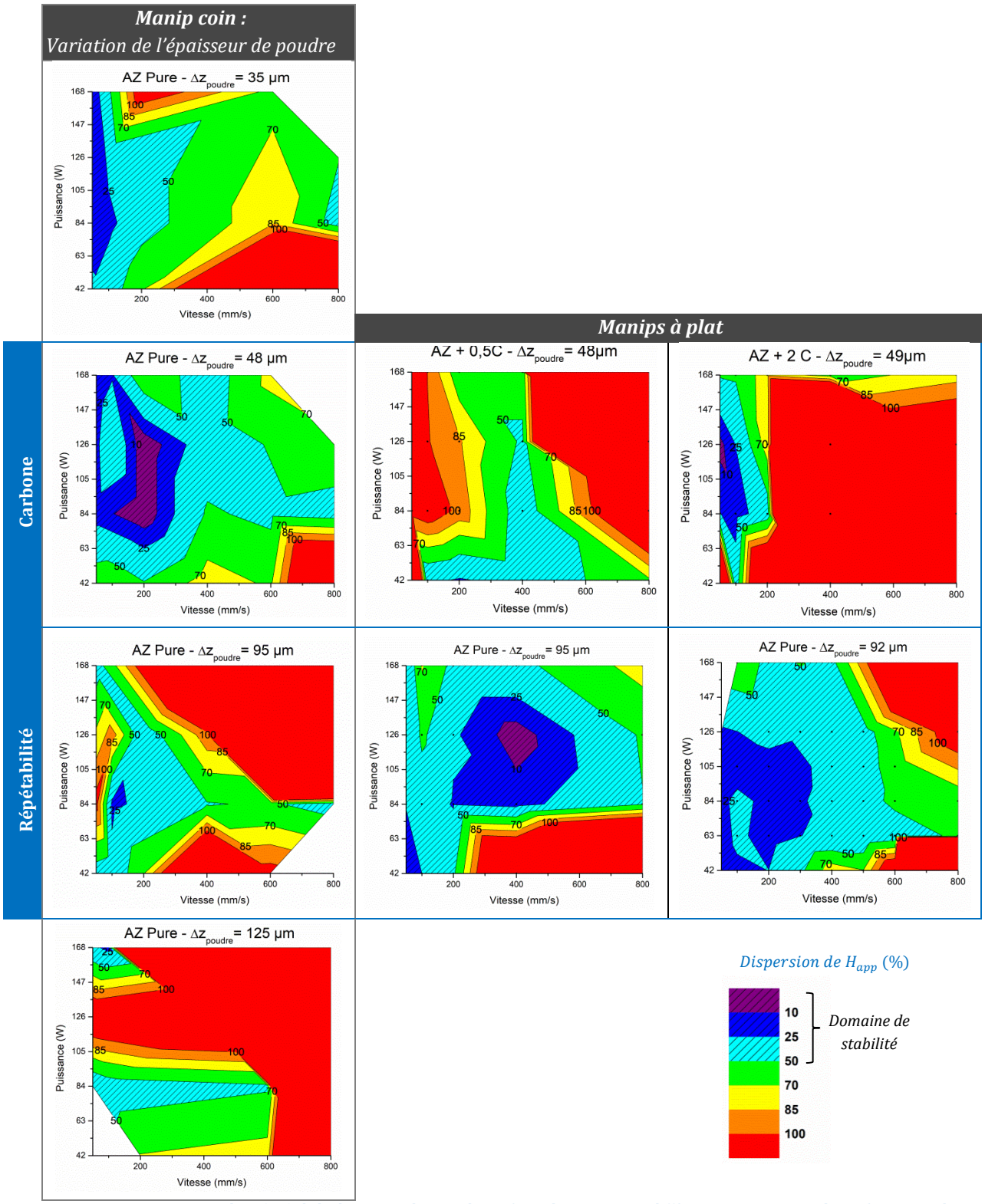


Figure VI-8 : Cartographies (P,V) de la dispersion de H_{app} du système Al_2O_3-ZrO_2 pour différentes teneurs en carbone, épaisseurs de poudre et configurations (manip coin ou à plat)

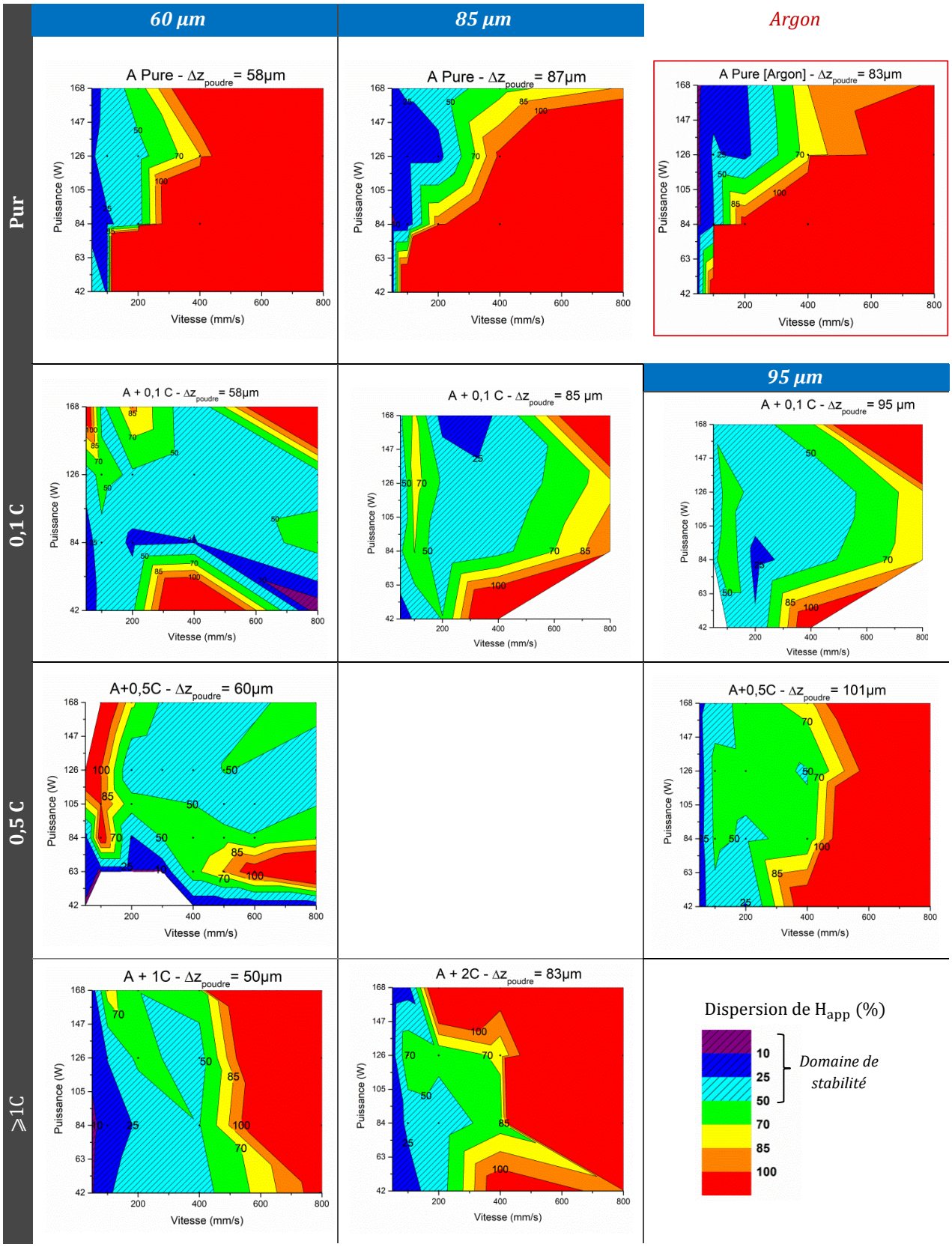


Figure VI-9 : Cartographies (P,V) de la dispersion de H_{app} du système Al_2O_3 pour différentes teneurs en carbone, épaisseurs de poudre et atmosphère de travail (air ou argon)

Les cartographies mettent également en évidence l'effet de l'**épaisseur de poudre** Δz_{poudre} sur la dispersion D. Pour l'Al_2O_3-ZrO_2 de réception *(Figure VI-8)*, le domaine de construction le plus étendu est obtenu pour une épaisseur de poudre intermédiaire, soit 48 µm. Pour l'Al_2O_3 pure *(Figure VI-9)*, l'augmentation de Δz_{poudre} de 58 à 87 µm ne présente pas de tendance marquée. En revanche, avec l'augmentation de la teneur en absorbant (pour 0,1%m.C et surtout 0,5%m.C), l'augmentation de Δz_{poudre} de 60 à 101 µm est clairement néfaste. L'interaction du faisceau laser avec les nombreuses sources de carbone conduit irrémédiablement à une déstabilisation des bains suite à une forte combustion du carbone.

La **répétabilité** de la stabilité des bains a également été évaluée dans le cas de l'Al_2O_3-ZrO_2 ($\Delta z_{poudre} \approx 95\mu m$) – *Figure VI-8*. Cette répétabilité est effective sauf aux fortes puissances et fortes vitesses de balayage. Il est fort possible que les éjections de particules de poudre soient à l'origine de cette différence.

Enfin, l'**atmosphère de travail** (air ou argon) dans le cas de l'Al_2O_3 pure ne démontre aucun effet marqué sur la dispersion de la hauteur des cordons *(Figure VI-9)*.

La dispersion de la hauteur du cordon à elle seule ne suffit pas à rendre compte de la stabilité des bains car les cordons du mode keyhole à tête de clou plate satisfont ce critère alors qu'ils présentent clairement une profondeur de pénétration trop importante. Il convient alors de définir des critères supplémentaires et notamment des critères reposant sur des facteurs de forme.

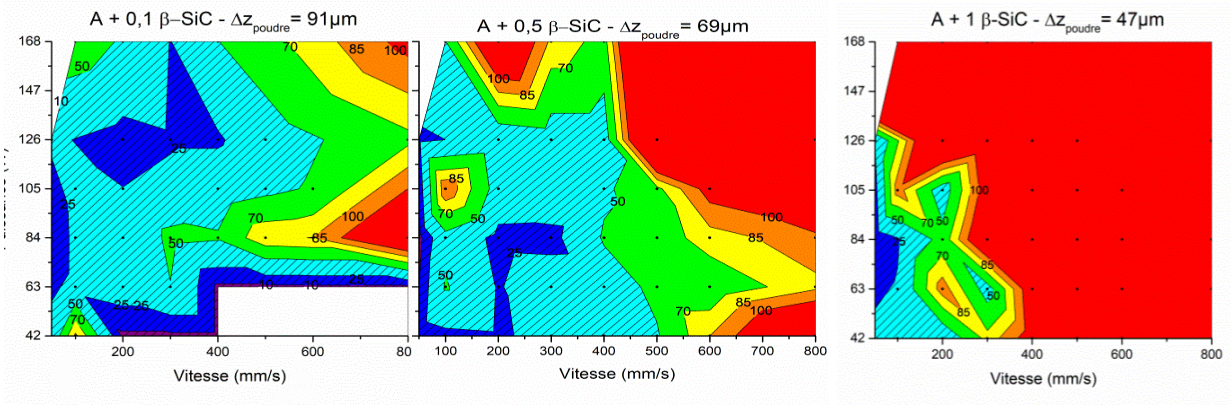


Figure VI-10 : Cartographies (P,V) de la dispersion de H_{app} du système Al_2O_3 pour différentes teneurs en SiC-β

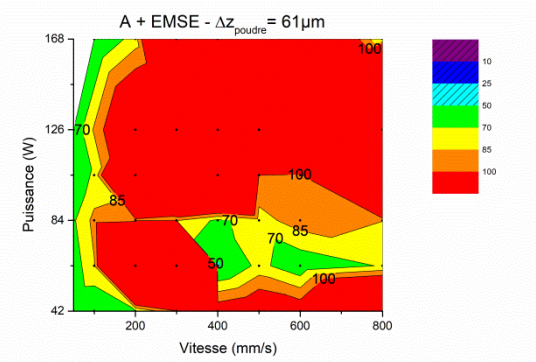


Figure VI-11 : Cartographie (P,V) de la dispersion de H_{app} du système PA+EMSE_SA

VI.1.1.2 Facteurs de forme

Afin de garantir la stabilité géométrique des constructions, les cordons doivent être mouillants pour assurer une planéité des couches et les zones refondues doivent être suffisamment profondes pour permettre une accroche et une « cicatrisation » des éventuels défauts présents dans la couche sous-jacente. Six grandeurs interdépendantes permettent la description morphologique d'un bain :

- rapport d'élancement du cordon : $r_e^{cordon} = \frac{H_{app}}{e_{app}}$
- rapport d'élancement de la zone refondue : $r_e^{ZR} = \frac{H_{ZR}}{e_{app}}$
- la somme de ces deux grandeurs, correspondant au rapport d'élancement du bain par rapport à sa hauteur : $r_e^{bain} = \frac{H_{bain}}{e_{app}}$
- le nombre de couches refondues $N_{CR} = \frac{H_{ZR}}{H_{app}}$; lié à la dilution $Dil = \frac{H_{ZR}}{H_{bain}} = \frac{r_e^{ZR}}{r_e^{bain}} = \frac{1}{N_{CR}^{-1}+1}$. En général, pour les matériaux métalliques opaques au rayonnement laser, ce nombre de couches refondues se situe entre 1 et 3 soit une dilution de 50 à 75%.
- les angles de mouillage θ et de dilution α
- le rapport d'élancement du bain par rapport à sa longueur : $r_e^{bain\ L} = l_{app}/e_{app}$ (rapport rendant compte de l'instabilité de Plateau-Rayleigh sans influence de la gravité).

Les sections transverses des bains métalliques dans la fenêtre de construction sont modélisées par deux cercles dont les rayons ne sont pas forcément égaux. Par exemple pour l'alliage 42CD4 (Marcos, 2018), les enveloppes supérieure du bain (la calotte) et inférieure (la zone refondue) sont approximées par deux segments circulaires, qui sont chacun définis par un angle caractéristique : pour la partie supérieure, il s'agit de l'angle de mouillage θ et pour la partie inférieure, il s'agit de l'angle de dilution α *(Figure VI-12.a-b)*. La typologie des bains fondus est directement liée à la variation de ces deux angles θ et α avec certains rapports d'élancement du bain (r_e^{cordon} *et* r_e^{ZR}). Néanmoins, une déviation du **modèle à deux cercles** aux plus fortes énergies linéiques est observée : la zone refondue est alors décrite sous la forme d'un triangle arrondi sur le sommet inférieur *(Figure VI-12.c)*.
Lorsque $\theta = \alpha = 90°$, on retrouve le **modèle à un cercle**, cas particulier du modèle à deux cercles applicable par exemple à l'alliage C263 (Vinson, 2015).

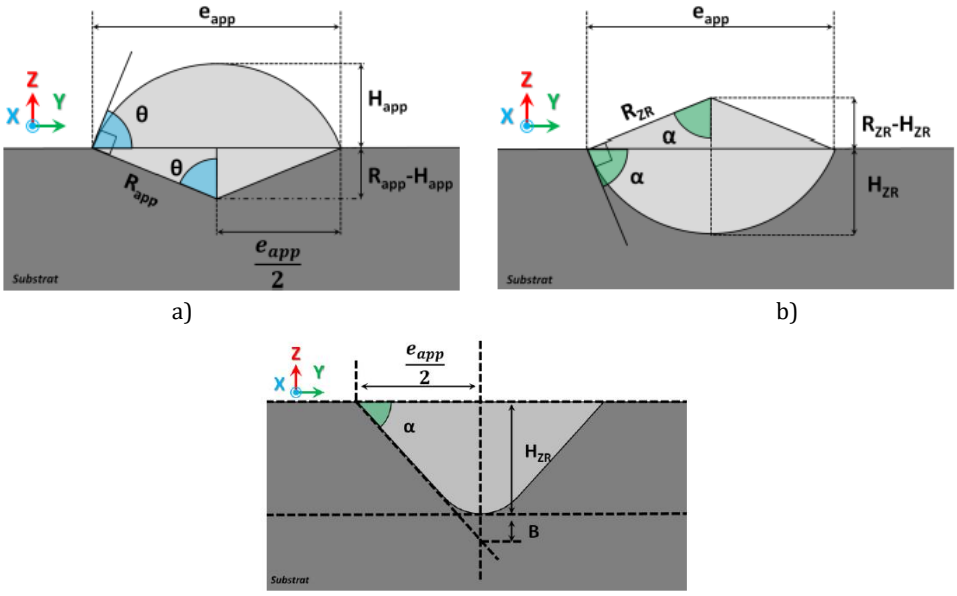


Figure VI-12 : Schématisation de sections de bains de configurations différentes : a) calotte supérieure d'angle de mouillage θ ; b) calotte inférieure d'angle de dilution α ; c) zone refondue triangulaire d'après (Marcos, 2018)

Les relations géométriques définies par les arcs de cercle permettent d'exprimer les rapports d'élancement suivants :

$$r_e^{cordon} = \frac{1-\cos\theta}{2.\sin\theta} = \frac{1}{2}.\tan\frac{\theta}{2} \qquad \text{VI.1}$$

$$r_e^{ZR} = \frac{1-\cos\alpha}{2.\sin\alpha} = \frac{1}{2}.\tan\frac{\alpha}{2} = \frac{1}{4.r_e^{cordon}}.\tan\frac{\theta}{2}.\tan\frac{\alpha}{2} \qquad \text{VI.2}$$

Et par combinaison :

$$r_e^{bain} = \frac{1}{2}\left[\tan\left(\frac{\theta}{2}\right) + \tan\left(\frac{\alpha}{2}\right)\right]$$

$$Dil = \left(1 + \frac{\tan\left(\frac{\theta}{2}\right)}{\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right)}\right)^{-1}$$

Les angles caractéristiques du « cas circulaire » sont fonction des rapports d'élancement :

$$\begin{cases} \theta = \arcsin\left(\dfrac{1}{\dfrac{1}{4.r_e^{cordon}} + r_e^{cordon}}\right) \text{ pour } 0° \leq \theta \leq 90°, \text{pour } 0 < r_e^{cordon} \leq 0{,}5 \\ \theta = 2.\arctan\left(2.r_e^{cordon}\right) \text{ pour } 0° \leq \theta \leq 180°, \text{pour tout } r_e^{cordon} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \alpha = \arcsin\left(\dfrac{1}{\dfrac{1}{4.r_e^{ZR}} + r_e^{ZR}}\right) \text{ pour } 0° \leq \alpha \leq 90°, \text{pour } 0 < r_e^{ZR} \leq 0{,}5 \\ \alpha = 2.\arctan(2.r_e^{ZR}) \text{ pour } 0° \leq \alpha \leq 90°, \text{pour } 0 \leq r_e^{ZR} \leq 0{,}5 \end{cases}$$

Pour le « cas triangulaire » :

$$\alpha = \arctan\left(2.r_e^{ZR} + (1 - 0{,}4.r_e^{ZR})\right) \text{ pour } 45° \leq \alpha \leq 66°, \text{pour } 0 \leq r_e^{ZR} \leq 0{,}8$$

Dans le *Chapitre V*, il a été démontré que la section des zones refondues des céramiques oxydes dans la fenêtre de construction correspondait très bien à la section d'une parabole. Aux faibles énergies linéiques, cette section parabolique peut être assimilée dans une certaine mesure, à la section d'un segment circulaire. Aux fortes énergies linéiques, c'est la forme triangulaire arrondie schématisée pour les matériaux métalliques qui est la forme de référence pour la zone refondue *(Figure VI-13 et Figure VI-14)*. Aux très faibles énergies linéiques, la section du cordon s'apparente à celle d'un cercle sans zone de refusion, il s'agit là du balling sans accroche.

Les observations des cordons au MEB en vue de dessus permettent de repérer rapidement les cordons discontinus. Les coupes transverses sont complémentaires et permettent d'informer sur leur profondeur et ainsi rendre compte du régime keyhole, qui est associé à une profondeur H_{zr} supérieure à 210 µm.

Figure VI-13 : Section transverse des monocordons pour {PAZ_SAZ}
(échelle 100 µm sauf exception – légende : énergie linéique en J.mm^{-1})

La comparaison des valeurs relevées expérimentalement *(Figure VI-15)*, montre que, d'une part, la variation de l'**angle de mouillage θ** semble suivre le modèle à deux cercles. Toutefois, les valeurs expérimentales sont très dispersées et il est difficile de distinguer les différentes typologies de bains (keyhole, continus,…), et ceci, quel que soit le système étudié. En effet, il apparaît insuffisant de relever les angles de mouillage sur une seule coupe transverse du cordon pour distinguer le *balling* du *keyhole*. Cet aspect est probablement lié à l'hétérogénéité de l'absorbant présent dans le lit de poudre et rejoint la forte dispersion observée avec la largeur des cordons e_{app} lorsque la teneur en absorbant augmente. Il apparait néanmoins que les cordons discontinus sont liés à de forts angles de mouillage θ et rapports d'élancement du cordon r_e^{cordon}. A l'inverse, les cordons de type *keyhole* sont plutôt liés à de faibles valeurs de θ et de r_e^{cordon} *(Figure VI-15).*

Les **angles de dilution α** des bains discontinus (à faible r_e^{ZR}) et des bains de type *keyhole* (à fort r_e^{ZR}) suivent très bien le modèle à deux cercles. Le keyhole peut effectivement présenter une section circulaire en partie supérieure et une section parabolique en partie inferieure liée à la formation du capillaire. En général, dans le cas des cordons continus, la variation de l'angle α suit le modèle triangulaire.

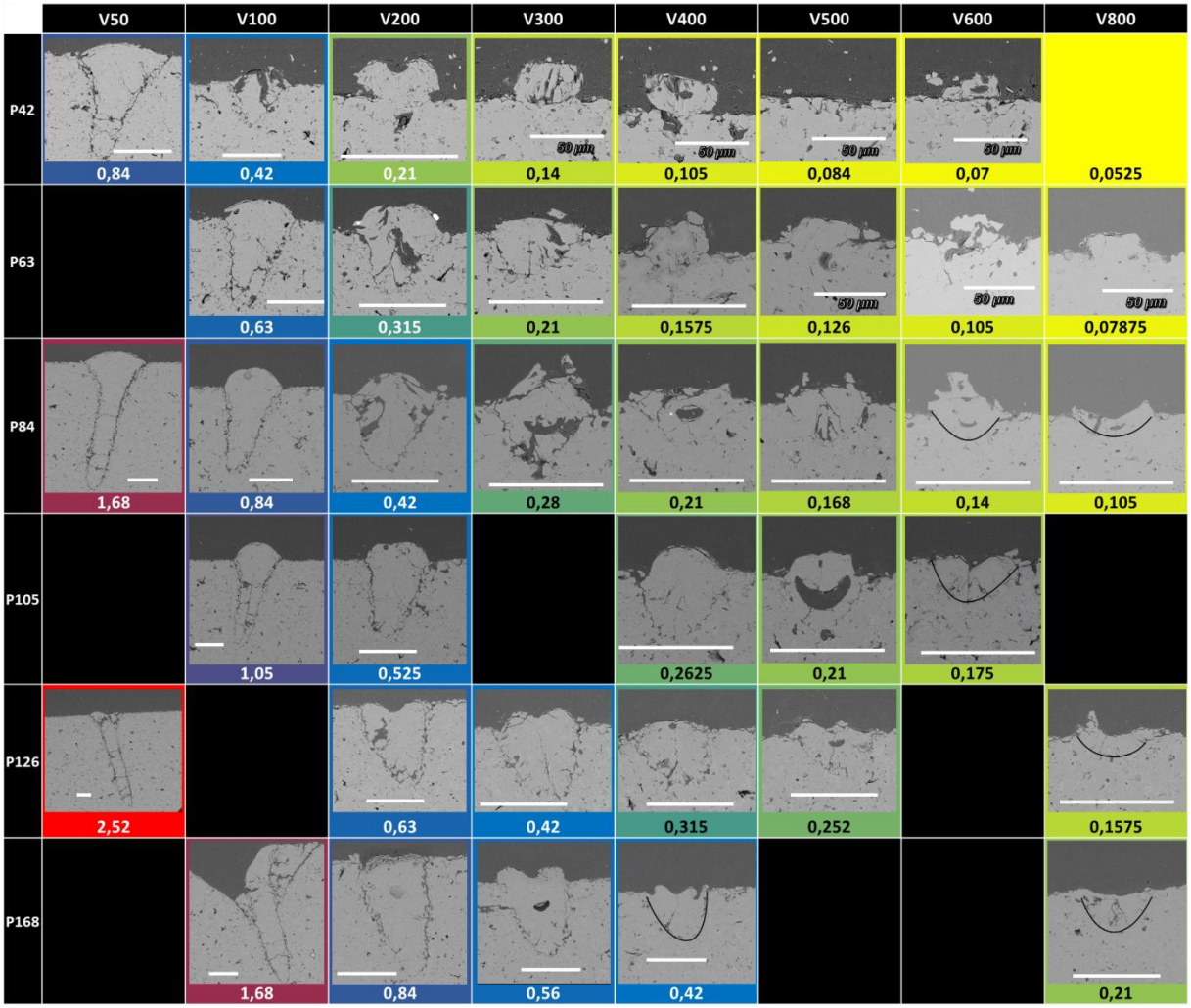
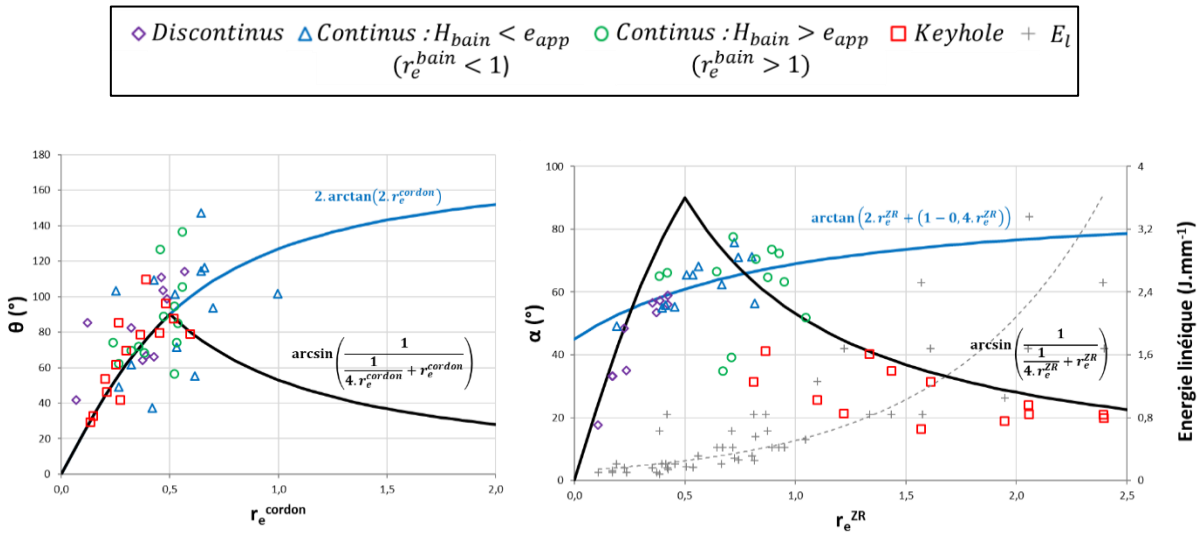
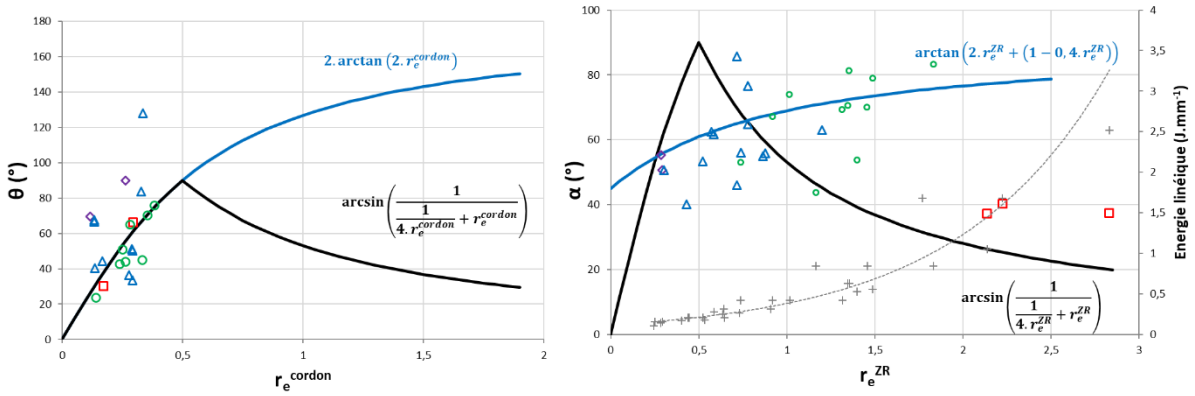


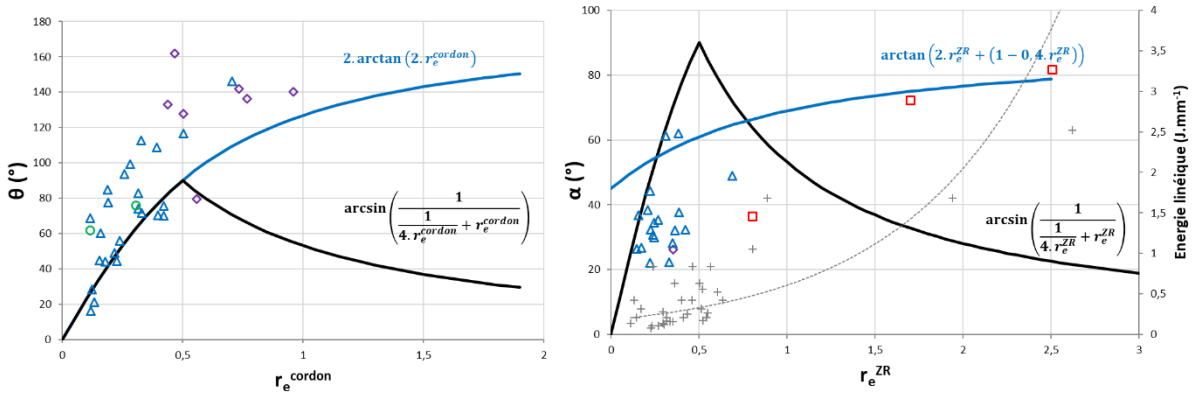
Figure VI-14 : Section transverse des monocordons pour {PA+0,1C_SA}
(échelle 100 µm sauf exception – légende : énergie linéique en J.mm⁻¹)



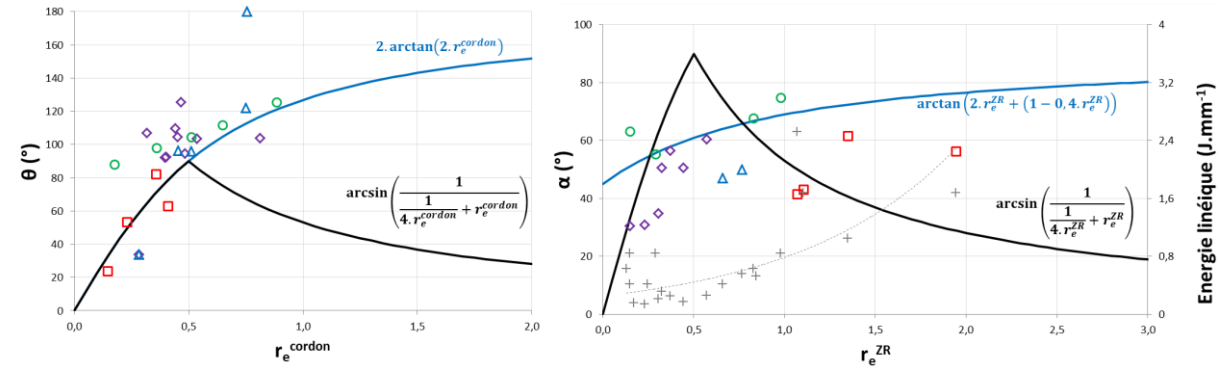
a) **AZ** (Δz_{poudre}=92 µm)



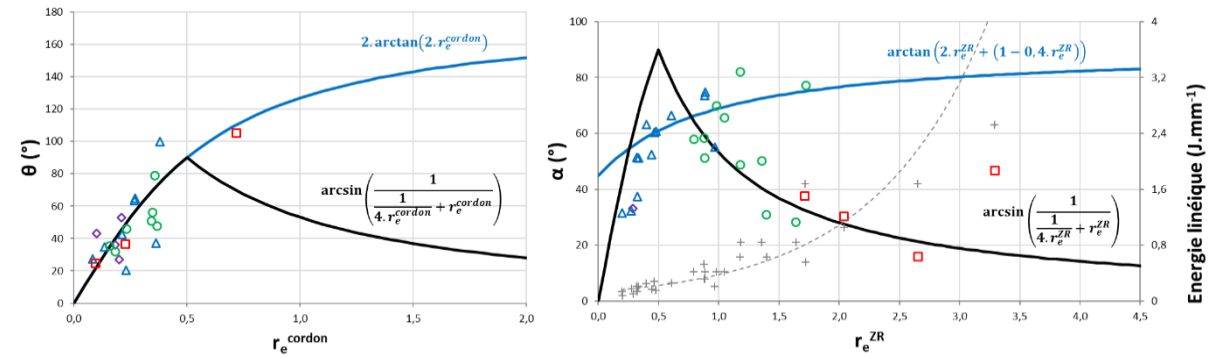
b) **A+0,1C** (Δz_{poudre}=58 µm)



c) **A+0,5C** (Δz_{poudre}=60 µm)



d) **A+0,1SiC** (Δz_{poudre}=91 µm)



e) **A+0,5SiC** (Δz_{poudre}=69 µm)

Figure VI-15 : Angles de mouillage et de dilution pour différents systèmes {LDP+Substrat}

Il est possible de combiner les équations des rapports d'élancement, en posant $\boldsymbol{\beta = \tan\left(\frac{\theta}{2}\right).\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right)}$ qui vaut $\boldsymbol{\beta = 1}$ dans le modèle du cercle puisque $\boldsymbol{\theta + \alpha = \pi}$, soit $\frac{\theta}{2} = \frac{\pi}{2} - \frac{\alpha}{2}$ *(Tableau VI-2).*

Tableau VI-2 : Relations entre les différents rapports d'élancement

	r_e^{ZR} et r_e^{cordon}	r_e^{ZR} et r_e^{bain}	r_e^{cordon} et r_e^{bain}
Modèle à deux cercles	$r_e^{ZR} = \frac{0{,}25\,.\,\beta}{r_e^{cordon}}$	$r_e^{ZR} = \frac{0{,}25.\beta}{r_e^{bain} - r_e^{ZR}}$ $(r_e^{ZR})^2 - r_e^{bain}.r_e^{ZR} + 0{,}25.\beta = 0$	$r_e^{bain} = \frac{0{,}25.\beta + (r_e^{cordon})^2}{r_e^{cordon}}$ $(r_e^{cordon})^2 - r_e^{bain}.r_e^{cordon} + 0{,}25.\beta = 0$
Modèle du cercle	$r_e^{ZR} = \frac{0{,}25}{r_e^{cordon}}$	$r_e^{ZR} = \frac{0{,}25}{r_e^{bain} - r_e^{ZR}}$ $(r_e^{ZR})^2 - r_e^{bain}.r_e^{ZR} + 0{,}25 = 0$	$r_e^{ZR} = \frac{0{,}25 + (r_e^{cordon})^2}{r_e^{cordon}}$ $(r_e^{cordon})^2 - r_e^{bain}.r_e^{cordon} + 0{,}25 = 0$
Relation avec Dil	$r_e^{ZR} = \frac{Dil}{1 - Dil}.r_e^{cordon}$	$r_e^{ZR} = Dil.r_e^{bain}$	$r_e^{cordon} = (1 - Dil).r_e^{bain}$

L'expression de r_e^{ZR} en fonction de r_e^{bain} semble pertinente pour différencier clairement les morphologies de bains *(Figure VI-16)*. Chacune des morphologies correspond à une gamme de valeurs de Dil, de r_e^{ZR} et de r_e^{bain}.

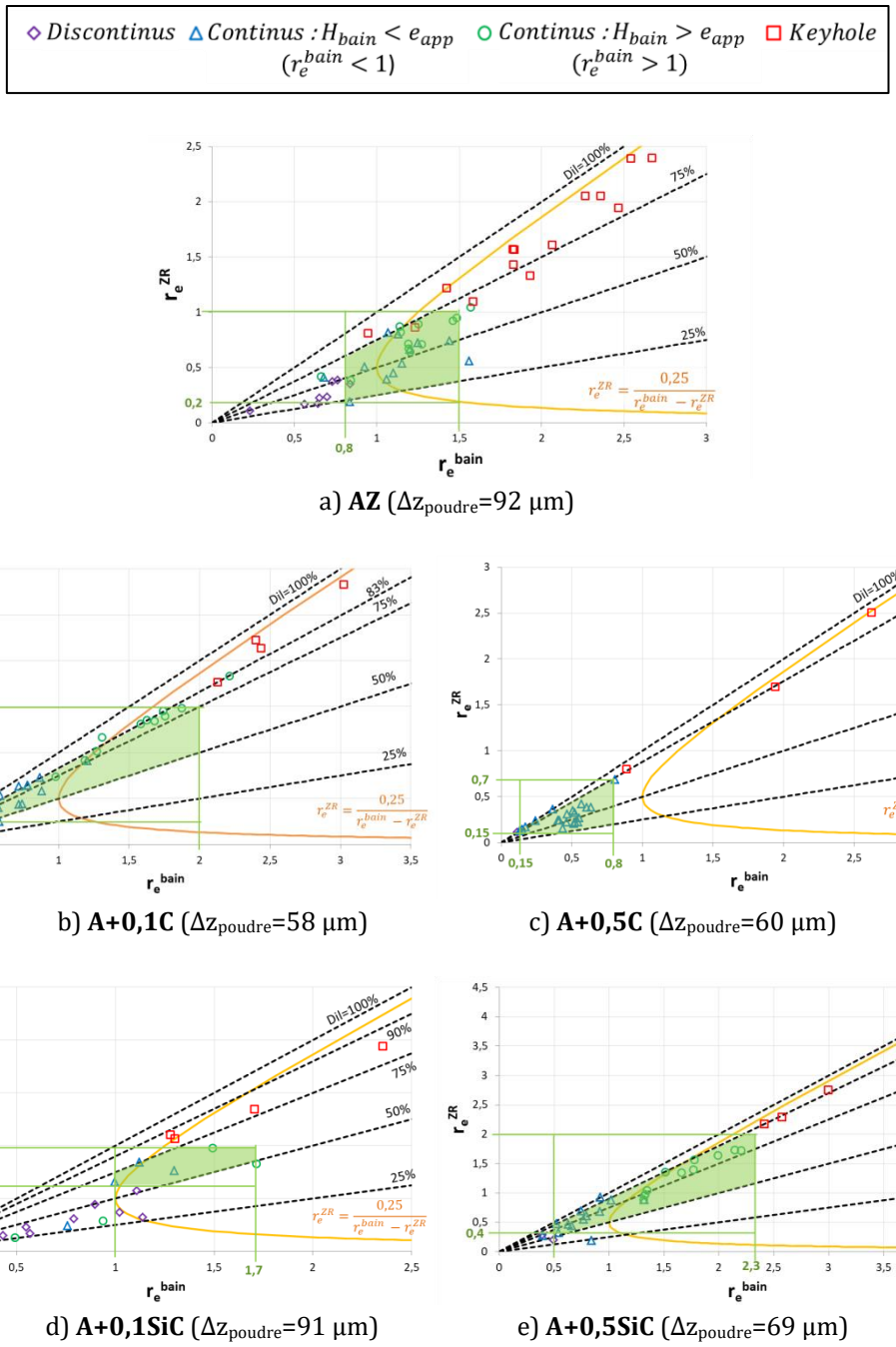
Il est clair que les morphologies des bains ne suivent pas le modèle du cercle défini par $r_e^{ZR} = \frac{0{,}25}{r_e^{bain} - r_e^{ZR}}$. Contrairement aux matériaux métalliques, le cas où $r_e^{bain} \geq 1$ *soit* $H_{bain} \geq e_{app}$, fait partie des bains représentatifs des matériaux céramiques. De fait, les rapports d'élancement r_e^{ZR} *et* r_e^{bain} varient dans une large gamme (de 0,1 jusqu'à 4,5) pour les matériaux céramiques. Par ailleurs, pour une même gamme d'énergies linéiques et une même épaisseur de poudre, le taux de porosité du lit de poudre et les températures de fusion des céramiques sont bien supérieurs à ceux des métaux, ce qui amplifie le retrait à la consolidation et diminue la hauteur du cordon consolidé. De plus, la fusion de la céramique semi-transparente aboutit à la formation de bains bien plus profonds que les métaux. Nous avons alors : $H_{app}^{métal} > H_{app}^{céram}$ *et* $H_{ZR}^{céram} > H_{ZR}^{métal}$, et ceci est d'autant plus vrai que l'énergie linéique est importante. Ce qui implique donc des valeurs de rapport d'élancement nettement plus élevées pour les céramiques que pour les métaux.

Rappelons que **les morphologies des sections des bains métalliques dits stables**, i.e. en forme de « poire » ou d'un cercle parfaitement adhérent au substrat sont définies par les facteurs de forme suivants (Vinson, 2015) :

$$\mathbf{0,2 \leq r_e^{ZR} = \frac{H_{ZR}}{e_{app}} \leq 0,5\,;} \qquad \mathbf{0,2 \leq r_e^{cordon} = \frac{H_{app}}{e_{app}} \leq 0,5} \qquad ;$$

$$\mathbf{1 \leq N_{CR} = \frac{H_{ZR}}{H_{app}} \leq 3} \text{ soit } \mathbf{50\% < Dil < 75\%}$$

Selon ces critères, la refusion intervient au maximum sur 3 couches. Cette refusion relativement profonde permet d'éliminer les porosités emprisonnées dans les couches sous-jacentes. L'application de ces critères aux matériaux céramiques permet l'identification d'un domaine de stabilité 1D très étroit voire inexistant. Par conséquent, il convient de modifier ces critères géométriques afin d'élargir la fenêtre de stabilité en y incluant des profondeurs de bains plus importantes et propres aux monocordons céramiques. Les abaques de la *Figure VI-16*, permettent de redéfinir les critères de stabilité pour chaque système *(Tableau VI-3)*. Signalons que malgré l'existence des cordons à morphologie continue pour $Dil < 50\%$, il ne convient pas de retenir une valeur inférieure pour la construction.



a) **AZ** (Δz_{poudre}=92 µm)

b) **A+0,1C** (Δz_{poudre}=58 µm)

c) **A+0,5C** (Δz_{poudre}=60 µm)

d) **A+0,1SiC** (Δz_{poudre}=91 µm)

e) **A+0,5SiC** (Δz_{poudre}=69 µm)

Figure VI-16 : Abaque représentant r_e^{ZR} en fonction de r_e^{bain} avec les taux de dilution pour différents systèmes {LDP+Substrat}

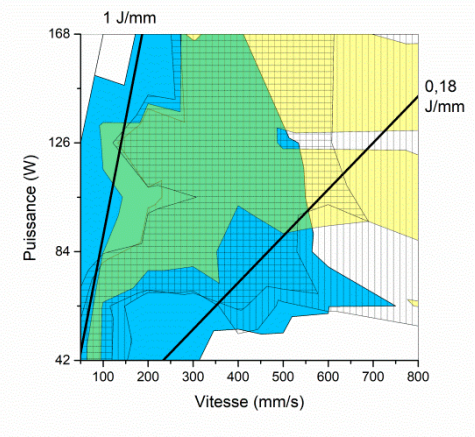
Tableau VI-3 : Valeurs limites des facteurs de forme céramiques des céramique étudiées

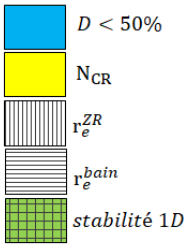
	$r_e^{bain} = \frac{H_{bain}}{e_{app}}$	$r_e^{ZR} = \frac{H_{ZR}}{e_{app}}$	$Dil = \frac{H_{ZR}}{H_{bain}}$	$N_{CR} = \frac{H_{ZR}}{H_{app}}$
AZ	$0,8 \leq x \leq 1,5$	$0,4 \leq x \leq 1,0$	$50\ \% \leq x \leq 75\ \%$	$1 \leq x \leq 3$
A +0,1C	$0,5 \leq x \leq 2,0$	$0,25 \leq x \leq 1,5$	$50\ \% \leq x \leq 83\%$	$1 \leq x \leq 5$
A +0,5C	$0,15 \leq x \leq 0,80$	$0,15 \leq x \leq 0,70$	$50\ \% \leq x \leq 88\%$	$1 \leq x \leq 7,5$
A +0,1SiC	$1,0 \leq x \leq 1,7$	$0,6 \leq x \leq 1,0$	$50\ \% \leq x \leq 75\ \%$	$1 \leq x \leq 3$
A +0,5SiC	$0,5 \leq x \leq 2,3$	$0,4 \leq x \leq 2,0$	$50\% \leq x \leq 90\%$	$1 \leq x \leq 9$

L'augmentation de la teneur en absorbant change les gammes de valeurs de Dil, de r_e^{ZR} et de r_e^{bain} associées à chaque morphologie. L'addition de carbone supplémentaire *(Figure VI-16.b-c et Tableau VI-3)* induit la réduction de la plage des rapports d'élancement correspondant à une morphologie continue des cordons. L'addition d'une plus grande quantité de SiC-β *(Figure VI-16.d-e et Tableau VI-3)* a l'effet inverse de celui observé avec le carbone : le domaine de continuité des cordons est élargi. Cette observation est cohérente avec les mesures optiques du *Chapitre IV* qui mettaient en évidence l'effet de diffusion du rayonnement par le SiC-β.
Dans les deux cas, l'augmentation de la teneur en absorbant permet la diminution les rapports d'élancement r_e^{ZR} et r_e^{bain} des cordons continus et donc de retrouver les morphologies de cordons des matériaux métalliques.
On remarque cependant que l'augmentation du rapport de dilution Dil et du nombre de couches refondues N_{CR} est en lien avec l'ajout d'absorbant. Il est donc primordial d'adapter les critères de stabilité des cordons à chacun des systèmes étudiés.

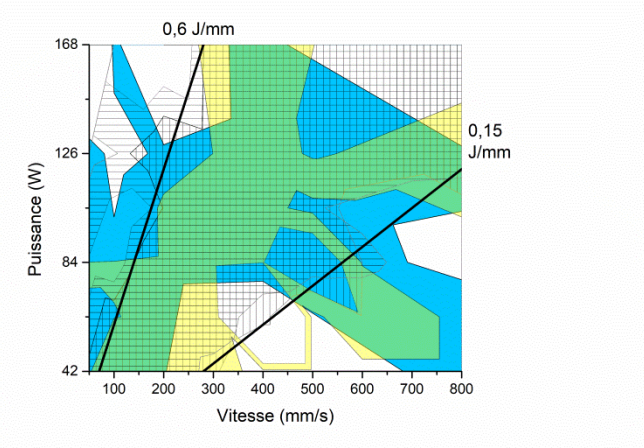
VI.1.2 Fenêtre de stabilité

La combinaison des critères de stabilité définis par les facteurs de forme (r_e^{ZR}, r_e^{bain}) et la dispersion D de la hauteur des cordons définissent la fenêtre de stabilité pour les systèmes étudiés *(zone verte quadrillée de la Figure VI-17)*. On peut également estimer une fenêtre de stabilité en énergie linéique. On remarque cependant qu'il n'est pas possible d'augmenter indéfiniment la vitesse et la puissance sans sortir du domaine de stabilité, ce qui implique que le débit de construction et donc la productivité seront nécessairement limités.
En tout état de cause, le domaine de construction stable semble limité. Globalement, la gamme d'énergie linéique recherchée est comprise entre 0,2 et 1 J.mm^{-1}, voire bien en dessous de 1 J.mm^{-1} pour un faible taux de carbone. Le domaine de stabilité 1D de l'alumine-zircone est relativement large. Concernant les alumines, une teneur faible en carbone (0,1%m.C) et intermédiaire en SiC-β (0,5%m. SiC-β) présentent des domaines de construction plus larges que les autres teneurs pour une même nature d'absorbant.

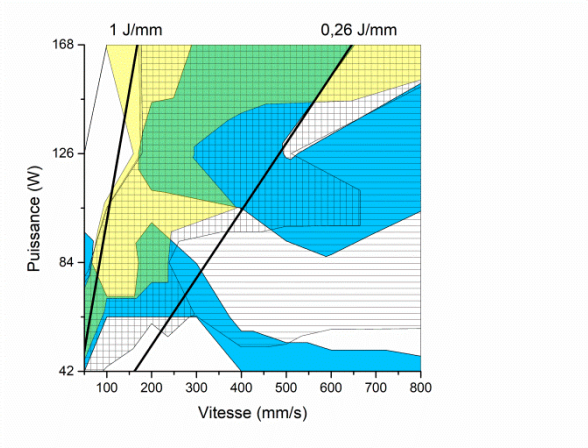




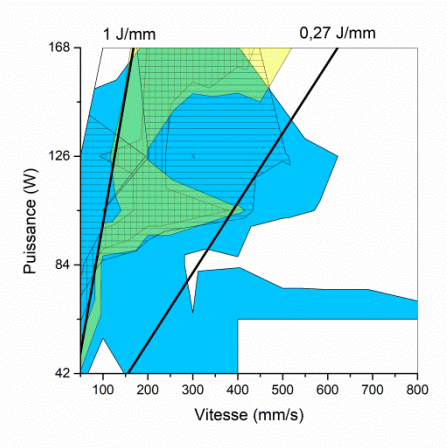
AZ (Δz_{poudre}=92 µm)



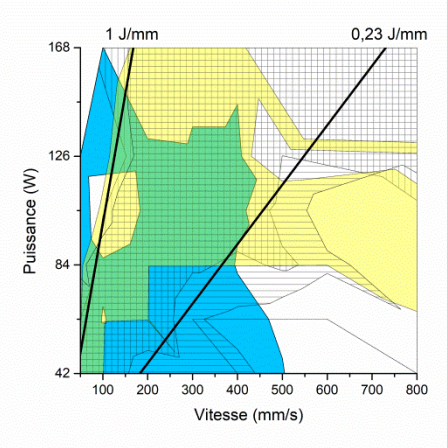
A+0,1C (Δz_{poudre}=58 µm)



A+0,5C (Δz_{poudre}=60 µm)



A+0,1SiC (Δz_{poudre}=91 µm)



A+0,5SiC (Δz_{poudre}=69 µm)

Figure VI-17 : Domaines de stabilité pour les différents systèmes {LDP+Substrat}

VI.1.3 Ejections

Il est important de différencier les particules solides sous leur forme initiale éjectées à partir d'une zone dite « dénudée » (poudre le long du cordon - *Figure VI-18*) ; par rapport aux particules éjectées à partir de la zone de consolidation, qu'elle soit solide (poudre en avant du bain) ou liquide. Les gouttelettes liquides éjectées du bain (ou éjectas liquides) sont bien souvent d'une taille supérieure aux particules de poudre initiale (Wang et al., 2017) et sont observables particulièrement pour les fortes énergies linéiques *(Figure VI-19)*.

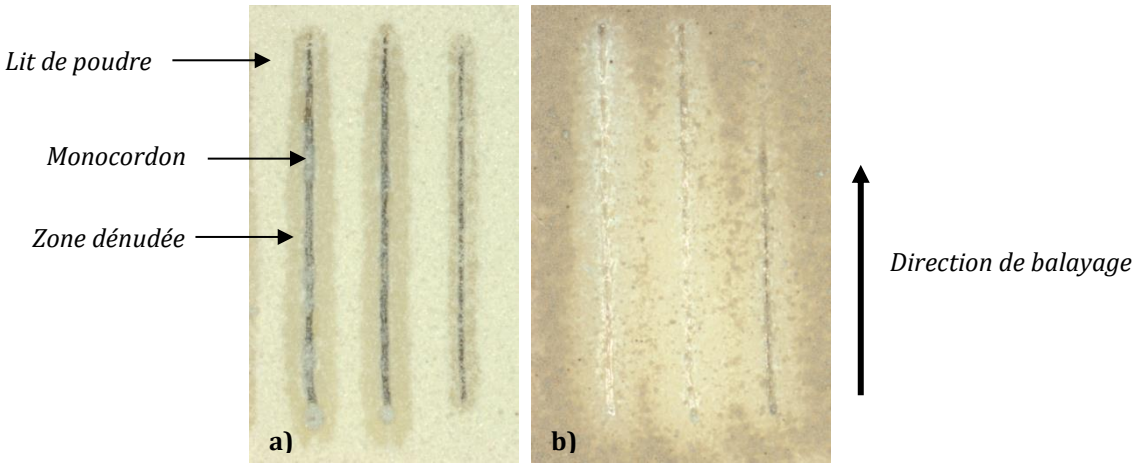
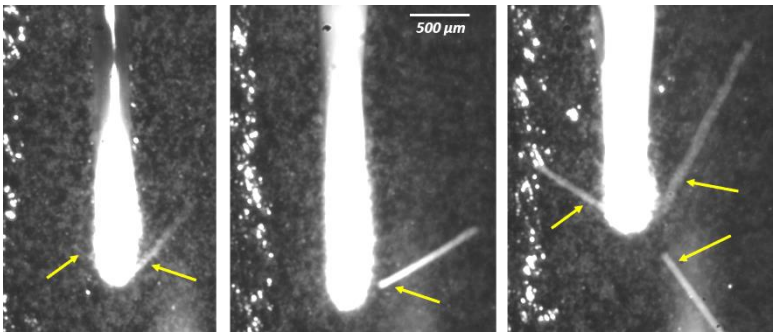


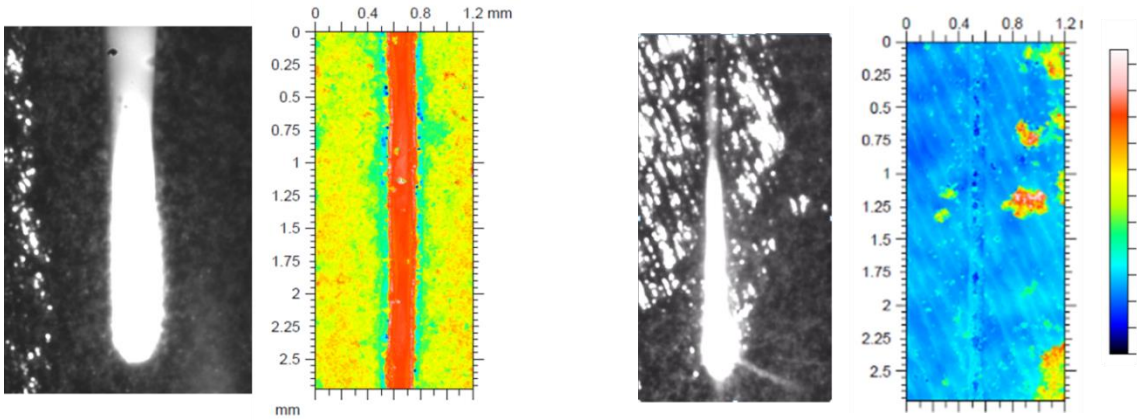
Figure VI-18 : Observation des cordons et de leurs zones dénudées a) PA+0,1C_SA b) PA-EMSE_SA



a) b) c)

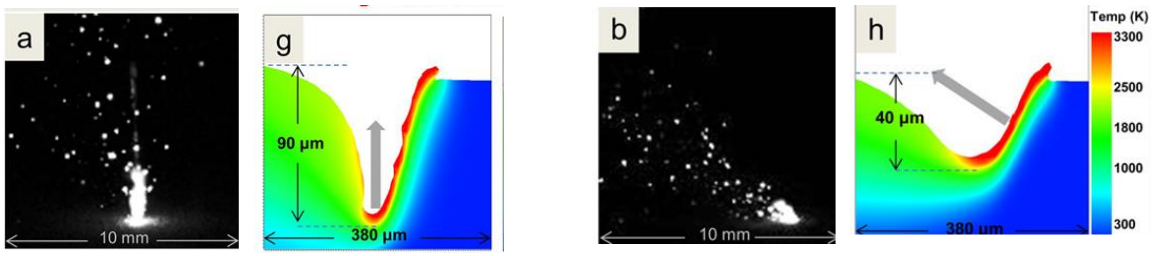
Figure VI-19 : Ejectas liquides observés pour les paramétries a)P84V50 b)P126V50 c)P168V50

D'après nos observations, le phénomène d'**éjections des particules de poudres solides de la zone dénudée** semble plus marqué pour les poudres céramiques que pour les poudres métalliques. Les enregistrements du bain de fusion par caméra rapide mettent clairement en évidence ce phénomène qui s'intensifie avec l'augmentation de la vitesse de balayage *(Figure VI-20)*. Ce phénomène a été observé sur les métaux (Matthews et al., 2016; Scipioni Bertoli et al., 2017). Ces auteurs indiquent que l'augmentation de la vitesse de balayage et de la puissance laser augmente la quantité de poudre éjectée de la zone dénudée. (Ly et al., 2017) suggèrent que ce phénomène est lié à la déformation de la surface du bain et à l'orientation du capillaire de vapeur *(Figure VI-21)*. Cette hypothèse est cohérente avec l'observation des zones dénudées : ces zones semblent plus larges à l'arrière du cordon et, à l'inverse, quasi-inexistantes en avant du cordon *(Figure VI-18)*.



a) b)

Figure VI-20 : Observation par caméra rapide de la zone de fusion des monocordons et des zones dénudées (à gauche) et mesures profilométriques (à droite) : a) faible zone dénudée pour P126V50-E$_i$2,52 et b) zone dénudée importante pour P126V400-E$_i$0,315



a) b)

Figure VI-21 : Vapeurs et éjéctas liquides pour des fortes (a) et des faibles (b) énergies linéiques (Ly et al., 2017)

Ce phénomène de dénudation n'est pas rédhibitoire pour une construction stable mais il devra être pris en compte lors de l'établissement de la stratégie de construction 3D. Cette dernière devra être différente de celle utilisée classiquement pour les matériaux métalliques puisque ces éjections, menant à l'absence de poudre de part et d'autre du cordon, ne conviennent pas à la consolidation de cordons juxtaposés.

VI.2 Modèles de consolidation du lit de poudre

VI.2.1 Conservation de la matière

Les modèles de consolidation uni- et bidirectionnelle de (Vilaro, 2011; Vinson, 2015) ont été développés en considérant que la section du LDP consolidée et la section transverse du cordon peuvent être respectivement assimilées à des sections rectangulaires $\boldsymbol{S_0 = \Delta z_{poudre}.e_i}$ et $\boldsymbol{S_{app} = H_{app}.e_{app}}$. De ces sections, des retraits axial RA et radial RR sont définis et sont supposés respecter la **conservation de la matière (absence d'évaporation) sans échange de matière d'une zone à l'autre** pour chacun de ces deux modèles. Le modèle bidirectionnel repose sur sur la définition du facteur d'anisotropie ψ :

$$\boldsymbol{\psi = \frac{RR}{RA}}$$

avec $\boldsymbol{RA = 1 - \frac{H_{app}}{\Delta z_{poudre}}}$ VI.3 Et $\boldsymbol{RR = 1 - \frac{e_{app}}{e_i}}$ VI.4

La porosité du lit de poudre Pt peut alors se calculer par la relation suivante :

$$\boldsymbol{Pt = 1 - \frac{S_{app}}{S_o} = 1 - \frac{H_{app}.e_{app}}{\Delta z_{poudre}.e_i} = RA[(1+\psi) - RA.\psi]} \qquad \text{VI.5}$$

Les trois modèles suivants ont été définis :

- **Modèle unidirectionnel ($\boldsymbol{\psi = 0\ et\ RR = 0}$)**: il repose uniquement sur la porosité du lit de poudre et rend compte de la seule consolidation verticale.
  La relation *(VI.5)* vaut alors : $Pt = RA$
  Et en remplaçant dans *VI.3*, $\boldsymbol{H_{app} = \Delta z_{poudre}.(1 - Pt)}$ VI.6

- **Modèle bidirectionnel isotrope ($\boldsymbol{\psi = 1\ et\ RA = RR}$)** : il considère que le retrait est le même verticalement et latéralement :
  La relation *(VI.5)* vaut alors : $Pt = 2RA - RA^2$ soit encore $1 - RA = (1 - Pt)^{1/2}$
  Et en remplaçant dans *VI.3*, $\boldsymbol{H_{app} = \Delta z_{poudre}.(1 - Pt)^{1/2}}$ VI.7
  avec $(1 - Pt)^{1/2} \approx .\left(1 - \frac{Pt}{2}\right) \quad si \quad 0 < Pt \leq 0{,}5$

- **Modèle bidirectionnel anisotrope ($0 < \psi < 1$ et $RA \neq RR$)** : il suppose que les retraits vertical et latéral sont différents :

La *relation (VI.5)* vaut alors : $$Pt = RA + RR - RR.RA = 1 - (1 - RA).(1 - RR) \quad \text{VI.8}$$

Soit $$1 - RA = \frac{1 - Pt}{1 - RR} = \frac{1 - Pt}{1 - \psi.RA}$$

Et en remplaçant dans *VI.3*, $$\boldsymbol{H_{app} = \Delta z_{poudre}.\frac{1 - Pt}{1 - \psi.RA}} \quad \text{VI.9}$$

Si on résout l'*équation (VI.5)* écrite sous la forme d'une équation de second degré :

$$\psi RA^2 - (1 + \psi)RA + Pt = 0$$

On retrouve la solution du modèle bidirectionnel isotrope pour $\psi = 1$:

$$H_{app} = \Delta z_{poudre}.\left[\frac{(\psi - 1) + \sqrt{(1 + \psi)^2 - 4\psi.Pt}}{2\psi}\right]$$

Le retrait axial RA est facilement mesurable expérimentalement à partir de Δz_{poudre} *et* H_{app}, tout comme la porosité Pt du lit de poudre *(Chapitre II)*, ce qui n'est pas le cas du retrait radial RR. Cette dernière grandeur est alors déduite du modèle bidirectionnel anisotrope, d'après la *relation (VI.8)* :

$$\boldsymbol{RR = \frac{Pt - RA}{1 - RA}}$$

Le modèle bidirectionnel anisotrope semblait être à l'époque le plus réaliste. Expérimentalement et quel que soit le modèle de consolidation supposé, les grandeurs H_{app} et donc RA varient avec l'énergie linéique à Pt et Δz_{poudre} constants. Pour l'alumine-zircone *(Figure VI-22 et Figure VI-23)*, le modèle bidirectionnel anisotrope permet l'identification de plusieurs domaines :

- **domaine 1 de contraction** : $\boldsymbol{RR > 0}$ **et** $\boldsymbol{RA > 0}$. Ce domaine est défini comme stable.
- **domaine 2 de contraction axiale et expansion radiale :** $\boldsymbol{RA > 0 > RR}$
- **domaine 3 de contraction radiale et expansion axiale** : $\boldsymbol{RA < 0 < RR}$

Les domaines d'expansion sont définis comme instables car ils ajoutent des instabilités géométriques pour la construction 2D et 3D. En effet, le gonflement axial va provoquer le blocage du racleur lors de l'étalement de la couche suivante, tandis que l'expansion latérale peut influencer (en l'absence ou non d'une zone dénudée) la consolidation du cordon juxtaposé lors de la construction 2D.

Le modèle de consolidation bidirectionnel anisotrope du lit de poudre se définit par les retraits axial RA et radial RR qui sont des grandeurs interdépendantes liées par le facteur d'anisotropie ψ. Or, d'après les mécanismes de l'interaction laser-matière étudiés aux *Chapitres IV et V*, **il semblerait que le retrait radial est un phénomène qui demande une cinétique bien plus grande que celle nécessaire pour former le bain.** Aussi, il convient de limiter la consolidation du LDP au seul retrait axial. Après que le bain se soit formé (fusion de la poudre et dilution du substrat), le laser reste constamment sur le bain et maintient sa température. **L'alimentation du bain en particules de poudre se fait essentiellement par des particules solides qui tombent à l'avant du bain et dans une moindre mesure, par des particules solides qui proviennent de la zone dénudée**. Ces particules qui alimentent le bain doivent diminuer quelque peu la température du bain et provoquer une augmentation de la tension de surface du liquide γ_{LV}.

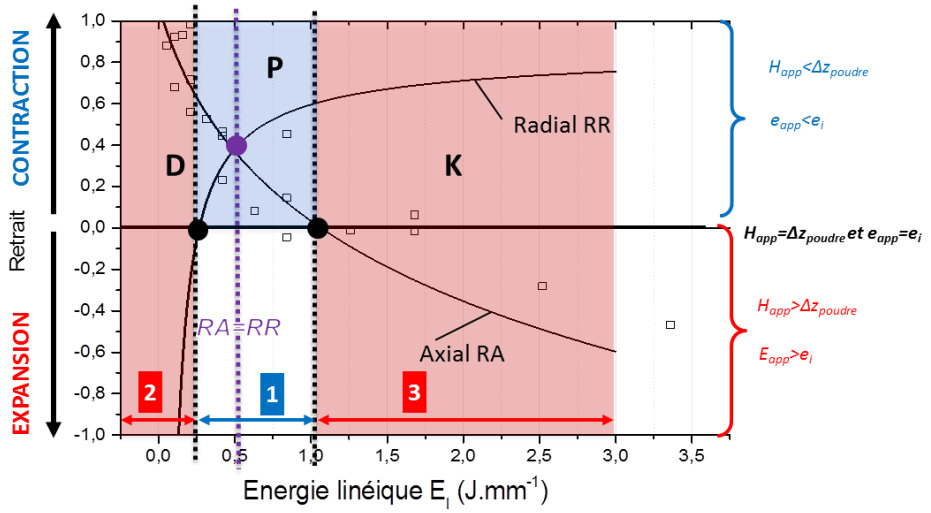


Figure VI-22 : Application du modèle bidirectionnel anisotrope – retraits axial (déduit de la mesure de H_{app}) et radial (déduit d'un calcul à partir de la connaissance de Pt et RA) pour {PAZ_SAZ}. La contraction est notée positivement et l'expansion négativement.

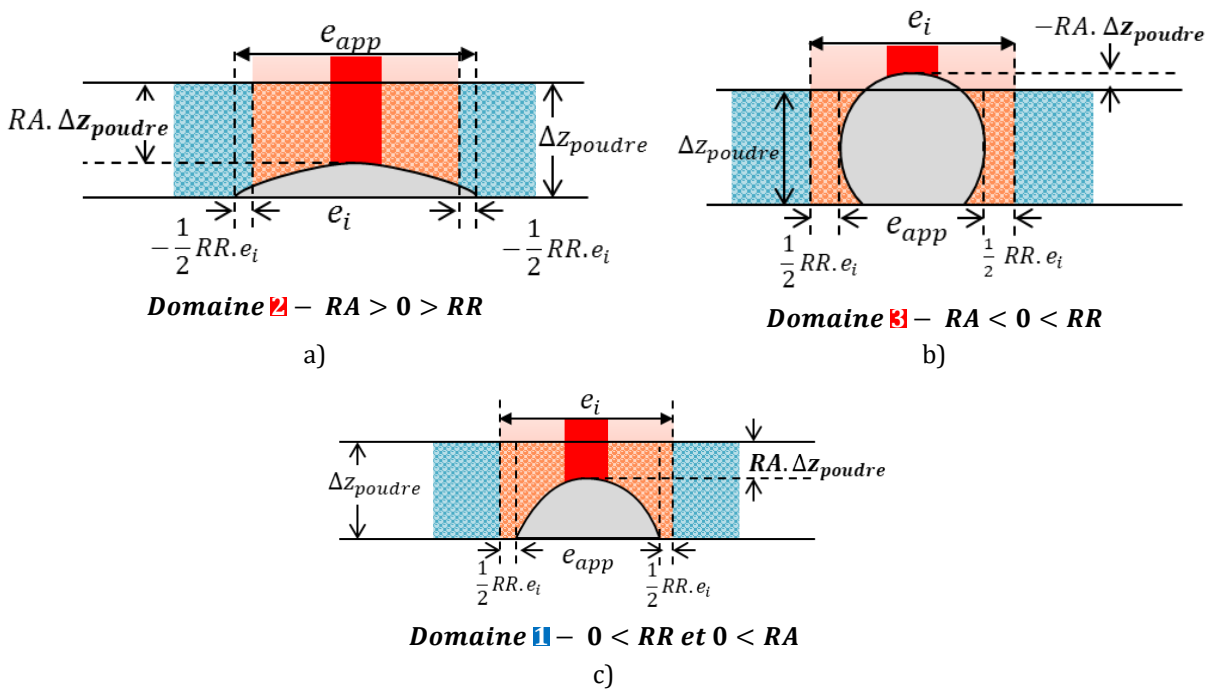


Figure VI-23 : Configurations de différentes consolidations des lits de poudre suivant le modèle bidirectionnel anisotrope

La mise en évidence de la zone dénudée et de l'éjection des particules solides, laissent envisager différents cas de consolidation et d'interaction entre zone consolidée et zone dénudée.

VI.2.2 Zone élargie d'interaction laser-matière : prise en compte des éjections

On rappelle que la zone d'interaction se décompose comme suit *(Figure VI-24)* :

- **d'une zone de consolidation S_0** : section du lit de poudre irradiée.
- **d'une zone dénudée S_{ZD}** : section du lit de poudre juxtaposée à S_0 qui est affectée par des mouvements hydrodynamiques liés au passage du faisceau laser mais qui ne subit pas de fusion.
- **d'une section du cordon S_{app}** : section dense de poudre consolidée.

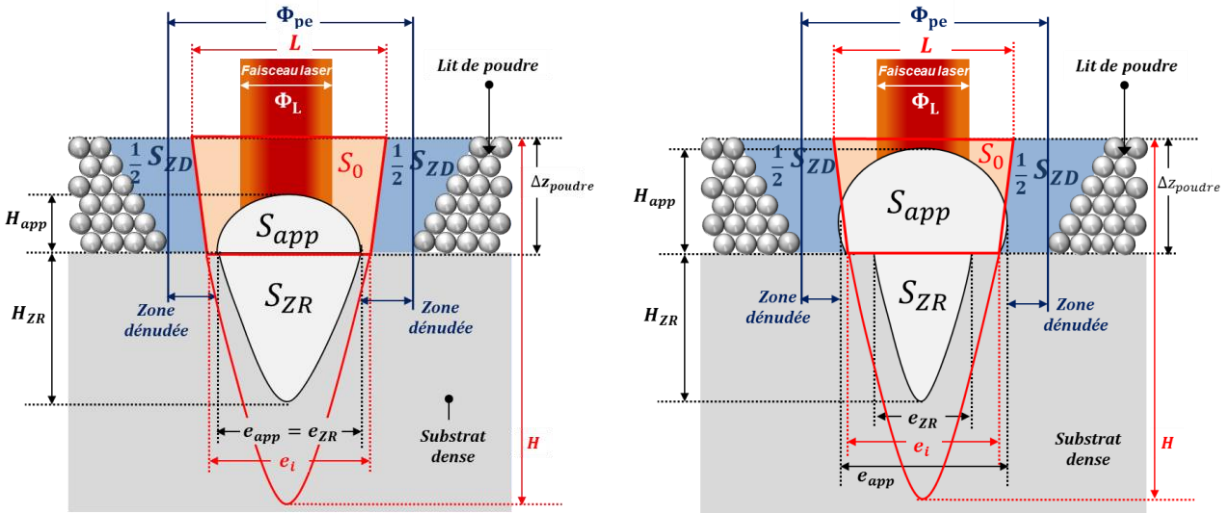
L'ensemble de la zone totale d'interaction peut être décomposée comme la somme de la zone dénudée (ZD) de poudre et de la zone consolidée de poudre:

$$S_{tot} = S_{ZD} + S_0 \qquad \text{VI.10}$$

La section totale d'interaction laser-matière S_{tot} ainsi que la section du cordon S_{app} sont mesurées par profilométrie optique. Par le modèle optique *évolutif* défini au *Chapitre V*, il est également possible d'exprimer S_0 comme une parabole tronquée :

$$S_0 = \frac{2}{3}H.(L - e_i) + \frac{2}{3}\Delta z_{poudre}\,.\,e_i \qquad \text{VI.11}$$

avec H la hauteur et L la largeur de la zone fondue et e_i la largeur de l'interaction laser-matière avec le LDP, définie au *Chapitre V*.



a) b)

Figure VI-24 : Grandeurs et dimensions de la zone d'interaction laser-matière a) cas $e_{app} = e_{ZR}$ b) cas $e_{app} \neq e_{ZR}$

Signalons que l'approximation de la section de la consolidation S_0 par une forme simple en trapèze *(relation VI.12)* n'est pas adaptée. Les valeurs de S_0 sont alors fortement surévaluées *(Figure VI-25)*.

$$S_0 = \frac{(L + e_i)}{2}.\Delta z_{poudre} \qquad \text{VI.12}$$

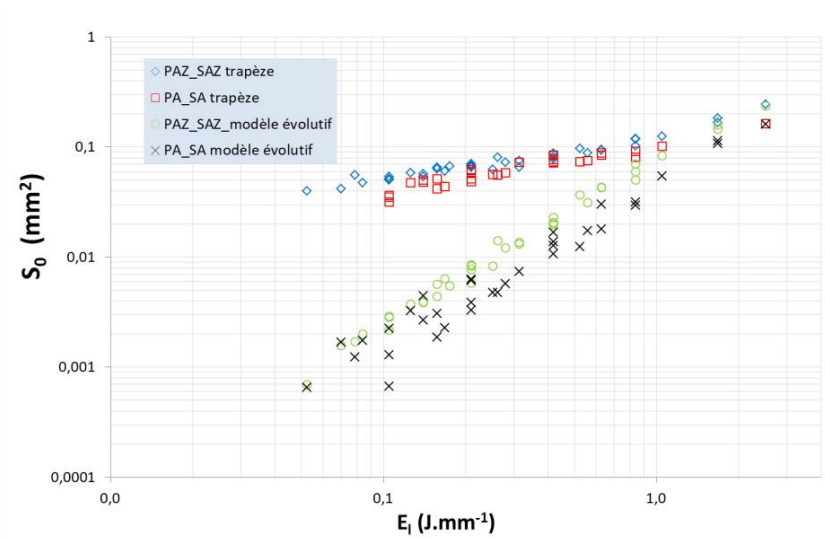


Figure VI-25 : Variation des sections de consolidation S_0 calculées par le modèle évolutif et suivant la forme en trapèze en fonction de l'énergie linéique

Le calcul de S_{ZD} est alors possible en appliquant l'*équation (VI.10)* et après avoir calculé S_0 par la *relation (VI.11).*

VI.2.2.1 Echanges de matière possibles

Les sections S_0, S_{ZD} et S_{tot}, constituées initialement de lit de poudre, peuvent être décomposées en une section de matière dense S^{part} et une section de pores (d'air, de gaz ou de vide) S^{pore} telles que :

$$\begin{cases} S_{ZD} = S_{ZD}^{part} + S_{ZD}^{pore} \\ S_0 = S_0^{part} + S_0^{pore} \\ S_{tot} = S_{tot}^{part} + S_{tot}^{pore} = S_{ZD}^{part} + S_{ZD}^{pore} + S_0^{part} + S_0^{pore} \end{cases} \quad \text{VI.13}$$

Les sections de matière dense peuvent se calculer selon la relation suivante :

$$\mathbf{1 - Pt = \frac{S_{ZD}^{part}}{S_{ZD}} = \frac{S_{tot}^{part}}{S_{tot}} = \frac{S_0^{part}}{S_0}}$$

Et pour les sections de pores :

$$\mathbf{Pt = \frac{S_{ZD}^{pore}}{S_{ZD}} = \frac{S_{tot}^{pore}}{S_{tot}} = \frac{S_0^{pore}}{S_0}} \quad \text{VI.14}$$

Le modèle de consolidation bidirectionnel anisotrope présenté ci-avant ne prend pas en compte de zone dénudée mais seulement les retraits axial et radial lors de la consolidation de la section de poudre S_0. Alors dans ce cas, $S_{ZD} = 0$ *et* $S_{tot} = S_0$. La section consolidée S_{app} correspond précisément à la partie dense du lit de poudre irradié. Elle se déduit en considérant la conservation de la matière **sans échange** par la relation suivante :

$$\mathbf{1 - Pt = \frac{S_0^{part}}{S_0} = \frac{S_{app}}{S_0}} \quad \text{VI.15}$$

Il est considéré ici que $\boldsymbol{S_{app}}$ ne vaut pas toujours $\boldsymbol{S_0^{part} = S_0.(1 - Pt)}$ suivant les conditions opératoires, à savoir que le retrait à la consolidation de la surface S_0 peut être différent du simple retrait lié à la porosité du lit de poudre. La formation d'une zone dénudée S_{ZD} laisse en effet entrevoir des éjections de particules solides de cette zone qui peuvent notamment alimenter selon l'axe Z le bain liquide dont l'effet est d'accroître S_0^{part}. Il est également possible que des pertes de matière se produisent suite à des éjections de particules solides et liquides au sein de la zone de consolidation S_0, liées à la dépression induite par la plume de vapeur. Le modèle de consolidation du lit de poudre doit donc être revu pour prendre en compte les éjections de particules de poudre de la zone dénudée mise en évidence précédemment *(Figure VI-18)*. Différents phénomènes sont donc identifiés à partir de nos propres observations et confirmés par la littérature (Gunenthiram et al., 2017; Matthews et al., 2016; Wang et al., 2017) - *Figure VI-26* :

- **Ejections :**
  - **dans la zone de consolidation** ($S_0^{éjecté,part}$) de particules solides du lit de poudre en avant du bain ($S_{LDP/0}^{éjecté}$) ou d'éjectas liquides du bain ($S_{spatter/0}^{ejecté}$) :

$$\boldsymbol{S_0^{éjecté,part} = S_{LDP/0}^{éjecté} + S_{spatter/0}^{ejecté}}$$

  - **des particules de la zone de dénudation** (S_{ZD}^{part}) : vers la zone de consolidation et plus particulièrement vers le bain ($S_{LDP/ZD}$) ou vers le LDP environnant qui n'a pas encore été concerné par l'interaction laser-matière ($S_{app/ZD}$) :

$$\boldsymbol{S_{ZD}^{part} = (1 - Pt)S_{ZD} = S_{app/ZD} + S_{LDP/ZD}} \quad \text{VI.16}$$

- **Alimentation** de la zone de consolidation ou plus précisément du bain liquide par des particules éjectées de la zone dénudée ($\boldsymbol{S_{app/ZD}}$).

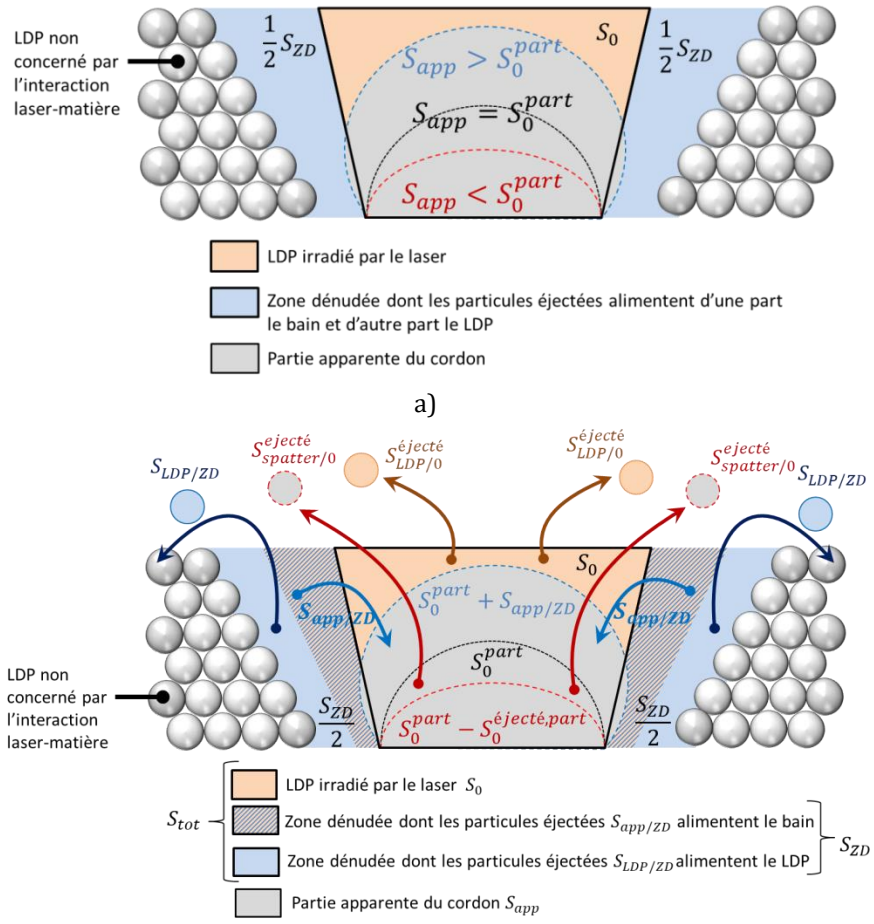


Figure VI-26 : Morphologies possibles de S_{app} (a) et flux de matière échangée entre les différentes zones de l''interaction laser-matière (b)

VI.2.2.2 Expression de la section apparente du cordon S_{app}

Les éjections de la zone de consolidation contribuant à la diminution du bain ou celles de la zone de dénudation pouvant contribuer à l'accroissement du bain sont des flux de matière simultanés qui rentrent forcément en compétition. La **section du cordon consolidé** $\boldsymbol{S_{app}}$ prenant en compte les phénomènes d'éjection et d'alimentation se résume à la relation suivante :

$$\boldsymbol{S_{app} = S_0^{part} + S_{app/ZD} - S_0^{éjecté,part}}$$

Soit encore :

$$\boldsymbol{S_{app} = S_0.(1 - Pt) + S_{app/ZD} - (S_{spatter/0}^{ejecté} + S_{LDP/0}^{ejecté})} \qquad \text{VI.17}$$

avec :

- $\boldsymbol{S_0^{part} = S_0.(1 - Pt)}$: section de matière dense en l'absence d'échange de matière,
- $\boldsymbol{S_0^{éjecté,part} = S_{spatter/0}^{ejecté} + S_{LDP/0}^{ejecté}}$: le perte de matière issue de la zone de consolidation constituée de particules solides ou d'éjectas du bain liquide,
- $\boldsymbol{S_{app/ZD}}$: gain de matière issue de la zone de dénudation.

Cette relation *(VI.17)* reflète la possibilité qu'ont certaines particules solides du lit de poudre de la zone de consolidation ($S_{LDP/0}^{ejecté}$) d'être éjectées avant qu'elles ne fondent ou après leur fusion (spatters = éjectas liquides, $S_{spatter/0}^{ejecté}$) mais avant la solidification du bain.

On distingue trois configurations résultantes de la concurrence entre éjection et alimentation :

- **Cas (A) :** les phénomènes se compensent ou alors il y a absence d'échange de matière entre la zone dénudée S_{ZD} et la zone de consolidation S_0. La section apparente du cordon S_{app} correspond alors à la consolidation de la partie dense de S_0 : $\boldsymbol{S_{app} = S_0^{part}}$. Cela revient à poser, $\boldsymbol{S_{app/ZD} = 0}$ et $\boldsymbol{S_0^{éjecté,part} = 0}$ ou bien $\boldsymbol{S_{app/ZD} = S_0^{éjecté,part}}$.
- **Cas (B) :** l'alimentation du bain par des particules solides de la zone dénudée est le phénomène majoritaire. La section apparente du cordon S_{app} est alors plus importante que la partie dense de S_0 : $\boldsymbol{S_{app} > S_0^{part}}$. C'est probablement le phénomène responsable du cas où $e_{app} \neq e_{ZR}$ *(Figure VI-24.b)*. Cela revient à supposer que $\boldsymbol{S_0^{éjecté,part} = 0}$ et $\boldsymbol{S_{app/ZD} > 0}$ ou bien encore que $\boldsymbol{S_{app/ZD} > S_0^{éjecté,part}}$.
- **Cas (C) :** l'éjection de particules solides ou d'éjectas liquides au sein de la zone de consolidation est prédominante. La section apparente du cordon S_{app} est alors plus faible que la partie dense de S_0 : $\boldsymbol{S_{app} < S_0^{part}}$. Cela revient à supposer que, $\boldsymbol{S_{app/ZD} = 0}$ et $\boldsymbol{S_0^{éjecté,part} > 0}$ ou bien encore que $\boldsymbol{S_{app/ZD} < S_0^{éjecté,part}}$.

VI.2.2.1 Domaines d'interaction laser-matière

Les calculs montrent que le rapport S_{app} / S_0 n'est que rarement égal à $(1 - Pt)$ (à savoir $S_{app} - S_0.(1 - Pt) \neq 0$) - *Figure VI-27.a*.

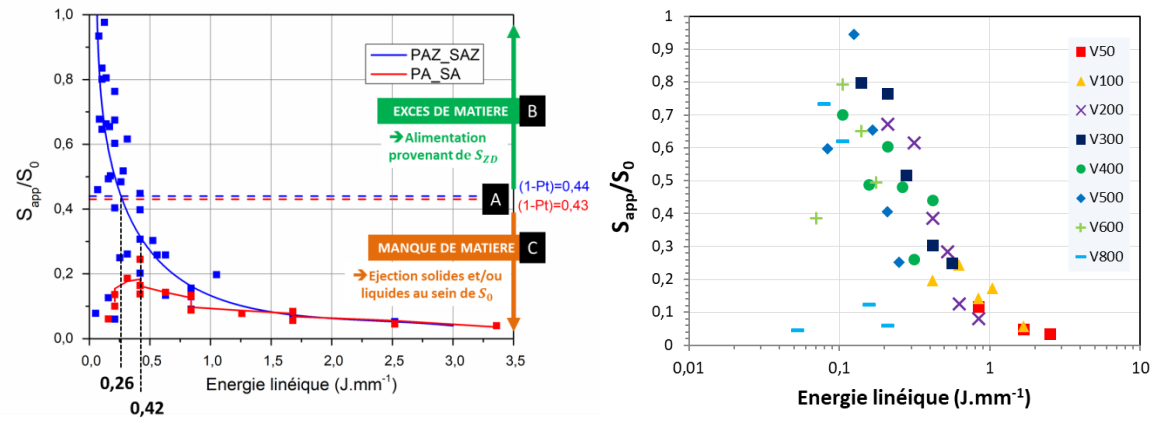
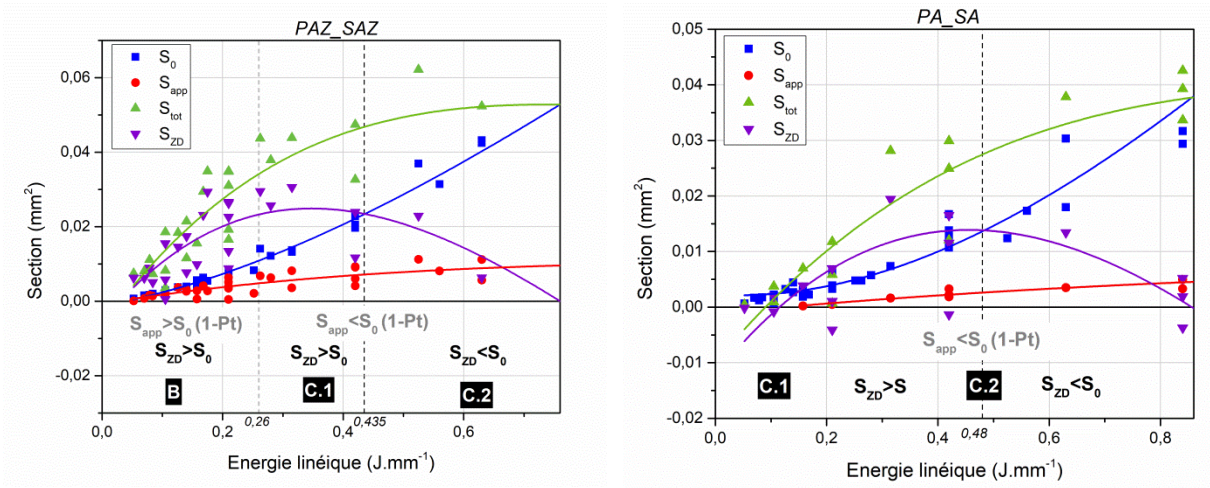


Figure VI-27 : Variation du rapport S_{app}/S_0 en focntion de l'énérgie linéique a) pour les systèmes {PAZ_SAZ} et {PA_SA} b) pour le système {PAZ_SAZ} suivant différentes vitesses de balayage du laser

Dans le cas transparent {PA_SA}, suivant une énergie linéique croissante, le rapport augmente jusqu'à un maximum vers $E_l = 0{,}42$ J.mm^{-1}. Au-delà, le rapport S_{app} / S_0 diminue. Néanmoins, sur tout le domaine d'énergie linéique exploré, ce rapport est toujours inférieur à $(1 - Pt)$, ce qui signifie que $S_{app} < S_0\ (1 - Pt)$ et donc qu'il y a toujours un manque de matière consolidée (**cas C**). L'éjection de particules solides et/ou d'éjectas liquides à partir de la zone de consolidation engendrent des cordons apparents aux formes aplaties et aux sections diminuées. La part d'éjections au sein de la zone de consolidation et de la zone de dénudation est donc très importante, soulignant la mauvaise stabilité de ce système qui est liée très certainement à sa transparence au rayonnent laser.

Dans le cas absorbant {PAZ_SAZ}, le rapport S_{app} / S_0 est relativement élevée aux faibles énergies linéiques et diminue avec l'accroissement de l'énergie linéique. Le rapport S_{app} / S_0 est majoritairement supérieur à $(1 - Pt)$ pour $E_l < 0{,}26\, J.mm^{-1}$, ce qui indique que $S_{app} > S_0\,(1 - Pt)$ et donc qu'il y a un excès de matière consolidée (**cas B**). Les particules de la zone dénudée contribuent alors sans aucun doute à alimenter le bain de fusion. Les cordons apparents devraient alors montrer des sections agrandies par l'alimentation du bain en particules solides issues de la zone dénudée qui est ici le phénomène majoritaire par rapport à l'éjection. On note toutefois qu'aux fortes vitesses de balayage (toujours pour $E_l < 0{,}26\, J.mm^{-1}$) *(Figure VI-27.b)*, le rapport S_{app} / S_0 peut être inférieur à $(1 - Pt)$ comme c'est aussi le cas pour tous les cordons à $E_l > 0{,}26\, J.mm^{-1}$. On peut donc conclure qu'une forte puissance et surtout qu'une forte vitesse de balayage favorisent la perte de matière (S_{app}/ $S_0 < (1 - Pt)$) - ***cas C***.

La variation des différentes sections de la zone d'interaction laser-matière S_{app}, S_0, S_{ZD} et S_{tot}, avec l'énergie linéique est présentée en *Figure VI-28.* La section de consolidation S_0 du LDP augmente fortement et continûment avec l'énergie linéique tandis que S_{ZD} augmente puis diminue après avoir atteint un maximum. La section totale d'interaction laser-matière S_{tot} augmente avec l'énergie linéique mais atteint un plateau aux fortes énergies linéiques après que S_{ZD} ait diminué. Par contre, la section apparente du cordon S_{app} augmente quasi linéairement avec E_l malgré les échanges de matière identifiés avec E_l sur l'ensemble de la plage étudiée.



a) b)

Figure VI-28 : Sections relatives à l'interaction laser-LDP en fonction de l'énergie linéique pour a) {PAZ_SAZ} b) {PA_SA}

Pour les cas {PAZ_SAZ} et {PA_SA}, on distingue trois domaines de consolidation pour lesquels il y a un **manque de matière** ($S_{app} < S_0\,(1 - Pt)$) **:**

- Cas B concernant {PAZ_SAZ} seulement, pour $\boldsymbol{E_l < 0{,}26\, J.mm^{-1}}$: domaine présentant à la fois un **excès de matière** ($S_{app} > S_0\,(1 - Pt)$) et des **éjections de particules solides de la zone de dénudation** ($S_{ZD} > S_0$), ce qui suggère une alimentation de la zone de consolidation par les particules solides issues de la zone dénudée.
- Cas C.1 pour $\boldsymbol{0{,}26 < E_l < 0{,}435\, J.mm^{-1}}$ dans le cas de {PAZ_SAZ} et pour $\boldsymbol{E_l < 0{,}48\, J.mm^{-1}}$ dans le cas de {PA_SA} : $S_{tot} > S_{ZD} > S_0 > S_{app}$. Les cordons présentent un manque de matière et la zone dénudée n'est pas négligeable devant la zone consolidée. La dénudation, à savoir **l'éjection de particules solides** est un phénomène opérant mais qui ne contribue pas ou peu à la consolidation du cordon.
- Cas C.2 pour $\boldsymbol{E_l > 0{,}435\, J.mm^{-1}}$ pour {PAZ_SAZ} et $\boldsymbol{E_l > 0{,}48\, J.mm^{-1}}$ pour {PA_SA} : la tendance entre S_{ZD} et S_0 s'inverse avec $S_{ZD} < S_0$ jusqu'à la valeur limite où le keyhole est amorcé et l'application du modèle évolutif pour le calcul de S_0 n'est plus applicable. La zone dénudée se

réduit et le manque de matière observé est davantage issu de la zone de consolidation, notamment avec les **éjections de particules liquides**.

-

Ces domaines identifiés sont cohérents avec les observations des éjections des particules au *§VI.1.3* et les morphologies des sections apparentes qui sont aplaties aux très fortes énergies linéiques et particulièrement pour le système {PA_SA} *(Figure VI-13 et Figure VI-14)*

VI.2.2.2 Particules éjectées de la zone dénudée

D'après les équations *(VI.13)* et *(VI.14)* :

$$S_{ZD} = S_{ZD}^{part} + S_{ZD}^{pore} = S_{ZD}^{part} + Pt.S_{ZD}$$

Et en substituant avec la relation *(VI.16)*, on a :

$$S_{ZD} = Pt.S_{ZD} + S_{app/ZD} + S_{LDP/ZD}$$
$$S_{LDP/ZD} = S_{ZD} - Pt.S_{ZD} - S_{app/ZD}$$

Si on considère le cas où $S_0^{éjecté.part} = 0$, on en déduit d'après *(VI.17)* que $S_{app/ZD} = \mathrm{S_{app}} - (1 - \mathrm{Pt}).\mathrm{S_0}$ avec $\mathrm{S_{app}} > (1 - \mathrm{Pt}).\mathrm{S_0}$. On est alors en mesure d'exprimer la section de particules de poudre de la zone dénudée qui sont éjectées sur le lit de poudre environnant $\boldsymbol{S_{LDP/ZD}}$:

$$\boldsymbol{S_{LDP/ZD} = (1 - Pt).S_{ZD} - S_{app/ZD} = (1 - Pt).S_{tot} - S_{app}}$$

Cette quantité $S_{LDP/ZD}$ *(Figure VI-29)* est nettement supérieure à la quantité qui sert à alimenter le bain de fusion $\boldsymbol{S_{LDP/ZD} > S_{app/ZD}}$. Dans le cas du système {PA_SA}, $S_{app/ZD}$ est même nul.
Ces particules de poudres éjectées peuvent venir se déposer sur une partie du lit de poudre qui servira par la suite à la consolidation lors du passage du faisceau laser ou encore sur les cordons déjà solidifiés et peuvent venir perturber la future interaction laser-matière.

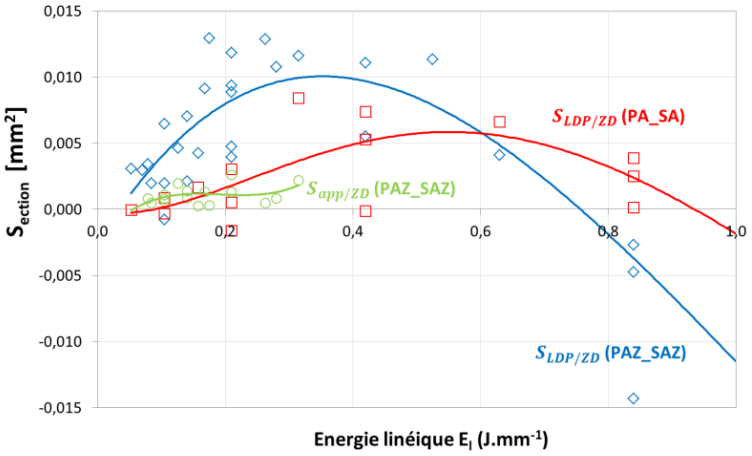


Figure VI-29 : Section de particules de poudre de la zone dénudée éjectées sur le lit de poudre environnant en fonction de l'énergie linéique

Pour résumer, les types d'échanges considérés sont :

- **Aux faibles énergies linéiques** ($E_l < 0{,}4\ J.mm^{-1}$ - V élevées et P faibles), la section dénudée est supérieure à la section de consolidation ($S_{ZD} > S_0$). Les éjections des particules de la zone dénudée

sont importantes, particulièrement vers le LDP environnant ($\boldsymbol{S_{LDP/ZD}}$), ne contribuant pas ou peu à la consolidation du lit de poudre.

- **Pour le cas le plus absorbant aux très faibles énergies linéiques** ($\boldsymbol{E_l < 0,26\, J.mm^{-1}}$) une autre partie des particules de la zone dénudée, en moindre quantité, est éjectée vers la zone de consolidation et contribue à alimenter le bain de fusion ($\boldsymbol{S_{app/ZD}}$). Une alimentation latérale en particules s'opère, ce qui renvoie au modèle bidirectionnel anisotrope qui définissait un gonflement radial aux faibles énergies linéiques *(Figure VI-22)*. Les cordons sont sur-alimentés ($S_{app} > S_o(1-Pt)$), tant que l'alimentation du bain en particules de la zone dénudée prend le pas sur les possibles éjections de la zone de consolidation ($\boldsymbol{S_{app/ZD} > S_0^{éjection,part}}$).
- **Aux fortes énergies linéiques** ($0,4 < E_l < 1J.mm^{-1}$ – V faibles et P élevées), la section de consolidation est supérieure à la section dénudée ($S_{ZD} < S_0$ puis $S_0 \rightarrow S_{tot}$ et $S_{ZD} \rightarrow 0$). Les éjections de particules de la zone dénudée sont faibles et n'alimentent que peu ou pas le bain de fusion. Ce dernier est néanmoins fortement affecté par les éjectas liquides issus du bain de fusion qui sont cohérents avec une forte montée en température du bain et une dépression accrue liée à une vaporisation partielle du bain. Les cordons sont sous alimentés et aplatis. Rappelons que dans ce cas, le modèle bidirectionnel établissait un retrait à la fois axial et radial correspondant au domaine de construction stable *(Figure VI-22).*

VI.2.2.3 Taux de consolidation et taux de particules éjectées de ZD

Le **taux de consolidation** $\boldsymbol{\tau_{cons}}$ est défini comme la fraction de la matière consolidée vis-à-vis de la section totale affectée par l'interaction. Il se calcule d'après les mesures expérimentales de S_{app} et S_{tot} et vaut:

$$\boldsymbol{\tau_{cons} = \frac{S_{app}}{S_{tot}} = \frac{S_{app}}{S_0 + S_{ZD}}} \qquad \text{VI.18}$$

Le **taux de particules éjectées à partir de la zone dénudée** $\boldsymbol{\tau_{ZD}^{part}}$ est défini comme le quotient de la section de la zone dénudée sur la section totale affectée par l'interaction laser-matière tel que :

$$\boldsymbol{\tau_{ZD}^{part} = \frac{S_{ZD}}{S_{tot}}} \qquad \text{VI.19}$$

Or $\frac{S_{ZD}+S_0}{S_{tot}} = 1$, donc :

$$1 - \tau_{ZD}^{part} = \frac{S_{ZD} + S_0}{S_{tot}} - \frac{S_{ZD}}{S_{tot}} = \frac{S_0}{S_{tot}} = \frac{S_0^{part}}{S_{tot}^{part}}$$

Dans le cas de l'absence d'échange de matière (cas A) défini par $S_0(1-Pt) = S_{app}$, sa substitution dans l'équation *(VI.18)* amène à la relation suivante :

$$\tau_{cons} = \frac{S_{app}}{S_{tot}} = \frac{S_0(1-Pt)}{S_{tot}}$$

soit

$$\tau_{cons} = \left(1 - \tau_{ZD}^{part}\right)(1 - P_t)$$

et

$$\boldsymbol{\tau_{ZD}^{part} = 1 - \frac{\tau_{cons}}{(1-P_t)}} \qquad \text{VI.20}$$

Si $S_0(1-Pt) < S_{app}$ (cas B), $\quad \tau_{cons} < \left(1 - \tau_{ZD}^{part}\right)(1 - P_t)$.

Si $S_0(1-Pt) > S_{app}$ (cas C), $\tau_{cons} > \left(1-\tau_{ZD}^{part}\right)(1-P_t)$.

On peut également définir de la même façon le **taux d'éjections de la zone de consolidation** τ_0^{part}:

$$\tau_0^{part} = \frac{S_0^{éjecté,part}}{S_{tot}} = \frac{S_{spatter/0}^{éjecté} + S_{LDP/0}^{éjecté}}{S_{tot}}$$

On remarque qu'en général τ_{cons} augmente avec l'énergie linéique *(Figure VI-30)*. Or, une **augmentation du taux de consolidation** ($S_{app} \rightarrow S_{tot}^{part}$ *et* $S_{ZD}^{part} \rightarrow 0$) signifie qu'il y a un gonflement des cordons *(Figure VI-30.c)* lié à

- la présence de pores en profondeur de bains par effet de remontée de la matière liquide (environ $E_l > 1\ J.mm^{-1}$) ou de pores en section apparente liés à la décomposition de l'absorbant,
- une meilleure absorption et fusion.

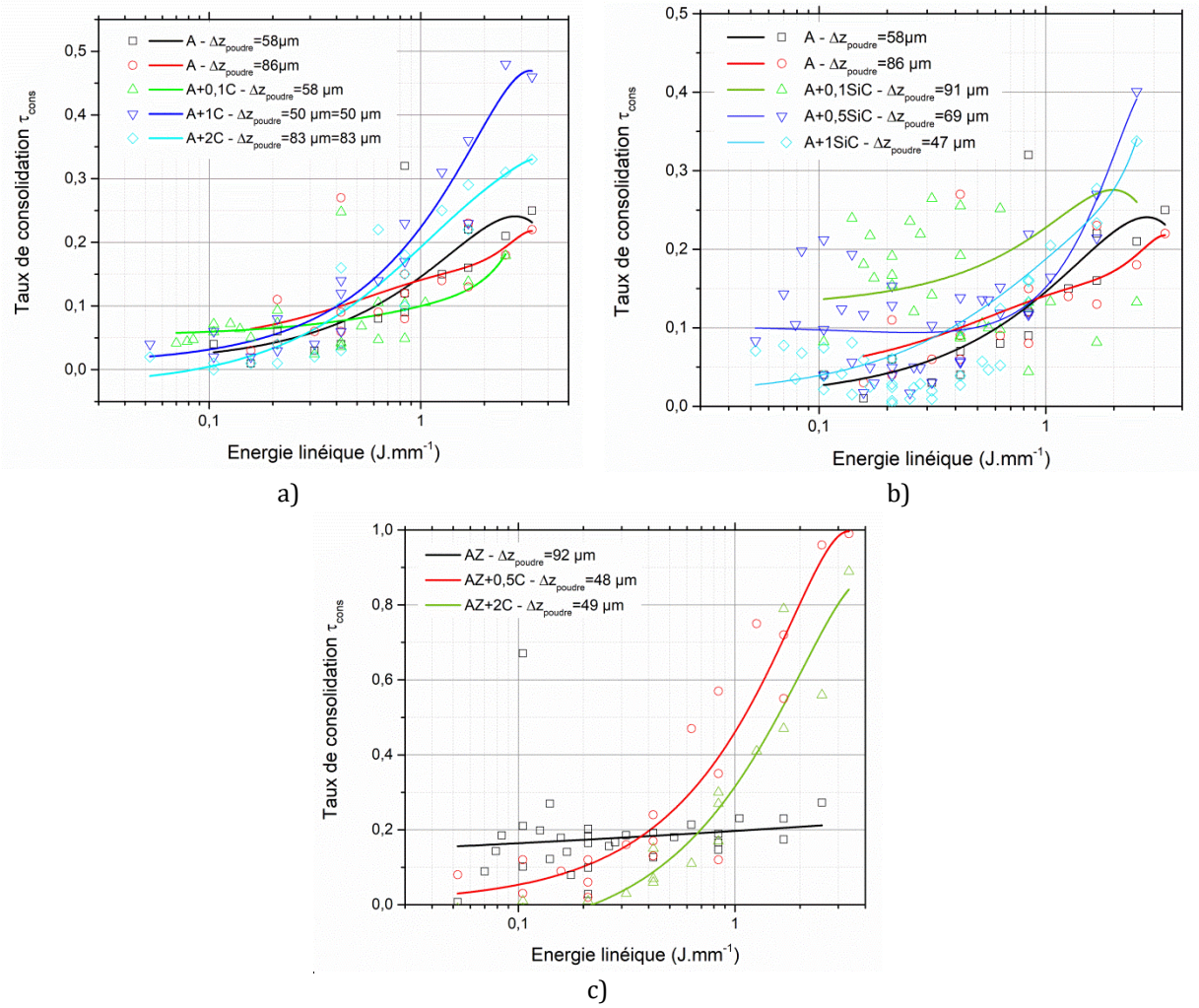


Figure VI-30 : Taux de consolidation pour les différents mélanges céramiques-absorbants a) alumine-carbone b) alumine-SiC-β c) alumine-zircone-carbone

L'augmentation du taux de consolidation peut être également liée à une réduction de la zone dénudée S_{ZD} et à une diminution de la proportion de la quantité de particules éjectées vers le LDP environnant $S_{LDP/ZD}$ comparée à la proportion de la quantité de particules éjectées vers le bain.

L'**ajout de carbone** à l'alumine pure permet une amélioration du taux de consolidation aux très faibles énergies linéiques, laquelle est absente pour le cas pur *(Figure VI-30.a)* par stabilisation de l'absorption.

L'ajout de carbone en forte quantité (≥1%m.C) favorise fortement la consolidation au-delà de 0,4 J.mm^{-1} sans que les cordons ne présentent de la porosité. Ceci serait alors lié à une quantité réduite de particules éjectées à partir de S_0 ($S_{LDP/0}^{éjecté}$ ou $S_{spatter/0}^{éjecté}$) ou à l'augmentation de la quantité de particules solides issues de la zone dénudée alimentant le cordon $S_{app/ZD}$. De la même façon, l'**ajout de SiC-β** à l'alumine pure permet une amélioration du taux de consolidation et de manière marquée à faible énergie linéique pour 0,1 et 0,5%m. SiC *(Figure VI-30.b)*, bien que les valeurs soient très dispersées.
Inversement, pour l'**alumine-zircone** déjà absorbant à l'état de réception, l'ajout de carbone supplémentaire est néfaste entre 0,14 et 0,4 J.mm^{-1} car il réduit le taux de consolidation *(Figure VI-30.c)*. En effet, les cordons se trouvent sous-alimentés, ce qui peut être lié à l'augmentation des éjections à partir de S_0 ($S_{LDP/0}^{éjecté}$ ou $S_{spatter/0}^{éjecté}$) ou à la réduction de la quantité de particules solides issues de la zone dénudée $S_{app/ZD}$. Aux fortes énergies linéiques ($E_l > 1\ J.mm^{-1}$) avec un ajout trop important de carbone, le taux de consolidation dépasse allègrement 50%. Il est observé un fort gonflement des cordons qui s'explique par la présence de pores liés à la combustion du carbone, au dégagement gazeux associé ainsi qu'à la forte viscosité du matériau *(Annexe A)*.

VI.3 Etude 2D et 3D

Les études 2D et 3D ont été réalisées dans un premier temps sur les systèmes PAZ+0,5C_SAZ et PA+0,5C_SA pour comprendre l'effet des paramètres opératoires contrôlant la fabrication. Une fois terminées les mesures optiques et géométriques de l'empilement des lits de poudre, les systèmes présentant les meilleurs résultats ont été retenus pour la fabrication de pièces 3D, soit : **PA+0,1C_SA, PA+0,5SiC_SA, PA+INCO_SA** et **PAZ_SAZ**. L'étude 1D a permis l'identification d'une fenêtre paramétrique {P, V} pour ces quatre systèmes. L'éjection latérale de particules, responsable de la formation d'une zone dénudée de part et d'autre d'un monocordon, est prise en compte dans le choix de la stratégie de balayage.

VI.3.1 Etude 2D

Rappelons les principaux paramètres à contrôler dans notre cas :

- la puissance laser P
- la vitesse de balayage du laser V
- l'épaisseur de couche Δz_{poudre}
- **la stratégie de balayage**
- **l'écart vecteur lié au taux de recouvrement par** $\boldsymbol{\tau_r = 1 - \frac{E_v}{e_{app}}}$

Les trois premiers paramètres sont définis principalement par l'étude 1D. Cependant, des affinements sont nécessaires avec l'étude 2D comme il sera vu par la suite. Les critères utilisés pour déterminer la stabilité des draps sont ici principalement visuels (rectitude, rugosité, etc).

VI.3.1.1 Construction de murs

L'étude des murs, empilements de cordons 1D les uns sur les autres, permet de s'affranchir du problème d'éjection latérale des particules de poudre, de la variation du taux de recouvrement τ_r et en partie de la stratégie de balayage (à part l'aller et l'aller–retour). L'étude a été réalisée sur des murs de 20 couches avec un $\Delta z_{poudre} = 30\mu m$ *(Figure VI-31)*.

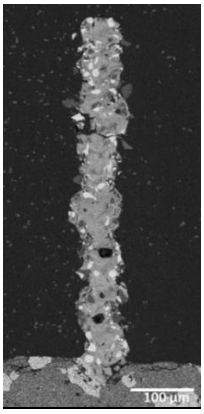
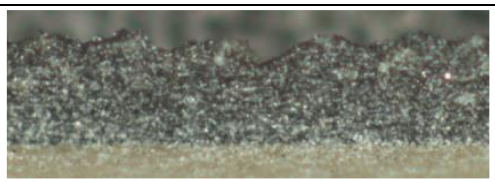
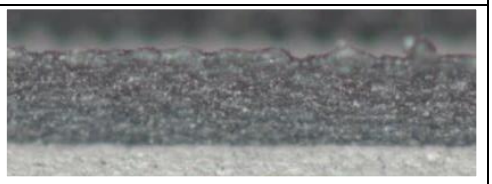
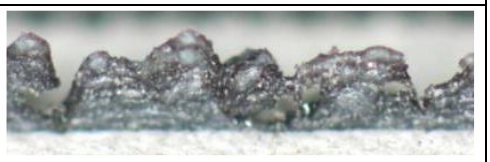
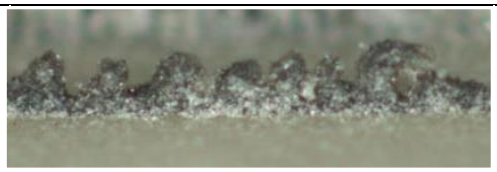
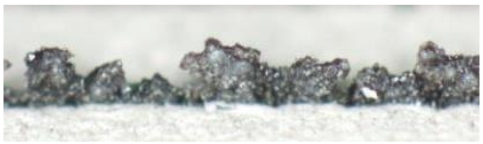


Figure VI-31 : Coupe transverse du mur de PAZ+0,5C_SA pour la paramétrie P42V400 en aller-simple

Les résultats montrent clairement la déstabilisation des murs pour des fortes valeurs de P et de V *(Tableau VI-4)*. Seuls les murs construits avec de faibles puissances (P<84W) et de faibles vitesses (V<500 mm.s^{-1}) sont stables dans le cas des deux matériaux étudiés (Al_2O_3 et Al_2O_3-ZrO_2), et ceci malgré de faibles énergies linéiques ($E_l = 0{,}1 - 0{,}2\ J.mm^{-1}$). L'augmentation de la vitesse de balayage, à puissance fixée, provoque l'amincissement des murs et une réduction plus marquée des oxydes visible par la couleur plus sombre du matériau. Dans le cas de l'Al_2O_3-ZrO_2, à P=42W pour une augmentation de la vitesse de 200 à 400 mm.s^{-1}, la largeur du mur a presque diminué par deux et passe de 130 à 70 µm. Pour un domaine bien

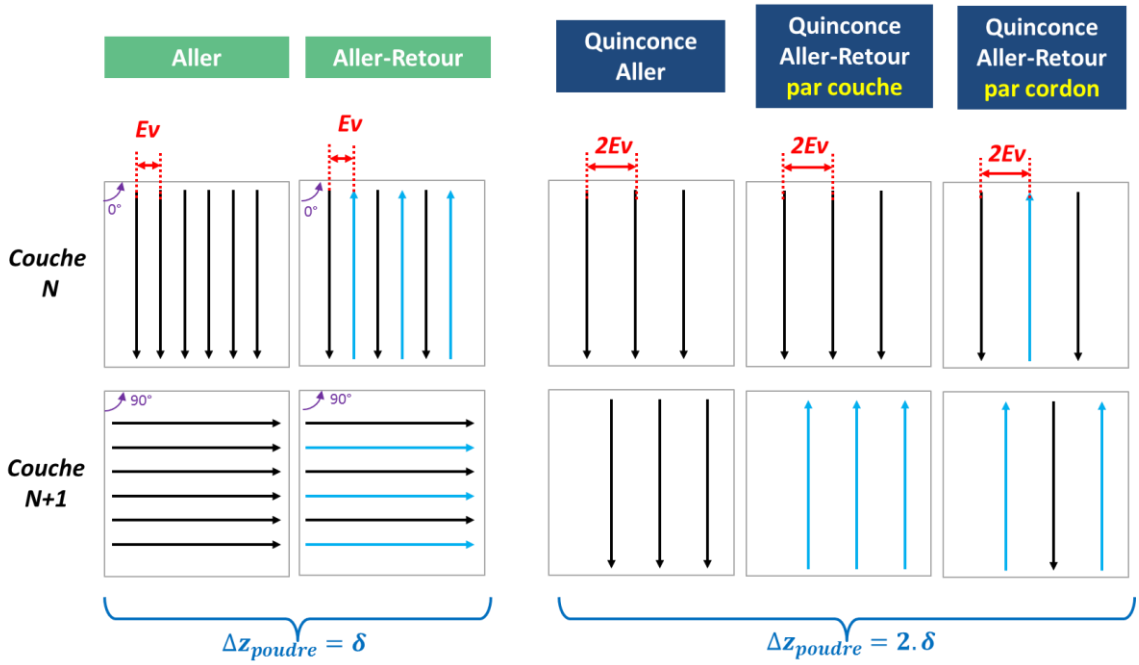
défini de paramètres, la finesse et la stabilité des murs qui peuvent être obtenues sont encourageantes pour la fabrication de pièces architecturées. Par ailleurs, le *Tableau VI-4* souligne que l'énergie linéique n'est clairement pas le paramètre énergétique combiné qui permet de décrire de manière univoque la stabilité des murs (stabilité de PAZ+0.5C_SA à E_l=0,21 et 0,105 $J.mm^{-1}$ et instabilité à E_l=0,168 et 0,158 $J.mm^{-1}$).

Tableau VI-4 : Résultats de l'étude 2D des murs sur 20 couches en aller simple

	PA+0,5C_SA	PAZ+0,5C_SAZ
P42V200 (E_l0,21)		
P42V400 (E_l0,105)		
P84V500 (E_l0,168)		
P84V600 (E_l0,14)		
P126V800 (E_l0,158)		

VI.3.1.2 Construction de draps

Pour la construction de draps, différentes stratégies de balayage sont envisageables *(Figure VI-32)*. Les stratégies standard en *Aller* et *Aller-Retour* sont les plus fréquemment utilisées en fabrication additive et sont définies par un écart vecteur E_v et une épaisseur de poudre Δz_{poudre}. Pour ces deux stratégies de balayage, il est possible de faire varier l'angle de balayage de 0° à 90° d'une couche à l'autre *(Figure VI-32.a)*. La stratégie en *Quinconce* permet de pallier les éjections latérales de particules (zones dénudées), notamment aux fortes vitesses de balayage. Dans ce cas, les valeurs de l'écart vecteur et de l'épaisseur de poudre sont deux fois plus importantes que pour les stratégies standards *(Figure VI-32.b)*. Les cordons de la couche N+1 sont consolidés dans les espaces dénudés de la couche N après l'étalement de la nouvelle couche de poudre. On distingue alors la *Quinconce Aller,* la *Quinconce en Aller-Retour alterné par couche* et la *Quinconce en Aller-Retour alterné par cordon.* Dans cette étude, nous allons comparer les stratégies en *Aller* et *Aller-Retour* avec la *Quinconce en Aller-Retour alterné par couche.*



a) b)

Figure VI-32 : Stratégies de balayage a) standard b) en quinconce

a) Effet du taux de recouvrement : stratégie en aller simple sur la couche N

La consolidation par *Aller simple* sur la couche N permet de rendre compte de l'effet du taux de recouvrement.

Pour τ_r=0%, et donc sans recouvrement entre deux cordons juxtaposés, les observations par caméra rapide mettent en évidence l'éjection de gouttelettes liquides émanant du bain *(Figure VI-33)*. Ce phénomène est directement en lien avec la section de particules éjectées de la zone de consolidation $S_0^{éjécté,part}$. Les trajectoires rectilignes ou courbes de ces éjectas liquides, rappellent la *Figure I-39* issue de la littérature pour un long temps d'interaction s'accompagnant d'une plume de vapeur et d'une pression environnementale non négligeable.

Pour τ_r=30%, on observe le maintien d'un « point chaud » en queue de cordon *(Figure VI-34)*. La consolidation par fusion d'un nouveau cordon adjacent intervient avant le refroidissement complet du cordon précédent. Ce phénomène de point chaud se produit en aval du drap, à savoir en arrière du déplacement laser *(Figure VI-36)*. Il se traduit après consolidation du drap, d'une part par un gonflement issu d'une montée en température accrue (initiation de la vaporisation); et d'autre part, par une ré-oxygénation d'une partie du drap en aval (issue d'un refroidissement plus lent). La forte longueur des bains céramiques est très certainement liée à la semi-transparence et à la faible conductivité thermique du matériau, ainsi qu'au grand volume des bains et à la forte dénudation du LDP au passage du laser. Ceci engendre alors un temps de refroidissement plus important que dans le cas des métaux. Le cordon précédent n'a donc pas le temps de refroidir complètement avant la réalisation du cordon suivant. Ce phénomène est d'autant plus marqué que les distances parcourues par le laser sont courtes et que le taux de recouvrement est important. En effet, un fort taux de recouvrement implique que le cordon suivant refond une plus grande portion du cordon précédent, bien souvent encore à l'état semi-liquide.

Pour τ_r=70%, on observe une surchauffe du bain avec des détentes de gaz (plumes de vapeur) qui provoquent la dénudation du lit de poudre *(Figure VI-35)*. Malgré une faible énergie linéique qui ne correspond pas à des conditions de keyhole, le fort taux de recouvrement engendre une surchauffe des cordons précédents. Ceci provoque une augmentation de la température et un changement du régime d'interaction laser-matière. Comme vu au *Chapitre IV* ce phénomène est corrélé à l'augmentation de l'absorption avec le taux de recouvrement et donc avec la température du bain. Le taux de recouvrement

accentue donc le phénomène de « point chaud » jusqu'à l'obtention de conditions déstabilisantes proches du phénomène de keyhole.

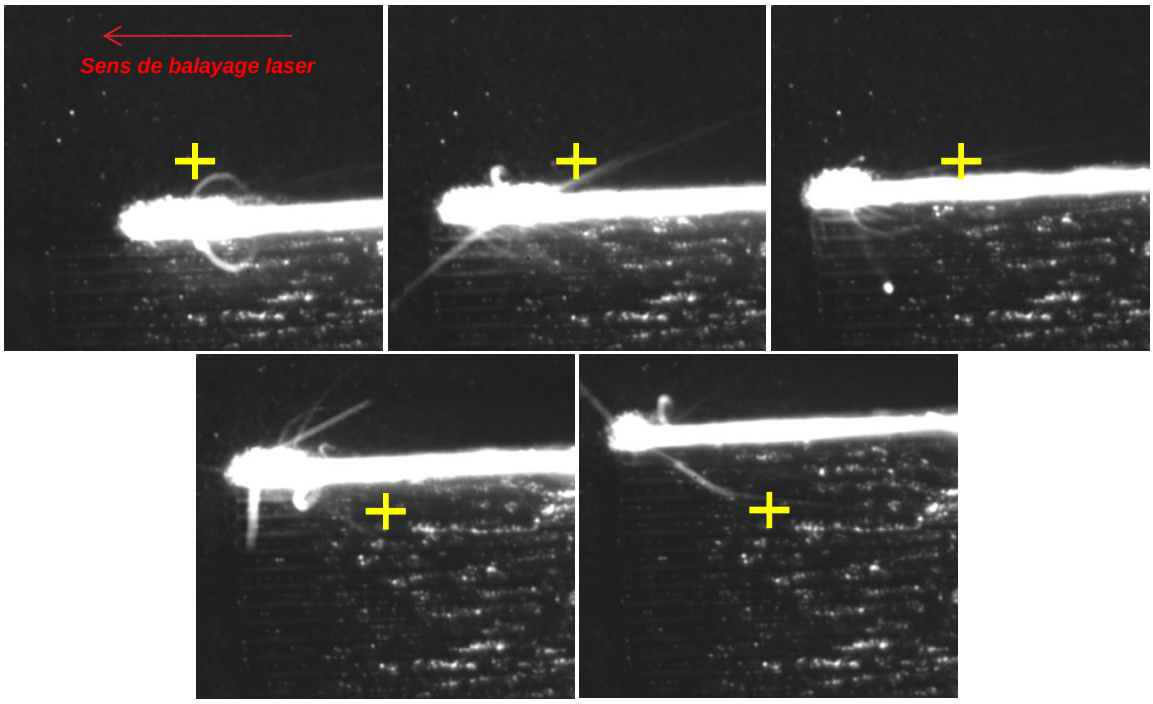


Figure VI-33 : Observation de la fabrication d'un drap au cours du temps par caméra rapide hors axe à P168V400τ_r0 pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} avec la stratégie par aller simple

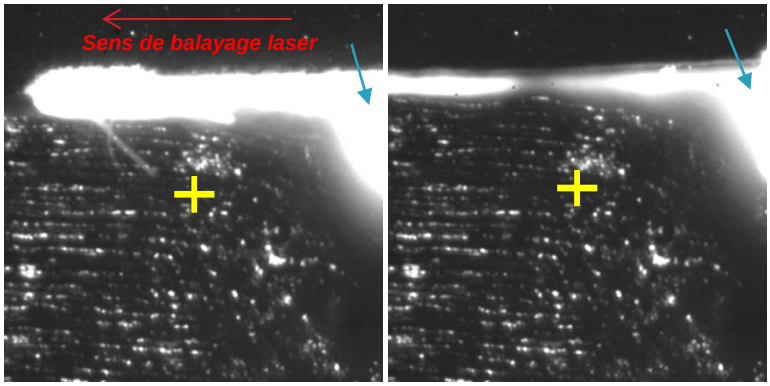


Figure VI-34 : Observation de la fabrication d'un drap par caméra rapide à P168V400τ_r0,3 pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} avec la stratégie par aller simple. Le point chaud est indiqué par les flèches bleues

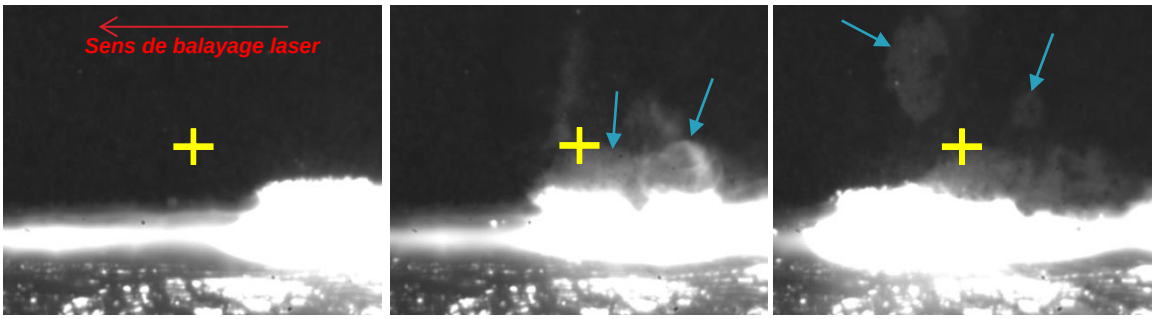


Figure VI-35 : Observation de la fabrication d'un drap par caméra rapide à P168V400τ_r0,7 pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} avec la stratégie par aller simple. Les zones ponctuelles dénudées de poudre sont indiquées par les flèches bleues

La surchauffe du bain engendre clairement des vitesses de refroidissement plus lentes, lesquelles permettent au matériau de se ré-oxygéner *(Figure VI-36)*. On remarque également que l'écoulement du

drap devient important lorsque le taux de recouvrement augmente. Ceci est de nouveau probablement lié à la forte surchauffe du bain engendrant une diminution de la viscosité dynamique et de la tension de surface du bain liquide.

a) b) c)

Figure VI-36 : Draps de surface 5x5 mm² correspondant aux Figure VI-33-Figure VI-34 et Figure VI-35 pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} avec la stratégie par aller simple à P168V400El0,42 pour différents taux de recouvrement : a) τr=0 b) τr=0,3 c) τr=0,7

Ces observations permettent de conclure que le taux de recouvrement doit être relativement faible afin de limiter l'effet de « points chauds ». Toutefois, le taux de recouvrement doit être supérieur à zéro pour maintenir un lien entre les cordons successifs et éviter les manques de recouvrement (défauts). Pour la suite, le taux de recouvrement est fixé à 0,3 et sera rarement supérieur.

b) Comparaison des stratégies de balayage et effet de l'énergie linéique

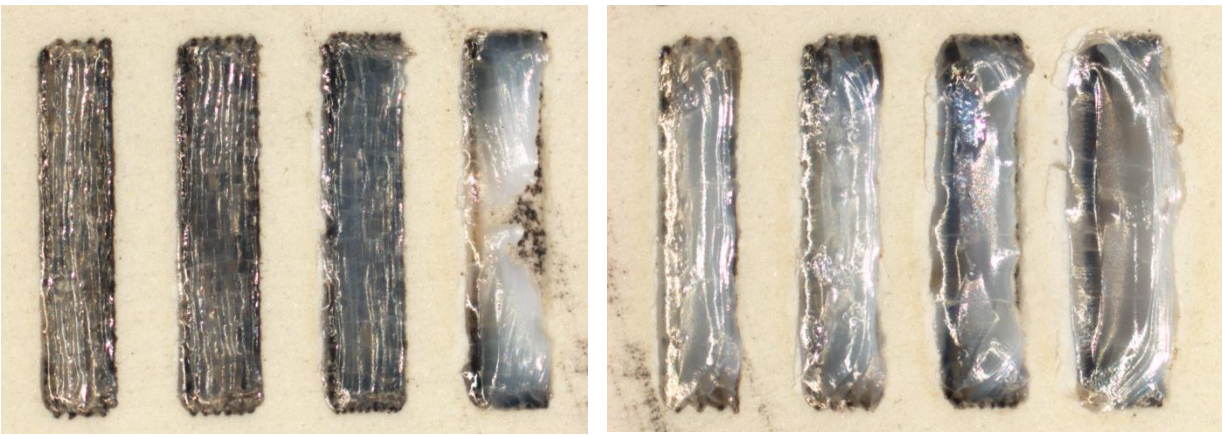
La stratégie *Aller-Retour (AR)* permet clairement d'homogénéiser les points chauds et donc de supprimer le gonflement *(Figure VI-37)*.

Aller simple Aller-Retour

Figure VI-37 : Observation des surépaisseurs à la suface des draps 2D par profilométrie optique selon la stratégie de balayage choisie pour le système {PAZ+0,5C_SAZ} à P168V400E0,42

Cependant, la stratégie *Aller-Retour* ne permet pas de supprimer totalement les points chauds ni de pallier aux éjections latérales de particules de poudre. Les essais de construction 2D avec le système {PAZ_SAZ} montrent en plus de l'effet néfaste de l'augmentation du taux de recouvrement, que l'augmentation de l'énergie linéique accentue le phénomène de point chaud et d'écoulement du drap *(Figure VI-38)*.

La stratégie en *Quinconce* revient à consolider un cordon sur deux, avec des cordons qui sont éloignés d'une distance deux fois plus grande (espacement de $2E_v$ - *Figure VI-32.b*) par rapport à une stratégie standard. Ceci devrait empêcher la formation de points chauds et permettre un contrôle systématique de la fusion car la consolidation du cordon N n'est pas ou peu affectée par le refroidissement du cordon N-1.



P42V100E_l0,42 P84V100E_l0,84

Figure VI-38: Draps de surface 5x2 mm² du système {PAZ_SAZ} pour différents taux de recouvrement et énergies linéiques avec la stratégie aller-retour : de gauche à droite τ_r vaut 0,2 / 0,4 / 0,6 /0,8

La consolidation de la couche N avec la stratégie *Aller-Retour* est comparée à la consolidation de l'ensemble des couches {N ; N+1} avec la stratégie *Quinconce en Aller-Retour par couche* car dans ces deux cas il y a le même nombre de cordons fusionnés. Pour les paramètres choisis, ces deux stratégies ne semblent pas se différencier *(Tableau VI-5)*. L'effet du taux de recouvrement n'est pas non plus visible. Seul l'effet négatif d'une énergie linéique E_l>0,315 J.mm^{-1} est clairement mis en évidence pour ces deux stratégies. Des signes d'explosion du bain liquide et d'irrégularités des cordons sont visibles *(Figure VI-39.c. et Figure VI-40.c.)*. Quelques exemples de draps pour l'Al_2O_3-ZrO_2 et l'Al_2O_3 sont présentés en *Figure VI-39* et *Figure VI-40*.

a)
Quinconce AR par couche
(couches N et N+1)

P42**V**200$\boldsymbol{\tau_r}$0,3
(E_l0,21)

b)
AR
(couche N)

P42**V**200$\boldsymbol{\tau_r}$0,3
(E_l0,21)

c)
Quinconce AR par couche
(couches N et N+1)

P126**V**400$\boldsymbol{\tau_r}$0,3
(E_l0,315)

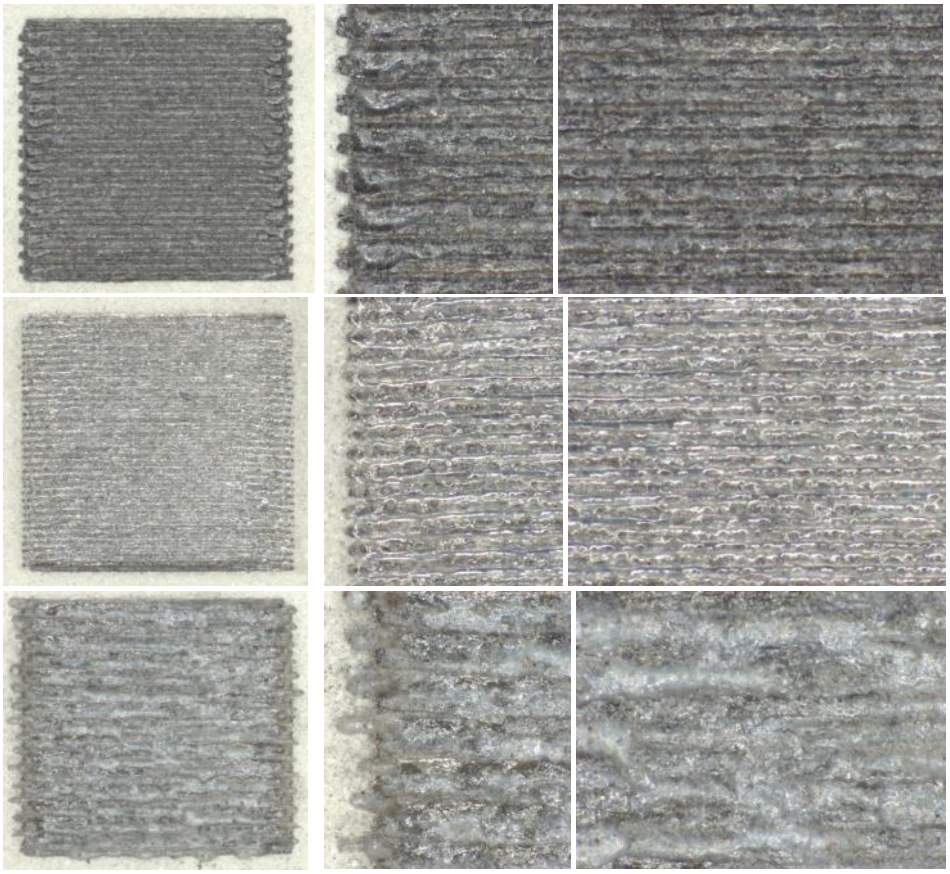


Figure VI-39 : Macrographies des draps 5x5 mm² du système {PAZ+0,5C_SAZ}

Tableau VI-5 : Plan d'expériences de l'étude 2D des systèmes {PAZ+0,5C_SAZ} et {PA+0,5C_SA}. En ✘, les draps identifiés comme instables.

$\Delta z_{poudre} = 30\mu m$	τ_r	Quinconce AR par couche		AR	
		PAZ+0,5C_SAZ	PA+0,5C_SA	PAZ+0,5C_SAZ	PA+0,5C_SA
P42V200(E$_l$0,21)	0,3	✓	✓	✓	✓
P42V400(E$_l$0,105)		✓	✓	✓	✓
	0,5		✓		✓
P84V400(E$_l$0,21)	0,3	✓	✓	✓	✓
P126V400(E$_l$0,315)		✘	✘	✘	✘
P168V800(E$_l$0,21)		✓		✓	

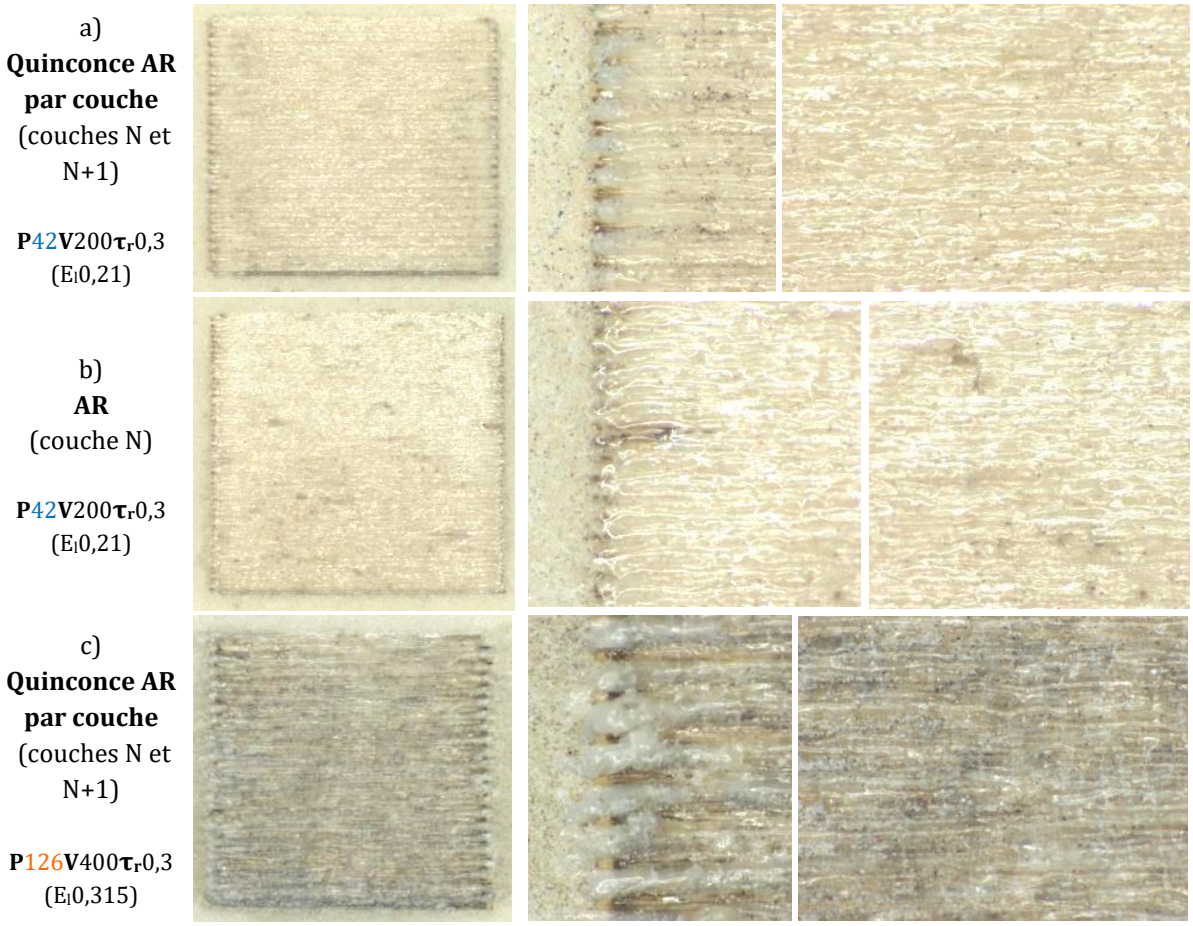


Figure VI-40 : Macrographies des draps 5x5 mm² du système {PA+0,5C_SA}

On remarque que l'Al_2O_3-ZrO_2 se réduit plus facilement que l'Al_2O_3. Cette réduction a un impact sur les propriétés optiques et particulièrement lors de la refusion des couches précédemment réduites.

VI.3.2 Étude 3D

La construction 3D sur compact de poudre ne s'est pas avérée viable car ce type de substrat non fritté n'est pas assez résistant conduisant à la décohésion des pièces (cubes) du compact dès la deuxième couche. L'utilisation d'un substrat dense permettant une bonne cohésion entre ce dernier et les pièces est la meilleure solution pour assurer une bonne construction car cette cohésion limite la rupture à l'interface pièce/substrat liée aux contraintes résiduelles. De plus, l'ajout de contours à chaque couche s'est avéré non concluant mais l'état de surface obtenu sans contours est déjà prometteur. Les contours amplifient les

contraintes résiduelles au sein des pièces et déstabilisent la fabrication, notamment par la décohésion des couches et ceci, dès les premiers stades de la fabrication.

Contrairement à l'étude 2D, l'étude 3D permet de souligner les différences entre les stratégies *Aller-Retour* et *Quinconce en Aller-Retour par couche*. Les plans d'expériences définis pour des constructions 3D de cubes de faible épaisseur (20 couches environ) sont présentés au *Tableau VI-6*. Les énergies linéiques choisies sont inférieures à 0,3 J.mm^{-1} conformément aux conclusions de l'étude 2D. Quelques cubes construits sont présentés en *Figure VI-41*.

Tableau VI-6 : Plan d'expériences de l'étude 3D des systèmes {PAZ+0,5C_SAZ} et {PA+0,5C_SA}. Cubes présentant un excès d'énergie : ✘ ; cubes présentant un manque d'énergie : ✘✘

$\Delta z_{poudre} = 30\mu m$	τ_r	Quinconce AR par couche		AR 0°/90°	
		PAZ+0,5C_SAZ	PA+0,5C_SA	PAZ+0,5C_SAZ	PA+0,5C_SA
P42V200(E$_l$0,21)	0,3	✓	✓	✘	✘
P42V400(E$_l$0,105)		✘✘	✘✘	✓	✘
	0,5	✘✘	✘✘	✘	✘
P84V500(E$_l$0,168)	0,3	✘✘		✘	
P84V600(E$_l$0,14)			✘		✘
P126V800(E$_l$0,158)		✘✘		✘	

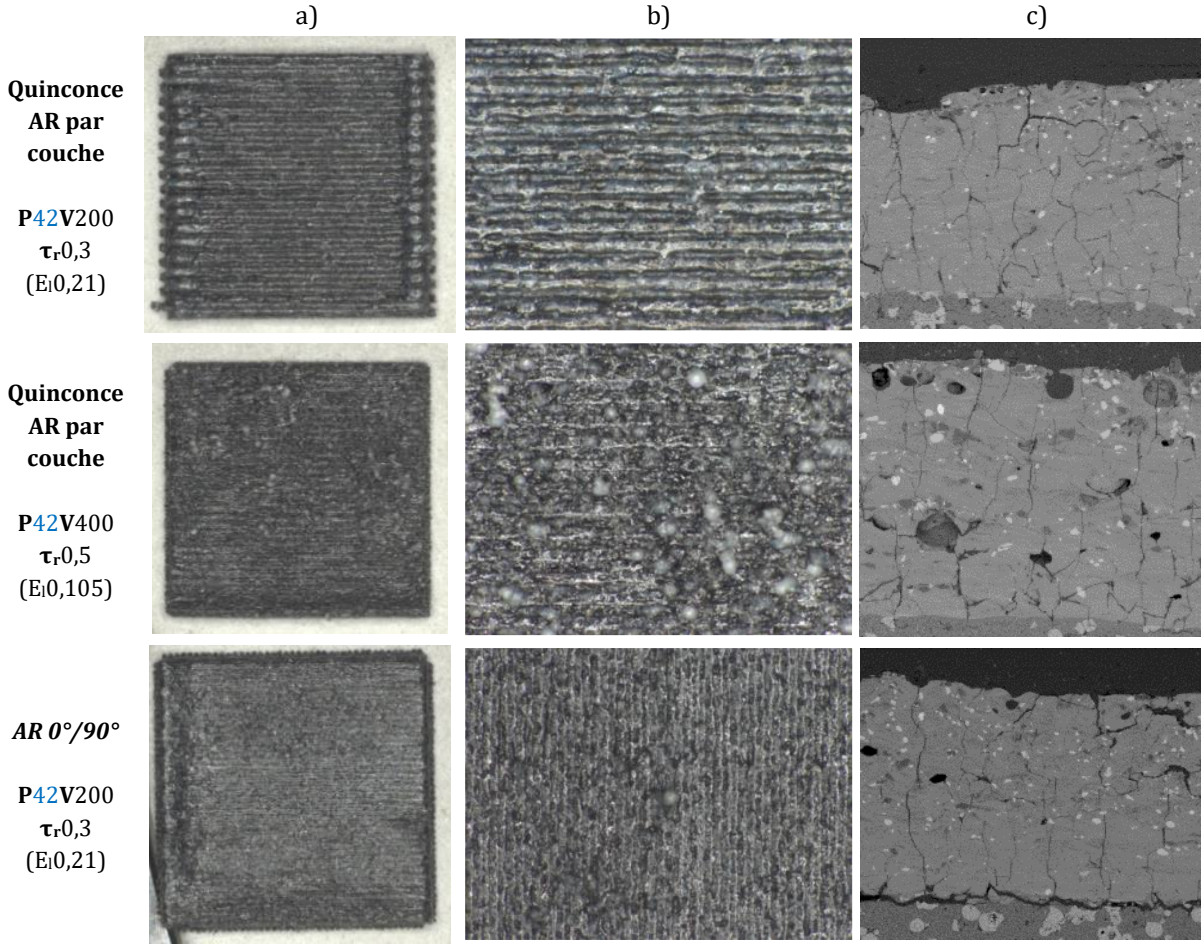


Figure VI-41 : Empilements de 20 couches d'Al_2O_3-ZrO_2 consolidées pour différentes conditions : a) et b) vues du dessus et c) clichés MEB en coupe

Signalons à l'image des résultats pour les murs 2D, que les paramétries aux fortes puissances et fortes vitesses (P84V500, P84V600 et P126V800) ne montraient pas de construction possible.

La stratégie en ***Quinconce en Aller-Retour par couche*** permet avant tout de compenser les éjections latérales de particules de poudre émanant de la zone dénudée. En effet, cette consolidation en quinconce est généralement efficace et permet de garder une bonne stabilité dimensionnelle avec des côtes proches des valeurs théoriques définies par la CAO, ce qui n'est pas le cas des draps construits en stratégie standard *Aller-Retour* *(Figure VI-42)*. Ici, pour τ_r=30%, une seule paramétrie se révèle comme étant stable pour les deux matériaux (Al_2O_3-ZrO_2 et Al_2O_3). Il s'agit de P42V200, pour une énergie linéique de 0 ,21 J.mm^{-1}. En dessous de cette énergie linéique, les couches des cubes ne semblent pas absorber une énergie suffisante pour permettre une consolidation stable. En effet, il est observé une sphéroïdisation (*balling*) des couches en surface. Augmenter le taux de recouvrement avec ce type de stratégie pourrait permettre d'améliorer la qualité des draps.

La **stratégie *Aller-Retour à 0°/90°*** permet d'obtenir une microstructure plus homogène avec une porosité réduite *(Figure VI-42.d)*. Cependant, cette stratégie n'aboutit pas à une bonne stabilité dimensionnelle des cubes suivant la hauteur z. Cette hauteur est fortement réduite, suite (1) au manque de matière qui n'est pas compensé d'un cordon à l'autre (le cordon N est fusionné dans la zone dénudée du cordon N-1) et (2) à l'écoulement des draps successifs. Par ailleurs, ces cubes peu épais sont bien plus déformés que les cubes précédents car les contraintes résiduelles y sont plus importantes. Ces cubes d'une vingtaine de couches ne bénéficient pas suffisamment du recuit par les couches précédentes. On distingue néanmoins sur la coupe, une forme de bain relativement proche de celle observée lors de la fabrication métallique. Dans ce cas, une paramétrie est stable pour l'Al_2O_3-ZrO_2 (P42V400) mais aucune pour l'Al_2O_3. En effet, il devient plus délicat de construire dans le cas de l'Al_2O_3 car les couches se désolidarisent facilement du substrat qui est transparent au rayonnement laser. La réduction des oxydes étant plus importante pour l'Al_2O_3-ZrO_2, l'absorption des couches précédemment fondues est bien meilleure que dans le cas de l'Al_2O_3 qui se réduit moins facilement.

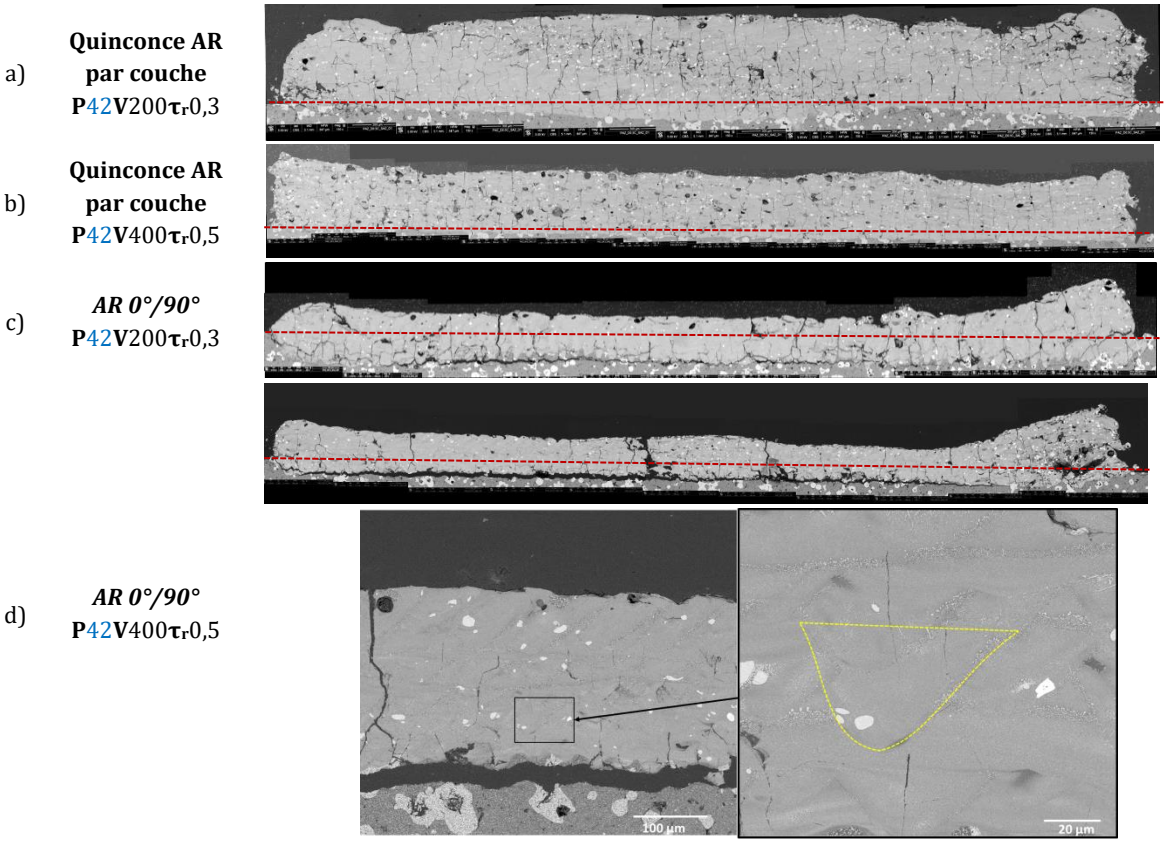


Figure VI-42 : Observations en coupe des empilements de 20 couches d' Al_2O_3-ZrO_2 (système {PAZ_SAZ})

L'effet du taux de recouvrement s'évalue facilement grâce aux mesures par profilométrie optique *(Figure VI-43)*. De fait, pour la stratégie en *Quiconque AR par couche*, l'augmentation du taux de recouvrement

permet de réduire la sphéroïdisation en surface *(Figure VI-43 a et c)*. Dans le cas de la stratégie *Aller-Retour 0°/90°*, cette augmentation de τ_r permet de diminuer la porosité inter-cordons mais peut mener à un écroulement et à une fissuration marqués des draps liés à leur surchauffe locale et aux gradients thermiques associés s'accompagnant de contraintes résiduelles élevées *(Figure VI-43 b et d)*.

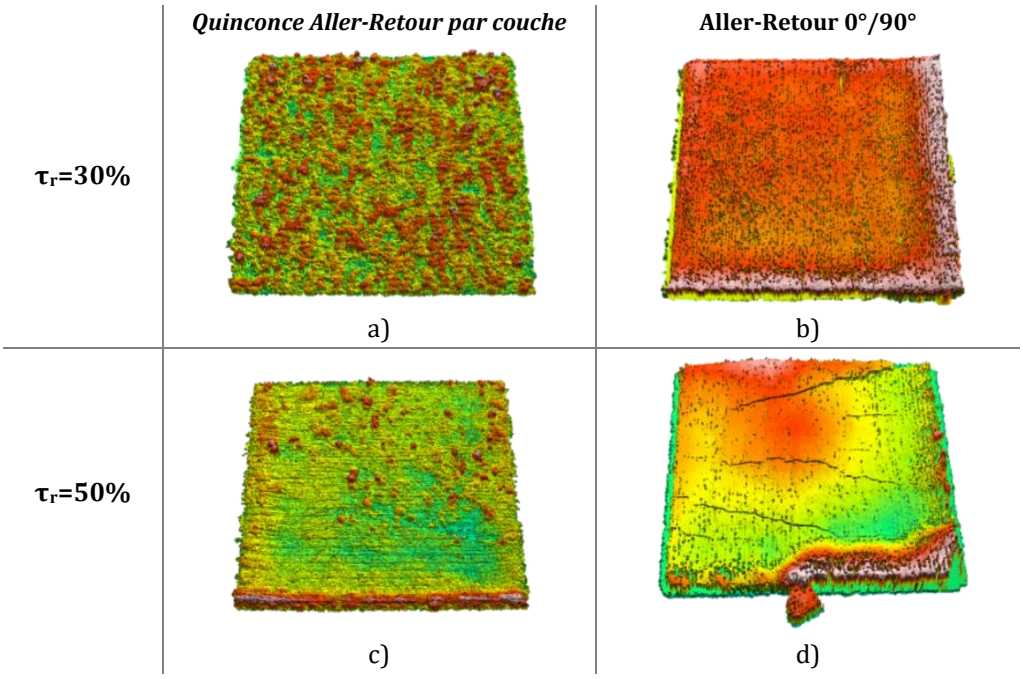


Figure VI-43 : Observation de la surface des cubes au profilomètre optique 3D réalisés à P42V400 pour différentes stratégies de balayage et taux de recouvrement

Il est donc clair que pour assurer une stabilité dimensionnelle, la stratégie en *Quinconce* est la plus adaptée. Néanmoins, la fenêtre de stabilité semble être très réduite en termes d'énergie linéique et taux de recouvrement. Dans le cas de cette stratégie, l'utilisation d'un taux de recouvrement élevée est moins critique que pour la stratégie *Aller-Retour*.

VI.3.3 Pièces 3D et traitements thermiques

La transposition de la méthodologie détaillée précédemment a permis la fabrication de pièces 3D pour les systèmes les plus stables à travers une stratégie en *Quinconce Aller-Retour par couche*. L'avantage de cette stratégie réside dans la reproductibilité du cordon 1D puisque le recouvrement des cordons n'a lieu qu'à la couche suivante au cours de laquelle le laser doit fondre deux épaisseurs de poudre et former une zone diluée avec la précédente couche consolidée. Une étude 1D suffisamment complète a permis alors de définir directement la stratégie 3D à condition d'ajuster le taux de recouvrement.

VI.3.3.1 Ré-oxygénation

Il est intéressant de noter que la réduction des céramiques oxydes semble être facilement réversible. Des traitements thermiques de ré-oxygénation sous air sont réalisés sur les pièces 3D d'Al_2O_3 et d'Al_2O_3-ZrO_2 sont suivis en ATD (*analyse thermique différentielle*) pour une montée et descente en température à 10°C/min avec un palier de 2h à la température choisie. Ce cycle thermique est répété deux fois pour une meilleure mise en évidence et compréhension de la cinétique de ré-oxygénation *(Figure VI-44)*.
Dans le cas d'un palier à 1500°C pour l'alumine, au cours du premier cycle il y a présence en début de palier isotherme d'un pic endothermique qui s'étend sur une durée d'environ 6000 s avant un retour à la

ligne de base définie par le second cycle ATD *(Figure VI-44.b)*. En effet, au cours du second cycle, il n'y a plus de pic endothermique durant le palier. Ce pic endothermique est donc clairement lié à la ré-oxygénation (diffusion de l'oxygène) et l'aire sous le pic est proportionnelle à la quantité d'oxygène perdue lors du lasage si on néglige celle qui est résorbée par diffusion lors de la montée en température. La même expérience pour un palier à 1200°C *(Figure VI-44.a)* ne montre pas la présence de pic endothermique durant le palier isotherme, ce qui indiquerait que la température d'activation pour la diffusion de l'oxygène dans l'Al_2O_3 n'est pas atteinte. En effet, un traitement thermique de 2h à 1500°C, permet de blanchir l'échantillon d'Al_2O_3 tandis que pour un traitement à 1200°C, il ressort noir comme dans l'état brut de fabrication.

Un traitement thermique de de 2h à 800°C de l'Al_2O_3-ZrO_2 suffit pour observer le pic endothermique en début de palier lors du premier cycle ATD *(Figure VI-44.c)* et l'échantillon ressort blanc. A 800°C, la diffusion de l'oxygène semble donc opérer mais la durée de 2h est insuffisante (non retour à la ligne de base) pour résorber toute la perte d'oxygène générée lors du lasage. Aussi le traitement de ré-oxygénation est un phénomène activé thermiquement puisqu'il est régi par la diffusion de l'oxygène de l'air. La cinétique du traitement de ré-oxygénation est donc affectée par la température de palier. Plus cette température est importante, plus le temps de ré-oxygénation est court.

Pour résumer, le traitement thermique de ré-oxygénation de l'alumine est effectif au-delà de 1200°C et la ré-oxygénation est totale après 2h de chauffe à 1500°C mais 1h40min suffirait amplement. Pour l'alumine-zircone, la ré-oxygénation s'opère à 800°C mais 2h de chauffe reste insuffisant pour une totale ré-oxygénation du matériau. Ce traitement peut être accéléré par une augmentation de la température palier.

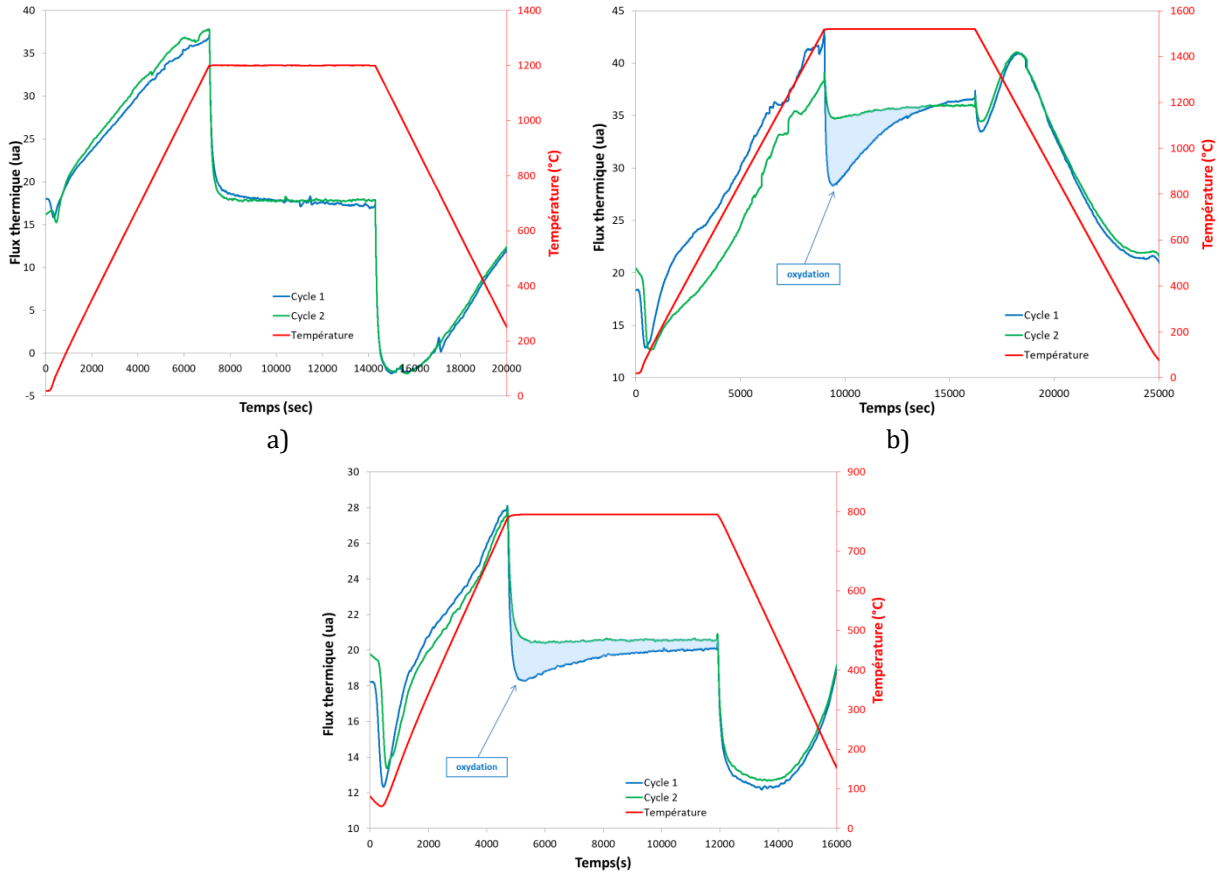


Figure VI-44 : ATD réalisée pour PA+0,1C_SA avec un pallier de 2h à a) T_{palier} =1200°C b) T_{palier}=1500°C et pour c) PAZ_SAZ avec T_{palier}= 800°C

VI.3.3.2 Alumine et Carbone

La manip coin sur le système {PA+0,1C_SA} a permis de définir des domaines précis {P,V, Δz_{poudre}} pour l'étude 3D *(Figure VI-45.a)*. Le domaine de stabilité le plus large a été identifié pour $\Delta z_{poudre} = 100\ \mu m$ et pour des énergies linéiques telles que $0{,}1 \leq E_l(J.mm^{-1}) \leq 0{,}3$. Ainsi, les meilleures pièces produites sous air avec les paramètres identifiés, soit P84V200τ_r0,1 et P84V200τ_r0,2 sont des cylindres de diamètre 5 mm avec une densité relative plutôt encourageante de l'ordre de 90% *(Figure VI-45.b-c)*. On note que l'effet de l'énergie linéique (P/V) est plus marqué que l'effet du taux de recouvrement (τ_r). Il est probable que le taux de porosité soit proportionnel à l'énergie linéique si l'on considère que les cylindres *1, 2* et *3* ont été affectés par des phénomènes perturbateurs tels que leur position excentrée sur le substrat de fabrication par rapport aux cylindres *4 ,5, 7* et *8* situés au centre du substrat.

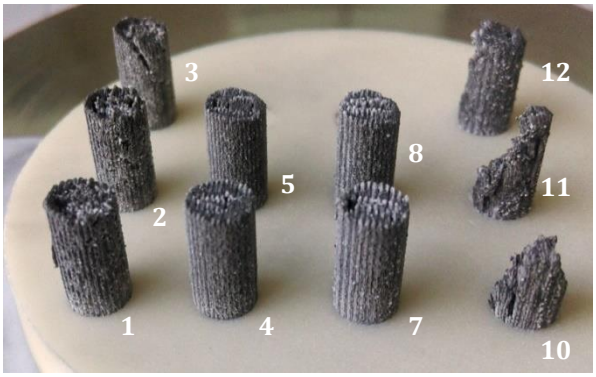
$\Delta z_{poudre} = 100\mu m$	P (W)	V (mm.s^{-1})	E_l (J.mm^{-1})	τ_r	Santé matière
1	42	75	0,56	0,1	✗
2	42	75	0,56	0,2	✗
3	42	75	0,56	0,3	✗
4	84	200	0,42	0,1	✓
5	84	200	0,42	0,2	✓
6	84	200	0,42	0,3	✗✗
7	126	200	0,63	0,1	✓
8	126	200	0,63	0,2	✓
9	126	200	0,63	0,3	✗✗
10	168	100	1,68	0,1	✗✗
11	168	100	1,68	0,2	✗✗
12	168	100	1,68	0,3	✗✗

✓ : construction complète et faible taux de porosité

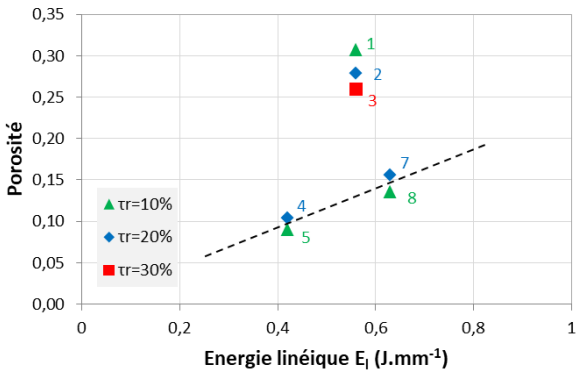
✗ : construction complète mais fort taux de porosité

✗✗ : pas de construction ou construction incomplète

a)



b)



c)

Figure VI-45 : Résultats de l'étude 3D du système {PA+0,1C_SA} a) plan d'expériences b) cylindres de 1 cm de haut c) taux de porosité mesuré par la méthode des 3 pesées

Le traitement thermique de détensionnement sous air à 1700°C durant 24h a permis de ré-oxygéner la pièce de meilleure densité relative *(cylindre 5-Figure VI-46)*. L'analyse EBSD (*Electron BackScattered Diffraction*) avant et après traitement thermique met en évidence que la taille des grains n'évolue pas de manière notable *(Figure VI-47.b)*. Toutefois, il est observé un déplacement de la position du maximum de la distribution des tailles de grains (passage d'une taille de 20 à 40µm après traitement à 1700°C pendant 24h). L'analyse EBSD met également en évidence l'orientation dirigée des grains selon l'axe de fabrication *(Figure VI-47.a)*. Cela suggère que les propriétés mécaniques seront différentes suivant que la sollicitation sera parallèle à l'axe de construction ou parallèle au plan des couches. De plus, la comparaison microstructurale d'une portion brute de fabrication avec une portion traitée thermiquement du cylindre 5 montre que ce traitement thermique à 1700°C pourrait partiellement résorber la microfissuration observée *(Figure VI-48)*. Cet effet devrait être confirmé par la variation de la contrainte à rupture en flexion quatre points sur des échantillons bruts et traités.

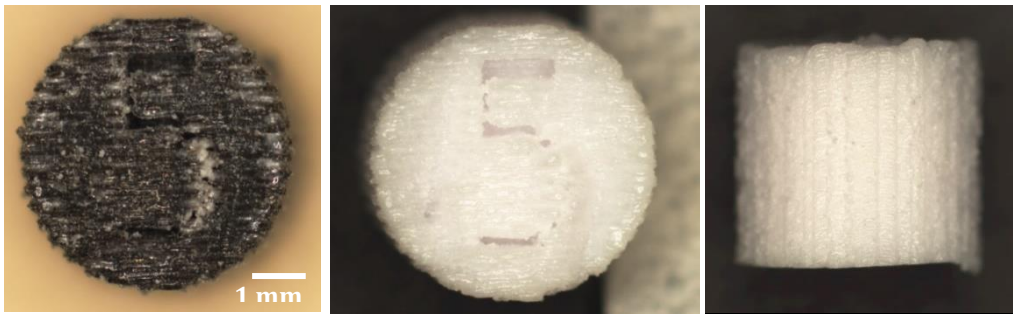
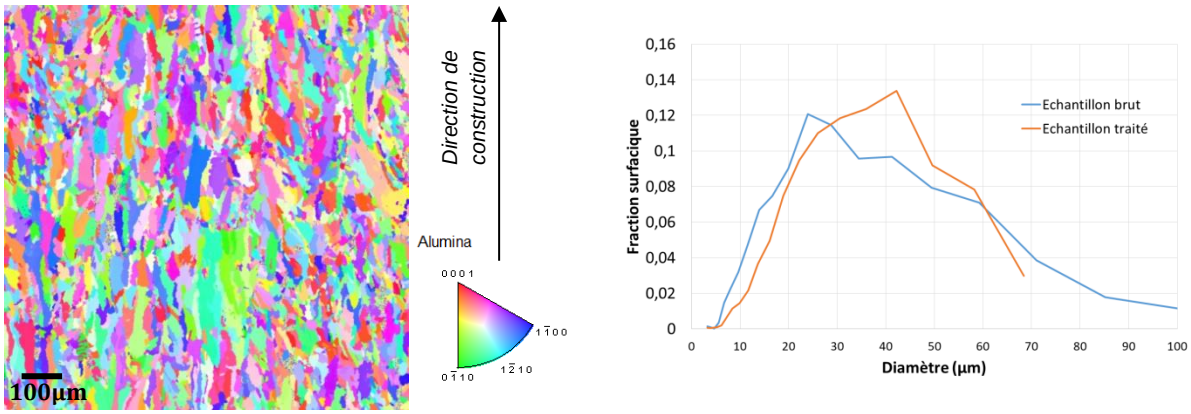
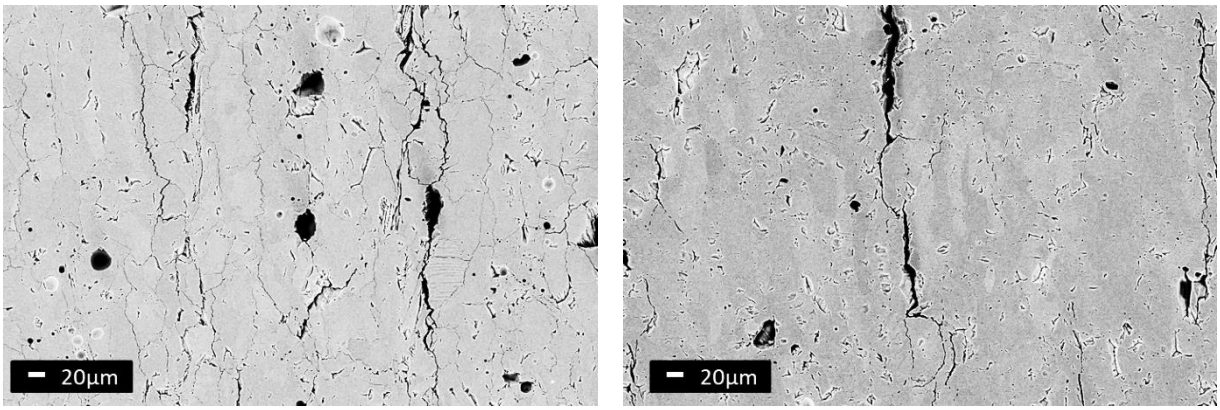


Figure VI-46 : Vue au microscope optique du cylindre 5 - P84V200τ$_r$0,2 de l'étude 3D du système {PA+0,1C_SA} avant et après traitement thermique de détensionnement et de ré-oxygénation sous air



a) b)

Figure VI-47 : a) EBSD sur le cylindre 5 - P84V200τ$_r$0,2 de l'étude 3D de {PA+0,1C_SA} avant traitement thermique b) évolution de la taille des grains avant et après traitement thermique

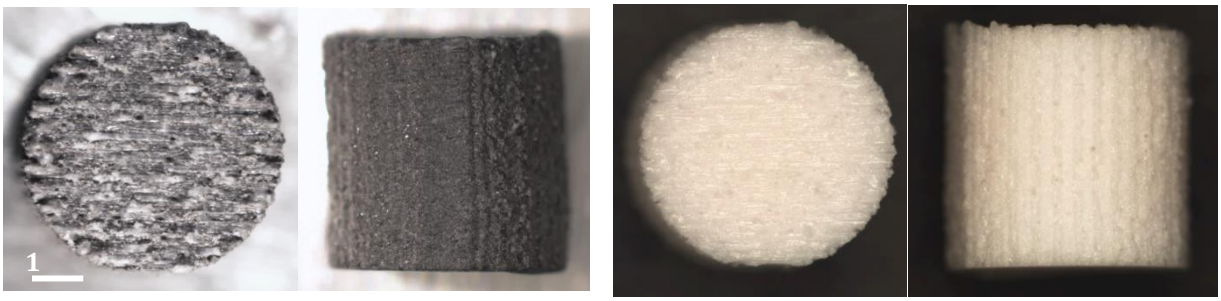


a) b)

Figure VI-48 : Observation MEB du cylindre 5 de l'étude 3D de {PA+0,1C_SA} sur une portion a) brute de fabrication et b) traitée thermiquement à 1700°C durant 24h sous air

VI.3.3.3 Alumine et SiC-β

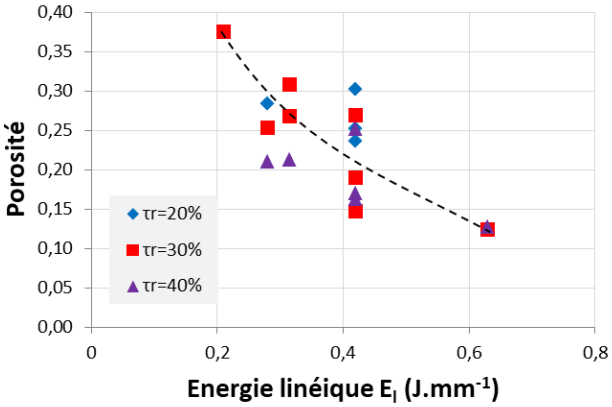
Dans le cas du système {PA+0,5SiC-β_SA}, sans manip coin, l'étude 3D a été poursuivie avec un Δz_{poudre}= 60µm *(Figure VI-50)*. Les mesures de densité relative montrent clairement que la porosité diminue avec l'augmentation de l'énergie linéique (pas d'effet de V ni de P noté), contrairement au mélange alumine-carbone. Le taux de recouvrement semble avoir un effet important surtout aux faibles énergies linéiques. Les meilleures constructions apparaissent pour de fortes énergies linéiques et de forts taux de recouvrement. De nouveau, le traitement thermique sous air à 1700°C durant 24h a permis la ré-oxygénation des échantillons d'alumine *(Figure VI-49)*.



a) b)

Figure VI-49 : Vue au microscope optique de l'échantillon 12 – P126V200τ$_r$0,2, de l'étude 3D du système {PA+0,5SiC-β_SA} avant et après traitement thermique de détensionnement et de ré-oxygénation sous air

Δz_{poudre} = 60 µm	P (W)	V (mm.s^{-1})	E_l (J.mm^{-1})	τ_r	Santé matière
1	42	100	0,42	0,2	✗
2	42	100	0,42	0,3	✗
3	42	100	0,42	0,4	✗
4	42	200	0,21	0,3	✗
5	84	200	0,42	0,2	✗
6	84	200	0,42	0,3	✓
7	84	200	0,42	0,4	✗
8	84	300	0,28	0,2	✗
9	84	300	0,28	0,3	✗
10	84	300	0,28	0,4	✗
11	126	400	0,315	0,3	✗
12	126	200	0,63	0,2	✓
13	126	200	0,63	0,3	✓
14	126	200	0,63	0,4	✓
15	126	300	0,42	0,2	✗
16	126	300	0,42	0,3	✗
17	126	300	0,42	0,4	✓
18	126	400	0,315	0,2	✗✗
19	126	400	0,315	0,3	✗
20	126	400	0,315	0,4	✗



✓ : construction complète et faible taux de porosité
✗ : construction complète mais fort taux de porosité
✗✗ : pas de construction ou construction incomplète

a) b)

Figure VI-50 : Résultats de l'étude 3D du système {PA+0,5SiC-β_SA} a) plan d'expériences b) taux de porosité mesurés par la méthode des trois pesées

VI.3.3.4 Alumine-zircone

L'étude 3D du système PAZ_SAZ, intéressant pour sa microstructure, a été difficile car la répétabilité est limitée *(§VI.1.1.1b)* et le domaine de stabilité 3D semble extrêmement réduit pour Δz_{poudre}= 60 µm. De plus le manque de substrats denses et de poudre a été un frein à la multiplication des expériences. L'accroche des premières couches au substrat est primordiale et doit être résistant. L'ajout de supports, à savoir des treillis entre le substrat et le bas de la pièce pour venir accommoder les retraits à la solidification des premières couches, n'a pas permis d'améliorer l'accroche au substrat. Les quelques mesures de densité relative montrent néanmoins que la porosité des pièces finales dépend fortement de l'énergie linéique *(Figure VI-51)*.

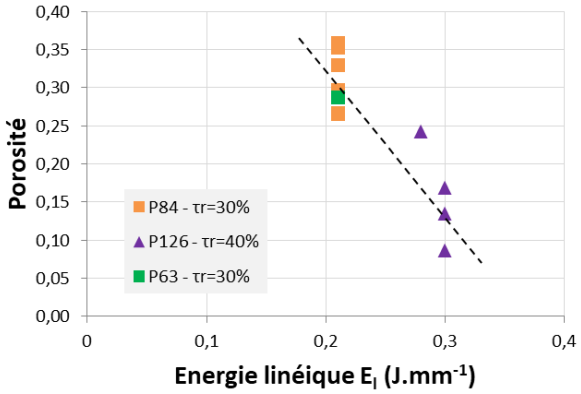
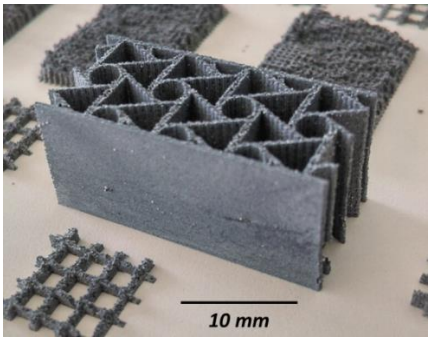


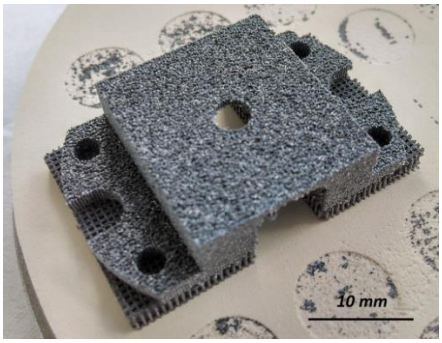
Figure VI-51 : Résultats de l'étude 3D du système {PAZ_SAZ} : taux de porosité mesurés par la méthode des 3 pesées

Les quelques pièces massives et architecturées réussies montrent la précision du procédé *(Figure VI-52-Figure VI-54)*. Les paramétries intéressantes possèdent des énergies linéiques se situant autour de 0,3 J.mm^{-1}, il s'agit des paramétries :

- **P84V280τ_r0,3**
- **P126V420τ_r0,3**

Aux plus faibles énergies linéiques, la porosité augmente ; et aux faibles taux de recouvrement, il semble y avoir un manque d'énergie déposée (sphéroïdisation des surfaces, à savoir une surface granuleuse - *Figure VI-52.b*). Pour des taux de recouvrement ou puissances trop élevées, les pièces présentent un décollement des premières couches, probablement lié à des fortes contraintes résiduelles *(flèches jaunes en Figure VI-53)* et à la porosité du substrat. Il est notamment possible d'utiliser un substrat dense fabriqué directement par LBM directement. De plus, l'ajout de contours semble augmenter la déformation des pièces.





a) b)

Figure VI-52 : Pièces alumine-zircone construites selon les paramétries a) P84V280τ_r0,3 b) P84V400τ_r0,3

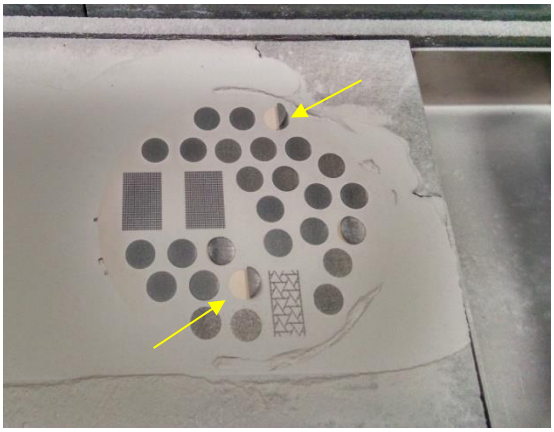


Figure VI-53 : Etat des premières couches de fabrication sur un substrat poreux Alumine-Zircone de diamètre 100 mm

A partir de la pièce de plus grand volume en forme d'aube de turbine *(Figure VI-54)*, une tomographie a permis l'observation de la porosité interne *(Figure VI-55)*. Il s'agit de pores inter-cordons situés en fin de balayage de certaines couches. Ils sont certainement liés à des défauts ponctuels de mise en couche puisque l'aube occupe quasi toute la surface du substrat à chaque mise en couche dont la compacité est fortement hétérogène entre le bord et le centre. Dans le cas contraire, ces pores peuvent être facilement compensés par l'optimisation de la stratégie de balayage, notamment en passant de la stratégie *Quinconce Aller-Retour par couche* à la *Quinconce Aller-Retour par cordon* *(Figure VI-32)* ou en ajustant légèrement le taux de recouvrement.

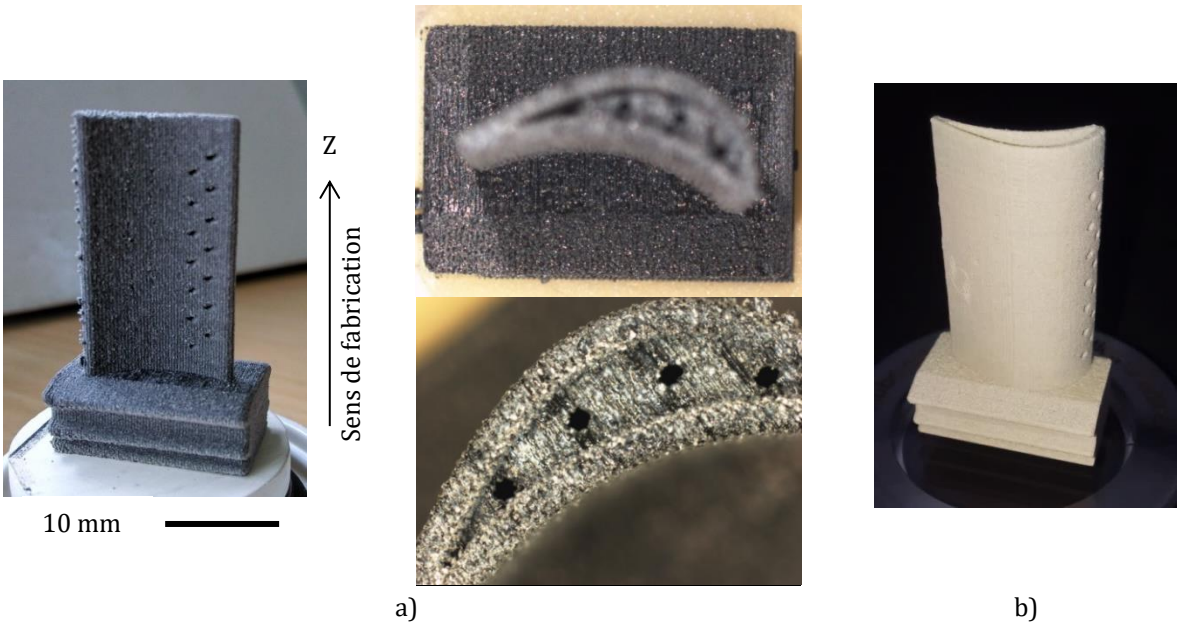


Figure VI-54 : Pièce alumine-zircone obtenue à P84V280τ_r0,3 a) à l'état brut b) après traitement de ré-oxygéntaion

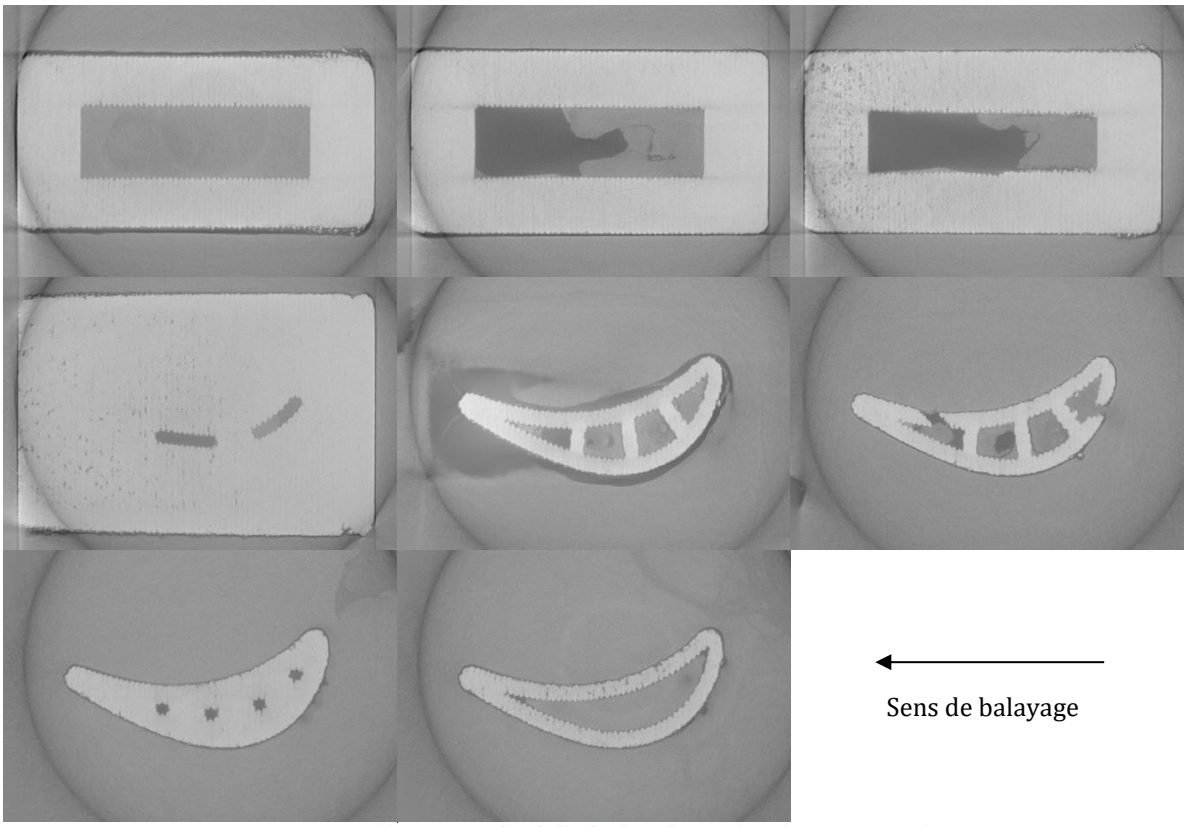


Figure VI-55 : Tomographie de l'aube de trubine présentée en Figure VI-54

Les microstructures eutectiques obtenues par LBM présentent une quantité non négligeable de précipités monophasés d'alumine et de zircone. Dans la ZAT (zone affectée thermiquement), on observe une sphéroïdisation de la zircone et un grossissement de l'eutectique *(Figure VI-56)*.

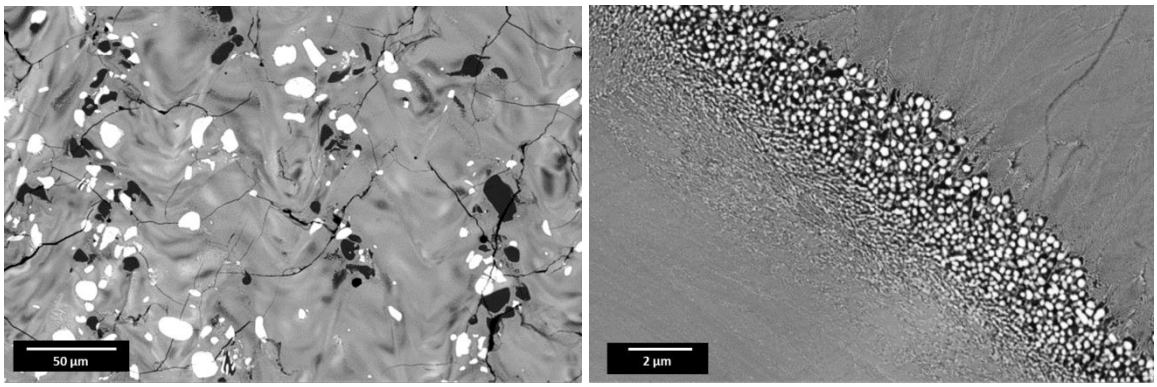
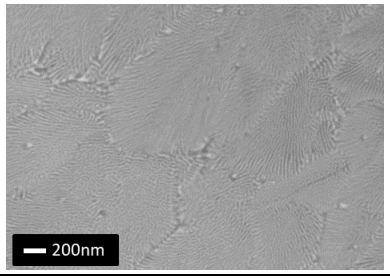
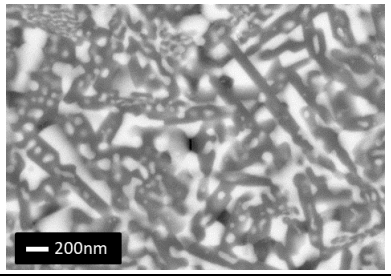
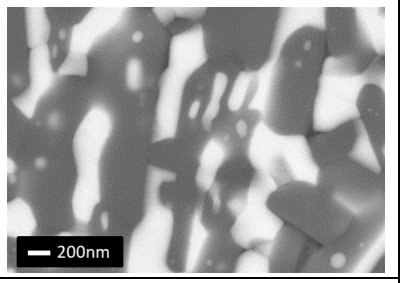
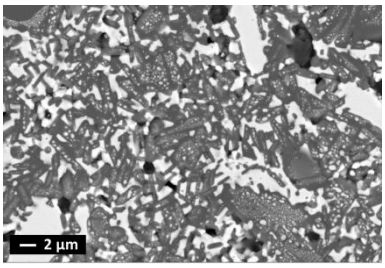
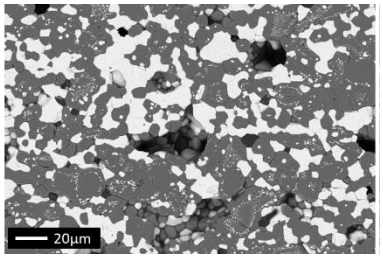
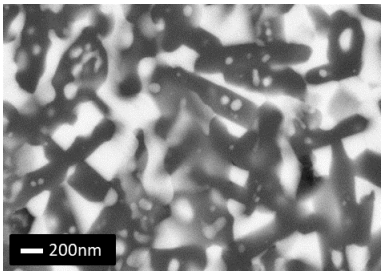
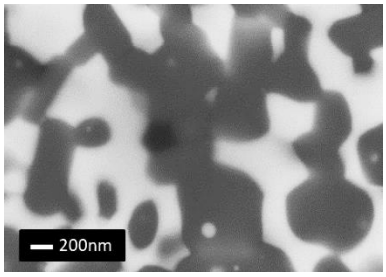


Figure VI-56 : Microstructure de pièces 3D {PAZ_SAZ} brutes de LBM

On remarque que l'eutectique se décompose après vieillissement en température sous air, simulant ainsi l'environnement que l'aube est censée rencontrer en fonctionnement. Après décomposition, les phases tendent à coalescer, et ces deux phénomènes sont activés thermiquement c'est-à-dire que le temps sera d'autant plus long que la température de vieillissement sera faible *(Tableau VI-7)* :

- Au bout de 2h de vieillissement : début de décomposition entre 1100 (non compris) et 1300°C
- Au bout de 24h de vieillissement : début de décomposition à T≤1300°C
- Au bout de 300h de vieillissement, la décomposition s'opère à T≤1200°C

Tableau VI-7 : Microstructure des échantillons {PAZ_SAZ} après traitement thermique sous air

Vieilli 2h	**1100°C** 	**1300°C** 	**1500°C** 
Vieilli 24h		**1300°C** 	**1700°C** 
Vieilli 300h	**1200°C** 		**1500°C** 

VI.3.3.5 Mélange céramique-métal

Enfin, une brève étude sur le mélange céramique-métal a permis la construction de pièces 3D. Bien que les taux de porosité obtenus soient élevés, nous remarquons là encore, l'effet bénéfique d'une augmentation de l'énergie linéique. Néanmoins, dans ce cas, les « bonnes densités relatives » correspondent à des énergies linéiques supérieures à 1 J.mm^{-1}. Ceci est lié à la meilleure mouillabilité de la phase alumine par le métal liquide, qui joue ici le rôle d'absorbant.
Signalons que la ré-oxydation de ces échantillons n'est pas possible car elle risquerait d'oxyder la phase métallique.

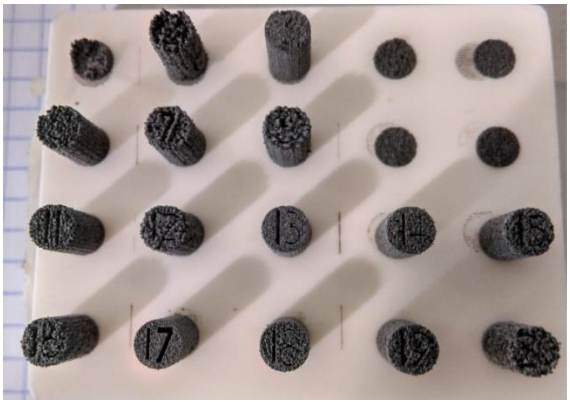
$\Delta z_{poudre} = 100\mu m$	P (W)	V (mm.s^{-1})	E_l (J.mm^{-1})	τ_r	Santé matière
1	42	50	0,84	0,3	✗✗
2	63	50	1,26	0,3	✗
3	84	400	0,21	0,3	✗
4	126	400	0,315	0,3	✗✗
5	42	100	0,42	0,3	✗✗
6	63	100	0,63	0,3	✗
7	84	100	0,84	0,3	✗
8	126	100	1,26	0,3	✓
9	42	200	0,21	0,3	✗✗
10	63	200	0,315	0,3	✗✗
11	84	200	0,42	0,3	✗
12	126	200	0,63	0,3	✗
13	42	300	0,14	0,3	✗
14	63	300	0,21	0,3	✗
15	84	300	0,28	0,3	✗
16	126	300	0,42	0,3	✗
17	42	300	0,14	0,4	✗
18	63	300	0,21	0,4	✗
19	84	300	0,28	0,4	✗
20	126	300	0,42	0,4	✗

✓ : construction complète et faible taux de porosité

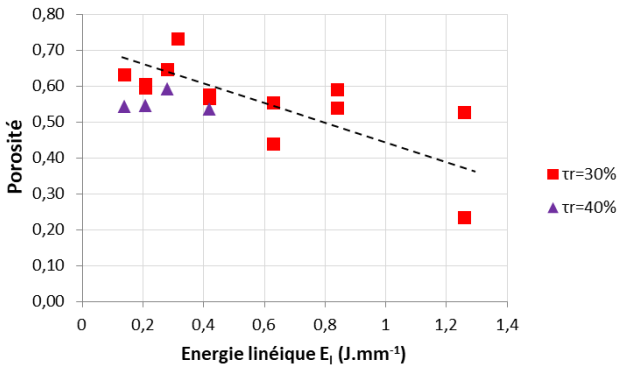
✗ : construction complète mais fort taux de porosité

✗✗ : pas de construction ou construction incomplète

a)



b)



c)

Figure VI-57 : Résultats de l'étude 3D du système {PA+INCO_SA+INCO} a) plan d'expériences b) cylindres de 10 mm de haut c) taux de porosité mesurés par la méthode des 3 pesées

VI.4 Conclusion du Chapitre VI

L'**étude 1D** a permis l'identification des différents domaines morphologiques de cordons stables et instables liés à l'interaction laser-matière. Des critères de stabilité ont alors été définis : en dehors de la continuité et de la rectitude, la dispersion critique sur la hauteur du cordon combinée à des rapports critiques d'élancement permettent d'encadrer les paramètres opératoires menant à une morphologie de monocordon géométriquement stable. La « manip coin » est une méthode intéressante pour identifier rapidement la fenêtre de stabilité des monocordons en prenant simultanément en compte les trois paramètres 1D, (P, V, Δz_{poudre}) qui ont varié lors de l'étude.
L'**alumine-zircone** de réception à $\Delta z_{poudre} = 50$ µm présente une fenêtre de stabilité des monocordons suffisamment large pour la construction de pièces 3D. Toutefois, la fenêtre de construction semble dépendre de l'épaisseur du lit de poudre dont la valeur optimale est de 50 µm. Par ailleurs, pour $\Delta z_{poudre} = 95\ \mu m$, cette fenêtre de stabilité apparaît difficilement répétable. Enfin, l'ajout de carbone à l'alumine-zircone de réception s'avère néfaste car il réduit sensiblement la fenêtre de construction. En revanche, l'ajout d'absorbant en faible teneur (0,1-0,5%m. C ou SiC-β) jusqu'à une valeur optimale est nécessaire et bénéfique à la fusion de l'**alumine** pure. En effet, tant que la teneur massique en carbone ou en SiC-β ne dépasse pas 0,5%, la fenêtre de stabilité du monocordon s'élargit aux fortes vitesses de balayage rendant plus productif le procédé LBM de l'alumine.
Le **modèle analytique d'évolution de la morphologie du cordon** céramique avec l'énergie linéique suit le modèle à deux cercles pour la calotte supérieure et inférieure de la section transverse d'un cordon métallique tant que l'énergie linéique reste faible et que les cordons sont supposés stables pour les systèmes suffisamment absorbants. Mais contrairement aux matériaux métalliques, la fenêtre de stabilité des cordons céramiques comprend des profondeurs de bains plus importantes en raison de leur transparence au rayonnement laser. Aussi, aux plus fortes énergies linéiques de la fenêtre de construction et pour les systèmes les plus transparents, le modèle à deux cercles n'est plus valable pour les céramiques et il est remplacé par le modèle triangulaire. Il s'ensuit alors une réévaluation de l'encadrement des facteurs de forme des cordons céramiques.
Un **modèle de consolidation** du lit de poudre a été développé pour prendre en compte la zone dénudée observée de part et d'autre d'un cordon ainsi que la perte de matière (éjectas liquides et particules solides en avant du bain) dans la zone de consolidation. Aux faibles énergies linéiques (fortes vitesses et faibles puissances), une partie des particules de la zone dénudée est redéposée sur le LDP environnant tandis qu'une autre partie peut venir contribuer à la consolidation du cordon. C'est le cas aux très faibles énergies linéiques pour un système absorbant tel que l'alumine-zircone de réception. Les cordons sont alors suralimentés et l'alimentation du bain en particules issues de la zone dénudée prend le pas sur les éjections issues de la zone de consolidation. Pour le cas transparent de l'alumine pure, il n'y a pas d'alimentation du bain par ces particules solides éjectées de la zone dénudée. Aux fortes énergies linéiques (vitesses faibles et puissances élevées), il y a de fortes pertes de matière issus de la zone de consolidation notamment via les éjectas liquides issus du bain. Les cordons sont sous-alimentés et aplatis sauf dans le cas où la forte teneur en absorbant provoque un gonflement des cordons avec de la porosité. Enfin, aux très faibles énergies linéiques (cordons instables, exempts de rectitude et de continuité), il semblerait que l'interaction laser-matière n'induise pas d'échanges de particules.

L'**étude 2D des murs** montre clairement que leur construction est stable avec de faibles valeurs de puissance (P<84W) et de vitesse (V<500 mm.s^{-1}) pour les céramiques étudiées. Des énergies linéiques entre 0,1 et 0,2 J.mm^{-1} apparaissent alors suffisantes. L'**étude 2D des draps** a mis en évidence la création de points chauds aux fortes énergies linéiques et aux forts taux de recouvrement, principalement pour les stratégies standard en *Aller* ou *Aller-Retour* pouvant rendre la fusion d'une couche instable. Il convient donc de rechercher une stratégie de balayage plus adaptée comme la *Quinconce*.

L'**étude 3D** a permis de montrer que la stratégie en Q*uinconce Allers-Retours par couche* semble bien adaptée pour compenser l'éjection de particules de poudre de la zone dénudée et obtenir des pièces « *near-net shape* ». L'avantage de la stratégie en *Quiconque* réside dans la reproductibilité du cordon 1D d'une couche à l'autre, ce qui facilite le passage direct de la stratégie 1D à 3D.
Les **domaines stables de fabrication** sont étroits, surtout pour l'alumine-zircone qui est peu répétable. L'étude 3D a toutefois permis la fabrication de pièces avec des taux de porosité d'environ 10%, pour les systèmes céramiques les plus stables : {PA+0,1C_SA} pour $E_l = 0{,}42\, J.mm^{-1}$; {PA+0,5SiC_SA} pour $E_l = 0{,}63\, J.mm^{-1}$ et {PAZ_SAZ} pour $E_l = 0{,}30\, J.mm^{-1}$. Une courte étude a également montré la faisabilité des pièces pour le mélange céramique-métal {PA+INCO_SA+INCO}. Des taux de porosité raisonnables (≈20%) ont été obtenus pour des énergies linéiques bien supérieures aux valeurs des systèmes céramiques ($E_l = 1{,}26\, J.mm^{-1}$). Des études plus complètes pourront aboutir à des taux réduits de porosité. Soulignons que les pièces 3D demandent de plus fortes énergies linéiques que les murs 2D du fait que les stratégies de balayage sont différentes et qu'elles demandent à fondre des hauteurs de poudre deux fois plus importantes pour la stratégie en *Quiconque* des constructions 3D comparativement aux stratégies *Aller* ou *Aller-Retour* des constructions 2D.
Afin de garantir une bonne accroche de la pièce au **substrat**, l'emploi d'un substrat absorbant et de même nature que le lit de poudre est nécessaire. Le choix pourra se porter vers un substrat réduit (*i.e.* sous-stœchiométrique en oxygène) ou mélangé à un absorbant mais en quantité très limitée afin de ne pas introduire trop de porosité lors de sa combustion (dégagement gazeux). Le substrat choisi doit également être dense pour empêcher le décollement des premières couches par la présence de retraits différentiels à l'origine des contraintes résiduelles.
Les **microstructures** obtenues présentent des grains orientés selon l'axe de fabrication (z). Le traitement thermique de ré-oxygénation optimisé par ATD a démontré son efficacité sur pièce et présente une température d'activation supérieure (entre 1200°C et 1500°C) pour l'alumine par rapport à l'alumine-zircone (aux alentours de 800°C). Il apparait qu'une durée de 2h est plus que suffisant pour l'alumine à 1500°C alors qu'une telle durée est insuffisante pour l'alumine-zircone à 800°C. Malheureusement, l'eutectique alumine-zircone se décompose après vieillissement dès 1200°C sous air mais reste stable après 2h à 1100°C.
Les post-traitements peuvent permettre de réduire la porosité résiduelle à condition d'affiner les fenêtres de stabilité 3D encore peu élaguées. Opter pour une stratégie en *Quinconce Aller-Retour sur les cordons* d'une même couche qui pourrait réduire encore davantage la porosité (manques de matière et de fusion) en équilibrant les éjections de particules de poudre.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le LBM est un procédé additif encore peu développé aujourd'hui pour la fabrication de matériaux céramiques oxydes. Il s'agit d'un procédé direct qui ouvre la porte à une série d'applications pour des pièces de forme complexe à microstructure orientée. Ce procédé va permettre dans un futur proche une réelle rupture technologique dans les domaines aéronautique et spatial. Les propriétés intrinsèques des céramiques oxydes, et notamment de l'eutectique alumine-zircone, en font de bonnes candidates pour une utilisation à haute température et dans des environnements critiques. Dans cette étude, l'alumine a servi de matériau modèle, cette dernière ayant été nettement plus étudiée dans la littérature.

La **fabrication par LBM de ces matériaux fragiles** est cependant ralentie par deux problématiques : la transparence de ces matériaux aux rayonnements des lasers Yb:YAG utilisés en LBM et leur faible résistance aux chocs thermiques de par leur faible ténacité. Le matériau est rendu absorbant grâce à l'ajout d'absorbants à la poudre céramique pure. Dans cette étude, l'absorbant choisi peut-être éphémère (C ou SiC-β), par sa réaction en température avec l'oxygène, ou persistant (particules métalliques d'Inconel 625 pour sa bonne mouillabilité avec l'alumine). Dans le cas d'un absorbant qui ne se consomme pas durant l'interaction avec le laser, il sera important par la suite de caractériser son impact vis-à-vis de la tenue mécanique des pièces.

L'observation de la fissuration transverse des monocordons et les solutions envisagées sont encourageantes pour la faisabilité de ces céramiques eutectiques par LBM. *L'utilisation d'un post-chauffage, actuellement en cours de développement au* Centre des Matériaux *via un système de chauffe coaxial par un laser dé-focalisé (ou à grand diamètre de spot) autour d'un laser de fusion (à plus petit diamètre de spot) apparaît comme une solution* (Grange 2020).

Un **bain LBM** se divise en trois principales régions :

- En amont du bain s'opère le contact du liquide avec les particules non fondues du lit de poudre, lesquelles commencent à fondre en avant du faisceau laser. Le liquide qui se développe alors est oscillant comme la houle et peut déborder en avant sur le lit de poudre et provoquer des éjectas liquides qui se sphéroïdisent.
- Sous le faisceau laser se produit une dépression dans le liquide suite à une évaporation importante à la surface du bain. Il se forme une cavité profonde, laquelle est engendrée par une pression de recul qui se trouve être proportionnelle à la pression de vapeur saturante. La pression de recul expulse, le long du capillaire, une partie du liquide hors du bain (éjectas liquides). La dépression et l'ablation subséquente contribuent significativement à l'introduction d'instabilités du bain telles que les éjections de particules solides vers l'arrière du bain.
- A l'arrière du bain de fusion, ce dernier se refroidit et la tension de surface liquide-vapeur, comme du reste la gravité et la pression hydrodynamique prennent le pas sur la pression de vapeur qui devient insuffisante pour maintenir ouvert le capillaire. Le liquide se réoriente alors vers l'intérieur du bain et s'effondre dans la cavité (convection de Marangoni). Des poches de gaz peuvent être emprisonnées au fond du bain liquide et sont empêchées de remonter à la surface, même pour des faibles profondeurs de bain. Un flux latéral de liquide dû à l'asymétrie du refroidissement du bain est causé par les particules adjacentes partiellement fondues. Le liquide du bain peut déborder et absorber les particules adjacentes au bain de fusion et créer ainsi une zone dénudée.

Une fois la fusion amorcée au sein du lit de poudre, le transfert de chaleur se fait en mode conduction ou en mode keyhole avec une région de dépression d'autant plus profonde qu'il y a vaporisation du matériau. Le mode conduction est stable et permet un meilleur contrôle de la chaleur fournie à la pièce, il limite l'introduction de pores, de fissures et d'éjections de matière solide comme liquide. Les domaines morphologiques des cordons identifiés par ordre croissant de l'énergie linéique sont : cordons

non fondus, partiellement fondus, discontinus à morphologie sphérique (*balling*), discontinus à morphologie allongée, continus avec pincements (*humping*), continus rectilignes stables, et enfin continus à section apparente aplatie ou pouvant présenter des gonflements locaux (keyhole). En régime keyhole, le faisceau laser incident pénètre profondément au sein du capillaire gazeux et est fortement absorbé par un effet de multi-réflexion du rayonnement sur les parois du capillaire. A la surface libre du capillaire, un plasma d'ions métalliques peut être engendré, lequel absorbe en partie le faisceau laser. L'énergie absorbée par le plasma est alors retransmise au milieu environnant et constitue une autre source de chaleur pour le bain liquide.
Au cours de l'interaction laser-matière, il y a compétition entre la vitesse de croissance du bain et la vitesse de déplacement du laser. Lorsque la vitesse de croissance du bain est supérieure à la vitesse de balayage (fortes énergies linéiques), la taille du bain augmente ainsi que sa température maximale. Par conséquent, la tension de surface liquide-vapeur diminue et la mouillabilité augmente, favorisant la coalescence des bains et donc la formation d'un cordon continu. Aux faibles énergies linéiques, la vitesse de croissance du bain est inférieure à la vitesse de déplacement du laser. La tension de surface liquide-vapeur augmente et la mouillabilité diminue, ce qui tend à former un bain discontinu de type « balling ».

La **forme des bains des céramiques oxydes** très allongée et très profonde est très différente de celle des métaux qui sont opaques au rayonnement laser et bien meilleurs conducteurs thermiques que les céramiques oxydes. Les vitesses de refroidissement y sont donc plus faibles. Ce refroidissement lent est alors accru lors de la fabrication 2D de draps avec la juxtaposition de cordons. Un point chaud se produit lorsque le cordon adjacent est fondu avant la fin de la solidification du cordon précédent.
Pour une même énergie linéique, à laquelle les bains métalliques sont continus, la tension de surface liquide-vapeur (proportionnelle à la viscosité dynamique) de la céramique étant bien supérieure à celle du métal, les bains céramiques obtenus ont plus de chance d'être discontinus. Aussi, la migration des pores possiblement produits par une décomposition d'éléments volatiles à faible point de fusion, est ralentie par une convection de Marangoni plus difficile (liée à la forte viscosité). Les pores tendent alors à coalescer voire même à éclater.
Vis-à-vis des bains métalliques, les bains céramiques sont difficiles à amorcer suite à la semi-transparence de ces matériaux. Néanmoins, une fois l'état liquide atteint, la conversion de l'énergie lumineuse en chaleur est plus rapide pour les céramiques que pour les métaux. La température au sein du bain monte donc rapidement, ce qui induit une énergie linéique d'amorce du keyhole plus faible que pour les métaux ($E_{l,k} \geq 0.84\, J.mm^{-1}$). Cette interaction laser-matière particulière induit alors une fenêtre de stabilité en énergie linéique plus réduite pour les oxydes que pour les métaux. De plus, la forte viscosité des céramiques par rapport aux métaux, tend à favoriser la discontinuité des bains aux faibles énergies linéiques pour lesquelles les bains métalliques seraient continus. Cette forte viscosité réduit alors encore le domaine de stabilité déjà étroit des céramiques.

Le phénomène d'**éjections des particules de poudres solides de la zone dénudée** semble plus marqué pour les poudres céramiques que pour les poudres métalliques. L'orientation du capillaire de vapeur qui est fonction de l'énergie linéique dans la zone de dépression semble influencer l'éjection de particules de poudres solides. L'inclinaison du capillaire augmente avec la diminution de l'énergie linéique, ce qui favorise l'éjection des particules solides à faible énergie linéique. La faible masse volumique de la poudre et l'atmosphère de travail sous air peuvent aussi favoriser les éjections de particules de poudre.

Les **microstructures eutectiques** de l'alumine-zircone identifiées après fusion laser dépendent au sein même d'un monocordon des valeurs du gradient thermique et de la vitesse de solidification qui sont fonction des paramètres du procédé. L'espacement inter-lamellaire est nanométrique et dépend clairement de la vitesse de balayage. *La caractérisation de la tenue mécanique pour cette taille des lamelles sera importante afin de comprendre si le phénomène de Hall-Petch inverse s'applique à cette structure nanocristalline et sous quelles conditions.* Les microstructures obtenues sur les pièces 3D en alumine

présentent des grains orientés selon l'axe de fabrication. De plus, l'eutectique obtenu forme des colonies avec de la zircone partiellement stabilisée en phase tétragonale malgré l'absence de stabilisants. Ceci est clairement liée à la forte vitesse de trempe qui fait passer la zircone de sa phase cubique à sa phase tétragonale au passage de la ligne de transformation massive T_0. Toutefois, il est observé que cette fine microstructure eutectique est métastable : elle se décompose après un vieillissement dès 1200°C sous air. *L'optimisation de la composition et la stabilisation de la phase tétragonale de la zircone par l'ajout d'un stabilisant (MgO ou Y_2O_3) ou l'orientation vers un eutectique ternaire alumine-zircone-YAG pourraient être une voie d'amélioration. Cela pourrait permettre d'augmenter la ténacité en ralentissant la propagation des fissures (mécanisme de déviation de la fissure par la zircone stabilisée). Avec la mise en place du post-chauffage, il faudra veiller à bien maitriser la thermique tant du point de vue de la fissuration, que de son effet sur la stabilisation de la microstructure.*
La fusion engendre également la formation d'une alumine spinelle (γ, δ ou θ) et une alumine réduite de type Al_3O_3 favorisée par la présence de carbone ou de SiC-β mais qui ne devrait pas être pénalisante vis-à-vis des propriétés mécaniques. Cette réduction améliore alors l'absorbance du matériau. Cette réduction des phases est facilement réversible par vieillissement sous air au-delà d'une température d'activation (entre 1200°C et 1500°C pour l'alumine et au-delà de 800°C pour l'alumine-zircone).

Dans la **zone dite de « transparence »** de l'alumine et de la zircone, qui correspond à la zone d'intérêt de notre étude (λ=1,07 µm), l'absorption y est très faible. Elle est considérée comme extrinsèque et a été définie comme provenant des traces d'impuretés et des défauts (joints de grains, lacunes d'oxygène,...). On parle alors de « semi-transparence » puisque les cristaux sont rarement parfaits et exempts de défauts ou d'impuretés. La pureté des matières premières, ici des poudres employées va définir le niveau d'absorption au laser utilisé Yb :YAG. Parmi les poudres utilisées, l'alumine-zircone présente à réception des éléments absorbants tels que le carbone et d'autres impuretés métalliques. Bien que présents en faible quantité, ces éléments peuvent impacter les propriétés optiques de ces matériaux lorsqu'ils sont irradiés par un rayonnement laser Yb:YAG.

La semi-transparence des oxydes Al_2O_3 et Al_2O_3-ZrO_2 permet l'étude des mécanismes d'interaction laser-matière à la fois en transmission et réflexion. La **mesure des propriétés radiatives** originales *in operando* de réflectance et transmittance hémisphériques est réalisée *via* deux sphères intégrantes au cours du LBM, dans les configurations 0D, 1D, et 2D. Les valeurs récupérées sont traitées par différents modèles optiques suivant la nature optique des échantillons. Outre les mesures sur l'ensemble {LDP+Substrat}, des mesures complémentaires sur lit de poudre et substrat isolés ont permis l'application des modèles optiques. Les **milieux homogènes** (substrat dense et liquide) sont traités par les lois de l'optique géométrique. Ces lois ont permis le calcul des coefficients d'absorption pour un milieu d'épaisseur finie α_{abs} et pour le milieu multi-couche {LDP+substrat}, α_{abs}^{ps}.
Les **milieux hétérogènes** (lits de poudres solides) sont décrits par la méthode 2 flux (ou Kubelka-Munk) issue de la résolution de l'équation de transfert radiatif avec l'application de la correction de *Saunderson* pour une incidence collimatée et la prise en compte des réflexions aux interfaces. Ce modèle a permis de calculer à partir des propriétés radiatives, les coefficients d'absorption K et de diffusion S, et donc le coefficient d'extinction α_{ext}.
Le montage réalisé pourra être par la suite amélioré avec la diminution du rapport signal/bruit ou l'utilisation d'un laser supplémentaire afin de découpler la chauffe de la mesure. De manière générale, les signaux sont tout de même très dispersés, particulièrement en réflexion avec l'erreur créée par l'ouverture, il est alors important de multiplier les mesures. Aussi, un détecteur en transmission moins sensible pourrait être envisagé pour étudier les fines épaisseurs de poudre sur substrat en verre.
Ces mesures radiatives ont porté sur chacun des régimes d'interaction laser-matière : états solide, fondu (état mixte du liquide sur le substrat solide sous-jacent) et régime keyhole. Les propriétés radiatives à l'état solide pour les configurations 0D, 1D et 2D sont proches bien que dispersées. Il est toutefois important de retenir que les réflectances à l'état solide en 0D et 1D ne sont pas équivalentes pour le

substrat d'alumine {SA} qui fond en 1D et non en 0D. Bien qu'il existe une équivalence entre 0D et 1D, des différences subsistent donc entre les deux types d'interaction qui sont probablement guidées par une géométrie de l'interaction laser-matière ou de dissipation de l'énergie différentes.
Pour la configuration 0D, l'interaction a lieu simplement entre le liquide et le substrat solide sous-jacent. Pour la configuration 1D il faut prendre en compte l'interaction du laser animé de la vitesse V avec le bain liquide, le substrat sous-jacent mais également avec le LDP environnant. En 2D, il faut en plus prendre en compte l'interaction avec le cordon juxtaposé précédemment consolidé définie par le taux de recouvrement. Pour comprendre l'interaction laser-matière globale lors de la fabrication par LBM, la connaissance des propriétés radiatives de ces différents milieux est donc nécessaire.

Les mesures radiatives réalisées montrent qu'une fois le **lit de poudre fondu**, la supériorité de l'absorption intrinsèque du liquide induit une augmentation de l'absorbance des oxydes. La fusion du lit de poudre induit également une augmentation de la transmittance suite à la diminution de la multi-réflexion. Lors de la fusion d'un substrat dense sans lit de poudre, il y a toujours augmentation de l'absorption avec la diminution de la réflexion mais contrairement à la fusion des lits de poudre, il y a également diminution de la transmission car il y a absence de multi-réflexion à l'état solide.
Aux faibles **énergies linéiques** à l'état fondu, tout comme pour l'état non fondu, les valeurs des propriétés radiatives sont dispersées et les effets de P et de V ne sont pas toujours équivalents, et ceci est d'autant plus vrai que le système est transparent ou chimiquement hétérogène. Aux fortes vitesses de balayage, l'éjection de particules de poudre perturbe l'interaction laser-matière. Avec l'augmentation de l'énergie linéique (donc diminution de la vitesse de balayage), il y a stabilisation de l'interaction laser-matière qui devient plus surfacique. C'est aussi le cas lors de l'ajout d'absorbants à la poudre de réception. La réflectance des milieux diminue avec l'augmentation de l'énergie linéique. La transmittance diminue également avec l'augmentation de l'énergie linéique pour les substrats denses et pour l'ensemble {LDP+substrat}. Pour le milieu granulaire c'est l'inverse, car il y a diminution de la multi-réflexion à la fusion lié aux particules de poudre. Néanmoins, le signal de transmission étant très faible, c'est la réflectance qui contrôle les propriétés radiatives et donc pour tous les systèmes, l'absorbance diminue avec l'augmentation de l'énergie linéique.
A faible énergie linéique (faible puissance laser et forte vitesse de balayage), les propriétés radiatives des monocordons se rapprochent des propriétés de l'état non fondu et à forte énergie linéique, elles se rapprochent des propriétés de l'état fondu voir du keyhole. L'augmentation de la vitesse associée à la diminution du volume de bain, pourrait induire une interaction majoritaire avec le LDP non fondu en amont du bain.

Les **coefficients d'extinction à l'état solide** α_{ext} (modèle hétérogène) sont proches des **coefficients d'absorption** α_{abs} (modèle homogène) et cohérents avec les ordres de grandeur relevés dans la littérature (valeurs rares et dispersées). Pour les systèmes dans leur état de réception à l'état solide :

$\alpha_{abs}(SA) = 0{,}02\ mm^{-1}$ $\qquad$ $\alpha_{ext}(PA; 1 < \Delta z_{poudre} < 3\ mm) = 1{,}8\ mm^{-1}$

$\alpha_{abs}(SAZ) = 0{,}73\ mm^{-1}$ $\qquad$ $\alpha_{ext}(PAZ;\ 3{,}5 < \Delta z_{poudre} < 6\ mm\ ) = 1{,}1\ mm^{-1}$

$\alpha_{abs}^{ps}(PA_SA; \Delta z_{poudre} = 96\ \mu m;\ \delta_{sub} = 4{,}25 mm) = 0{,}4\ mm^{-1}$

$\alpha_{abs}^{ps}(PAZ_SAZ;\ \Delta z_{poudre} = 95\ \mu m;\ \delta_{sub} = 3{,}75\ mm\ ) = 1{,}2\ mm^{-1}$

Les céramiques oxydes de notre étude sont diffusantes (K > S) et les valeurs de K et S sont en accord avec les ordres de grandeurs définis dans la littérature.

$K(PA; 1 < \Delta z_{poudre} < 3\ mm) \approx 30\ m^{-1}$ $\qquad$ $S(PA; 1 < \Delta z_{poudre} < 3\ mm) \approx 3.10^4\ m^{-1}$

$K(PAZ;\ 3{,}5 < \Delta z_{poudre} < 6\ mm) \approx 500\ m^{-1}$ $\qquad$ $S(PAZ;\ 3{,}5 < \Delta z_{poudre} < 6\ mm) \approx 10^3\ m^{-1}$.

Les mesures radiatives permettent d'une part d'alimenter un modèle numérique avancé et développé par le *CEMEF* pour le LBM des matériaux semi-transparents. D'autre part, en association avec les dimensions des bains mesurées, elles ont permis la définition d'un **modèle *évolutif* d'interaction laser-matière**. Ce modèle fait suite au **modèle de *type SLA*** développé auparavant pour un milieu unique avec comme amélioration la prise en compte du passage de l'état solide à liquide. Ce modèle *évolutif* appliqué à l'ensemble {LDP+substrat} nécessite donc la connaissance complète des valeurs radiatives des états solide et liquide des différents milieux isolés. Le bain de fusion est décrit selon les grandeurs géométriques $\{e_{app}; H_{app}; S_{app}; e_{ZR}; H_{ZR}; S_{ZR}; S_{bain}\}$ qui sont définies à partir des grandeurs d'interaction au sein du lit de poudre seul $\{L; e_i; H;\ S_p\ , S_o\}$ et qui sont fonction des propriétés optiques $(R_f, R_p, \alpha_p, \alpha_f,\ E_{l,min}, E_{l,i})$, des caractéristiques du lit de poudre (Pt, d_{50}) et des paramètres du procédé $(E_l, \Delta z_{poudre})$. Ce modèle a notamment permis de démontrer que la zone fondue prend la forme d'une parabole. Les modèles *de type SLA* et *évolutif* ne donnent pas tout à fait les mêmes informations. Le modèle évolutif est plus complet par la prise en compte des mesures radiatives et par la distinction des coefficients d'absorption des états fondu et solide et de la porosité du lit de poudre. Le modèle de type SLA est quant à lui intéressant pour estimer la variation des diamètres d'interaction et des énergies minimales d'interaction en largeur et en profondeur.

Les **coefficients d'absorption à l'état solide et fondu** issus du **modèle *de type SLA* et du modèle *évolutif***, dépendent de l'énergie linéique et donc de la morphologie des bains. Pour le modèle *de type SLA*, le coefficient d'absorption augmente entre le domaine I elliptique (α_{abs}^{I}) et le domaine II triangulaire (α_{abs}^{II}) et ne dépasse pas 35 mm^{-1}. Dans le modèle *évolutif*, les coefficients d'absorption à l'état solide α_{abs} sont croissants avec l'énergie linéique et varient entre 10 et $10^9\ mm^{-1}$, alors que ceux à l'état fondu α_f sont décroissants avec l'énergie linéique et ne dépassent pas 100 mm^{-1}. Or, les coefficients d'absorption α_{abs} issus du modèle optique homogène sont indépendants de la puissance laser. Toutefois les valeurs du coefficient à l'état fondu issues de ce même modèle, montrent une augmentation avec la puissance pour les systèmes les plus absorbants. De plus, les coefficients d'extinction α_{ext} et d'absorption α_{abs} (à l'état solide et liquide) issus des modèles optiques hétérogène et homogène sont pour l'ensemble des systèmes inférieurs à environ 12 mm^{-1}. Il y donc clairement une différence notable entre les coefficients obtenus via les modèles optiques (homogène et hétérogène) et ceux issus des modèles d'interaction laser-matière de *type SLA* et *évolutif*. Les valeurs issues des modèles optiques homogène et hétérogène se rapprochent aux mieux des valeurs *vraies*. Les valeurs calculées via les modèles *de type SLA* et *évolutif* ont pour objectif d'établir un lien entre les dimensions des bains et les propriétés radiatives. Contrairement au modèle de type SLA, le modèle évolutif s'applique à deux milieux optiques distincts, séparés par une interface. Toutefois, ce modèle ne rend compte que de l'interaction laser-matière dans chaque milieu, en plus de celle à l'interface, et non dans l'ensemble des deux milieux simultanément. Par ailleurs, il considère l'ensemble fondu R_f plutôt que R_l (liquide seul) qui est difficilement mesurable dans notre étude. Le modèle évolutif montre bien la complexité de l'interaction laser-matière en largeur. En effet, alors que la hauteur de la zone refondue H_{ZR} est très bien approximée, e_{ZR} l'est moins bien. Rappelons que le coefficient d'absorption solide α_{abs} se déduit de la variation de la largeur du bain en fonction de l'énergie linéique, alors que le coefficient d'absorption de l'état fondu se déduit de la variation de la profondeur du bain. Or, l'ordre de grandeur de α_f est nettement plus proche de celui des modèles optiques que α_{abs}.

Les coefficients d'absorption céramiques issus des modèles optiques sont nettement inférieurs à ceux des **métaux** relevés dans la littérature et ceci, quel que soit l'état de la matière. Les céramiques oxydes présentent une interaction volumique vis-à-vis du rayonnement laser, contrairement à celle des métaux qui est surfacique. Toutefois, à l'état liquide, l'interaction laser-matière devient plus surfacique pour les matériaux céramiques. Le coefficient d'absorption de l'état fondu est moyenné entre celui de l'état solide et de l'état liquide $(\alpha_l > \alpha_f > \alpha_{abs})$. L'amorce de la fusion en largeur précède la fusion en profondeur tandis que pour les métaux, c'est l'inverse.

La **multi-réflexion** induite par le LDP ou par la rugosité de surface est exacerbée par l'augmentation de l'épaisseur de poudre, Δz_{poudre}. Le rayonnement est piégé au sein du matériau granulaire et l'interaction entre le rayonnement et les particules de poudre est surmultipliée. Pour les matériaux absorbants intrinsèquement à la longueur d'onde du laser, l'augmentation de la multi-réflexion provoque alors, jusqu'à une certaine limite, une augmentation de l'absorption au sein du matériau. Dans le cas des matériaux semi-transparents comme les oxydes, l'augmentation de la multi-réflexion (ou multi-diffusion) produit une diminution de l'absorption par l'augmentation de pertes radiatives suite au manque d'absorption intrinsèque. La rugosité n'a alors pas de forte influence sur les matériaux semi-transparents. La multi-réflexion est donc néfaste pour des échantillons semi-transparents car elle diminue l'absorption mais également car elle augmente la quantité de rayonnement qui irradie l'enceinte de fabrication pouvant la détériorer. La multi-réflexion, et donc le diamètre d'interaction peuvent être minimisés *via* les propriétés du lit de poudre, notamment par la réduction de son épaisseur, de sa compacité, et de sa largeur de distribution granulométrique et par l'augmentation de la taille des particules. L'addition d'un absorbant en proportion optimisée permet également d'augmenter la part de rayonnement absorbé. Pour le procédé LBM, il convient tout de même de garder une compacité élevée (liée à la distribution granulométrique) pour limiter les retraits à la consolidation ainsi qu'une taille de particules suffisamment petite pour permettre la mise en couche par le rouleau. Il faut donc opter pour une poudre relativement absorbante et une épaisseur de poudre suffisamment faible, à condition que le substrat sous-jacent, ou la couche précédemment solidifiée soit suffisamment absorbante. Il a été montré que même pour des fortes épaisseurs de lit de poudre (jusqu'à 2 mm) il y a toujours un signal transmis, pour les états non fondu et fondu et même sur les systèmes mélangés à des absorbants. Un signal est donc transmis au substrat et contribue en plus de la conduction du bain liquide, à la fusion du substrat.

A l'état non fondu, plus la quantité de rayonnement atteignant le **substrat** (ou les couches précédemment fondues) est élevée, plus le caractère réfléchissant de l'interface est accentué, et plus la multi-réflexion globale du système est augmentée par rapport à la réflexion du lit de poudre isolé. C'est ce mécanisme qui justifie que pour un substrat peu absorbant, l'ensemble {LDP+Substrat} fond alors que le substrat isolé ne fond pas. D'une part, l'absorbance du substrat doit donc être bonne et d'autre part, l'emploi d'un LDP absorbant est important. Un lit de poudre semi-transparent est rendu absorbant par le mélange avec un absorbants. Le système alumine-zircone brut de réception, légèrement « contaminé » par des impuretés par rapport à l'alumine de l'étude, montre une absorbance améliorée à la fois du LDP, du substrat et de l'ensemble {LDP+Substrat}. Ceci conduit à un domaine de stabilité de construction suffisamment large sans ajout d'absorbant. Les coefficients d'absorption (ou d'extinction) augmentent quant à eux avec la présence d'impuretés même présentes en très faible quantité.
De plus, il a été observé que lors des fusions, les couches fondues deviennent absorbantes car l'alumine et possiblement la zircone se réduisent (pertes en oxygène). *Il serait donc possible d'utiliser un substrat réduit pour initier la construction, à condition que cela n'impacte pas les propriétés finales du matériau visé. L'interaction sous argon réduit davantage les produits fusionnés, ce qui peut également être intéressant pour maximiser l'absorbance des couches d'oxydes consolidées et ainsi stabiliser l'interaction laser-matière.*

Les **absorbants** ajoutés à la poudre céramique semi-transparente jouent le rôle de sources pour l'absorption du rayonnement et la restitution de l'énergie sous forme de chaleur. Cette transmission de chaleur aux particules céramiques se fait par conduction et rayonnement dans un volume de poudre donné autour de la source. La taille des sources, leur nombre et répartition ont donc un impact important sur l'absorption du rayonnement et la transmission de la chaleur. Or, il a été constaté qu'avec un mélange par voie aqueuse de la poudre et de l'absorbant, la répartition de ces sources dans le lit de poudre est aléatoire et hétérogène, principalement avec le noir de carbone comme absorbant (dont la taille est bien plus grossière que pour le SiC-β). L'étude de l'interaction laser-matière pour différentes teneurs et natures d'absorbant vise à définir leur pouvoir absorbant et leur concentration idéale. Un compromis doit donc être trouvé de manière à ne pas introduire un nombre excessif de sources de trop grande taille qui

déstabiliseraient le bain liquide par une transmission trop importante de chaleur. Les absorbants présents en trop grande quantité provoquent notamment un éclatement du bain. Il faudra toutefois, maintenir une quantité suffisante de sources espacées de manière homogène pour transférer du mieux possible la chaleur aux particules céramiques oxydes.
L'addition d'absorbants provoque une dégradation des **propriétés des lits de poudre** en termes de largeur de la répartition granulaire, d'homogénéité, de coulabilité et de porosité des lits de poudre. On note que l'effet du SiC-β est moindre comparé au carbone. *Pour le contrôle optimal de l'interaction laser-matière, un bon design de la poudre est essentiel. L'homogénéité de la composition chimique à l'échelle du faisceau laser est nécessaire à l'obtention de la bonne microstructure finale. La pureté de la poudre doit être améliorée, surtout lorsqu'on souhaite la mélanger à un absorbant. Aussi, un lit de poudre à porosité réduite (favorisée par des particules relativement sphériques et un span autour de 1,3-1,4) permet de minimiser le retrait à la consolidation et de réduire le temps de fabrication.*

Les alumines (poudre et substrat) brutes de réception sont plus diffusantes et moins absorbantes que les alumines-zircones ce qui est cohérent avec les teneurs en impuretés. C'est donc l'alumine qui a été employée pour l'étude de l'effet de la nature et teneur en absorbant sur les propriétés optiques. Un bon dosage entre nature, teneur en absorbant et paramètres du procédé doit permettre une absorption suffisante, tout en gardant une absorption non excessive pour ne pas amorcer le keyhole trop tôt ou venir exploser le bain avec la génération de CO_2 lors de la combustion de l'absorbant. L'ajout d'un absorbant aux céramiques oxydes permet de se rapprocher de l'interaction surfacique. Les coefficients d'absorption issus des modèles optiques à l'état solide et fondu des mélanges avec absorbants sont supérieurs ou égaux aux systèmes purs tel que :

- pour les LDP entre 0,9 et 3 mm : $\alpha_{\text{ext}}(PA + abs) = 2 - 8{,}5\ mm^{-1}$
  $\alpha_{ext}(PA) = 1{,}5 - 2{,}5\ mm^{-1}$
- $\alpha_{abs}^{ps}(PA + abs_SA) = 0{,}4 - 3\ mm^{-1}\ et\ \alpha_{abs}^{ps}(PA_SA) \approx 0{,}4\ mm^{-1}$

Bien que contenant des absorbants, les lits de poudres sont diffusants ($S > K$). Néanmoins les absorbants permettent l'augmentation de K/S de plusieurs ordres de grandeur avec l'augmentation de K et la diminution de S. Aussi, les valeurs calculées $K(C) = 4{,}14.10^7 m^{-1}$ et $K(SiC - \beta) = 5{,}00.10^6\ m^{-1}$ sont très proches des valeurs de la littérature.

Les mesures radiatives montrent que l'ajout d'un absorbant à la poudre d'alumine pure permet l'augmentation de l'absorption et ceci proportionnellement à la teneur en absorbant, facilitant ainsi l'amorce de la fusion. Une fois la fusion amorcée, le liquide étant absorbant, il permet l'entretien de la fusion même si l'absorbant disparait. Néanmoins, un échauffement trop rapide réduit la fenêtre de construction stable par l'amorce rapide du keyhole.
Le **carbone**, plus intrinsèquement absorbant que le SiC-β permet une absorption efficace. A 0,1%m.C, le rapport K/S s'approche de 1 et l'échauffement modéré qui donne lieu à un large domaine de stabilité 1D en énergie linéique. A 0,5%m.C, l'initiation de la fusion et du keyhole sont très rapides et le domaine de construction stable est considérablement réduit. Bien que l'ajout de **0,1%m.SiC**-β permette la fusion de l'alumine, il déstabilise l'absorption en augmentant la réflexion. De plus, le SiC-β se décompose en SiO gazeux avant de se recombiner en SiO_2 solide dans l'espace interdendritique et peut alors venir perturber l'interaction laser-matière et contribuer à réduire la tenue mécanique à chaud des pièces. *Il faut se demander s'il est bon de brûler tout l'absorbant sous air car la couche précédemment consolidée doit pouvoir absorber la partie du rayonnement qui traverse le lit de poudre pour former la zone refondue du bain. Toutefois si on conserve du carbone dans le matériau consolidé, il pourrait jouer le rôle de porosité et abattre les propriétés mécaniques.*
Le **mélange céramique-métal** (alumine-Inconel 625) permet également une bonne absorption avec une valeur de α_f la plus élevée pour les systèmes mélangés avec les absorbants. L'interaction laser-matière se rapproche du cas surfacique, l'échauffement du milieu est rapide et la puissance d'amorce pour la fusion est très faible. Il présente au niveau microstructural un intérêt à condition de limiter le taux de particules métalliques en deçà de 10%vol (ou 26%m.). Il reste à définir la proportion d'Inconel 625 qu'il convient

d'ajouter pour transmettre suffisamment de calories à l'alumine afin de la fondre sans qu'un excès de liquide métallique se solidifie au sein du bain d'alumine.
Bien que la proportion ajoutée de particules métalliques absorbantes soit encore trop conséquente (26%m.), l'absorbance induite est équivalente à celle des systèmes Alumine à 0,5C%m. SiC-β et Alumine à 0,1%m. C dont les coefficients d'absorption et d'extinction sont du même ordre de grandeur. En effet, lors de leur combustion, les absorbants éphémères rayonnent à la manière d'un corps noir, suivant une large gamme de longueurs d'onde, ce qui fond efficacement le matériau céramique dont le domaine d'absorbance se situe dans l'IR lointain**.** *Il faudrait dans l'idéal tenir compte de la limite d'applicabilité du modèle à deux flux Kubelka-Munk pour le calcul des coefficients K et S. Nos résultats indiquent que pour les mélanges céramique-métal K>S, or il est probable qu'en réalité ce soit l'inverse, surtout à forte teneur en particules métalliques. Pour vérifier ces résultats, le modèle à quatre flux permet de lever les restrictions du modèle à deux flux. Il donne, avec des conditions aux limites et des paramètres γ et ζ judicieusement choisis, une bonne estimation des coefficients d'absorption et de diffusion intrinsèques k et s qui présentent l'avantage d'être directement reliés aux propriétés radiatives des particules. Cela permettrait de continuer l'étude de diffusion sur matériaux absorbants et sur les mélanges céramique-métal ; mais aussi de caractériser précisément l'effet de la taille des particules, de la distribution granulométrique et de la fraction volumique de particules.*
Il pourrait être par ailleurs pertinent de caractériser précisément l'effet de la sous-stœchiométrie des oxydes sur les propriétés radiatives et sur les coefficients K et S, en variant les substrats et en utilisant des poudres réduites à l'état brut de réception. Il serait en outre intéressant de suivre par caméra thermique à une longueur d'onde adaptée (suite à l'absorption volumique des céramiques oxydes), la température et la formation du bain par fusion avec et sans absorbant (éphémère ou métallique) ainsi que l'instant auquel se décompose l'absorbant.

L'étude paramétrique a montré la faisabilité de la construction de pièces 3D à condition de choisir la teneur en absorbant optimale, suffisante pour assurer l'absorption mais limitée pour ne pas introduire d'excès d'apport d'énergie et déstabiliser le bain. C'est le cas pour l'alumine-zircone brute de réception, naturellement riche en éléments absorbants et pour les systèmes alumine mélangés à 0,1%m.C et 0,5%m. SiC-β. Les pièces obtenues présentent des taux de porosité d'environ 10%, pour ces systèmes céramiques les plus stables. Une courte étude a également montré la faisabilité des pièces pour le mélange alumine-Inconel 625 avec l'obtention d'un taux de porosité raisonnable (≈20%) et facilement améliorable par optimisation des paramètres 2D et 3D du procédé.
L'identification des différents domaines morphologiques de cordons stables est réalisée *via* les critères de stabilité géométrique (continuité, rectitude, dispersion critique de la hauteur du cordon combinée à des rapports critiques de la forme du bain). Les **domaines stables de fabrication** sont étroits et peu répétables particulièrement pour l'alumine-zircone dont la pureté reste insuffisamment contrôlée par le fournisseur. *L'étude sur des taux réduits en absorbants et un meilleur contrôle des matières premières pourraient aboutir à des stabilités géométriques accrues et à une porosité réduite.*
Le choix d'une stratégie en quinconce et évite la formation de points chauds. Elle assure la reproductibilité du cordon 1D d'une couche à l'autre, ce qui facilite le passage direct de la stratégie 1D à 3D. Elle corrige également l'éjection de particules de poudre de la zone dénudée d'une couche à l'autre et permet d'obtenir des pièces « *near-net-shape* ». *Les post-traitements peuvent éventuellement permettre de réduire la porosité résiduelle à condition d'affiner les fenêtres de stabilité 3D encore peu élaguées. Opter pour une stratégie en quinconce aller-retour sur les cordons d'une même couche pourrait réduire encore davantage la porosité (manques de matière et de fusion).*

Un **modèle de consolidation** du lit de poudre prenant en compte la zone dénudée, observée de part et d'autre d'un cordon, est développé. Il permet, grâce à l'introduction de la section de consolidation théorique S_0 (fournie par modèle *évolutif* mais non mesurable en raison du phénomène de dénudation), de rendre compte des échanges de matière entre le bain, la zone dénudée et les pertes de matière (éjectas

liquides et particules solides en avant du bain). Aux faibles énergies linéiques (fortes vitesses et faibles puissances), une partie des particules de la zone dénudée est redéposée sur le LDP environnant tandis qu'une autre partie peut venir contribuer à la consolidation du cordon. C'est le cas aux très faibles énergies linéiques pour un système absorbant tel que l'alumine-zircone brute de réception. Les cordons sont alors suralimentés et l'alimentation du bain en particules issues de la zone dénudée prend le pas sur les éjections issues de la zone de consolidation. Pour le cas transparent de l'alumine pure, il n'est pas observé aux faibles énergies linéiques d'alimentation du bain par ces particules solides éjectées de la zone dénudée. Aux fortes énergies linéiques (vitesses faibles et puissances élevées), il y a de fortes pertes de matière issues de la zone de consolidation notamment via les éjectas liquides issus du bain qui se sphéroïdisent en vol et qui retombent parfois sur le cordon ou le plus souvent sur le lit de poudre. Les cordons sont sous-alimentés et aplatis sauf dans le cas où une forte teneur en absorbant provoque un gonflement des cordons avec une énorme porosité en son sein. Enfin, aux très faibles énergies linéiques (cordons instables, exempts de rectitude et de continuité), il semblerait que l'interaction laser-matière n'induise pas d'échanges de particules. *Lors de la construction 3D, ces éjections de particules solides ou liquides qui ne réalimentent pas le bain à faible énergie linéique vont perturber la consolidation des cordons juxtaposés même à taux de recouvrement nul. Pour aller plus loin, étant donné que les propriétés radiatives issues de la construction 2D et 3D diffèrent du 1D, il serait intéressant de transférer le modèle évolutif sur les multi-passes. Il serait également intéressant de découpler l'effet de la puissance et de la vitesse de balayage qui jusque-là n'ont été considérés qu'ensemble sous la forme d'énergie linéique, ce qui engendre tout de même une légère dispersion.*

Le **modèle analytique d'évolution de la morphologie du cordon** céramique avec l'énergie linéique suit assez bien le modèle à deux cercles pour la calotte supérieure et inférieure de la section transverse d'un cordon métallique tant que l'énergie linéique reste faible et que les cordons sont supposés stables pour les systèmes suffisamment absorbants. Mais contrairement aux matériaux métalliques, la fenêtre de stabilité des cordons céramiques comprend des profondeurs de bains plus importantes en raison de leur transparence au rayonnement laser. Aussi, aux plus fortes énergies linéiques de la fenêtre de construction et pour les systèmes les plus transparents, le modèle à deux cercles n'est plus valable pour les céramiques et il est remplacé par le modèle triangulaire (la zone refondue s'apparentant plus à une parabole qu'à un segment circulaire). Il s'ensuit alors une réévaluation de l'encadrement des facteurs de forme des cordons céramiques.

Il faut de plus prendre en compte l'effet de la **réduction** progressive des couches d'oxydes refondues car il est possible de refondre une même couche jusqu'à six fois. Or, la réduction des oxydes change l'absorption des couches inférieures. *Cet aspect devrait être pris en compte dans le modèle de consolidation et surtout dans la stratégie de construction puisque les dimensions des bains doivent évoluer avec la réduction d'une couche sur l'autre. Il sera également judicieux de définir l'effet du taux de réduction des oxydes sur les propriétés optiques.*

Afin de garantir une bonne accroche de la pièce au **substrat**, l'emploi d'un substrat absorbant et de même nature que le lit de poudre est nécessaire. Idéalement, le choix se portera sur un substrat réduit (*i.e.* sous-stœchiométrique en oxygène) ou mélangé à un absorbant mais en quantité très limitée afin de ne pas introduire trop de pores lors de sa combustion (dégagement gazeux). Le substrat choisi doit également être dense pour empêcher le décollement des premières couches par la présence de retraits différentiels. *Les essais de cette étude ont été réalisés sous air mais la fusion sous argon qui favorise la réduction des céramiques oxydes pourrait améliorer l'absorption sans ajout d'absorbant (passage d'une absorption extrinsèque à une absorption intrinsèque) et ainsi stabiliser l'interaction laser-matière. Ceci a déjà été observé lors de la mise en forme de l'hydroxyapatite par* (Shaker 2017).

A ce stade, les constructions 3D restent micro-fissurées mais un préchauffage efficace devrait en principe réduire ce phénomène grâce à une diminution des gradients thermiques et de la vitesse de refroidissement de

l'arrière du bain. De plus, les constructions en Quinconce introduisent une rugosité importante en surface lasée. L'insertion de contours qui n'engendreraient pas de fortes contraintes résiduelles devrait améliorer cet aspect. Les premières tentatives d'ajout de contours ont en effet provoqué une forte déformation des pièces jusqu'à entraver la mise en couche.

Cette étude a donc permis d'identifier les céramiques oxydes comme étant de bonnes candidates à la fabrication de pièces « *near-net-shape* » par LBM. Toutefois, il convient de contrôler la thermique et surtout la vitesse de refroidissement du bain pour éviter la fissuration, d'optimiser leur absorption via leur propriétés optiques (par l'ajout d'absorbants en nature et teneur adaptées) et enfin de stabiliser leur microstructure notamment par le biais d'un travail sur la composition chimique afin

(1) d'accroître la ténacité du matériau (ajout de stabilisants pour supprimer au refroidissement la transformation tétragonale en monoclinique de la zircone s'accompagnant d'une variation importante de volume et pouvant engendrer de la fissuration),

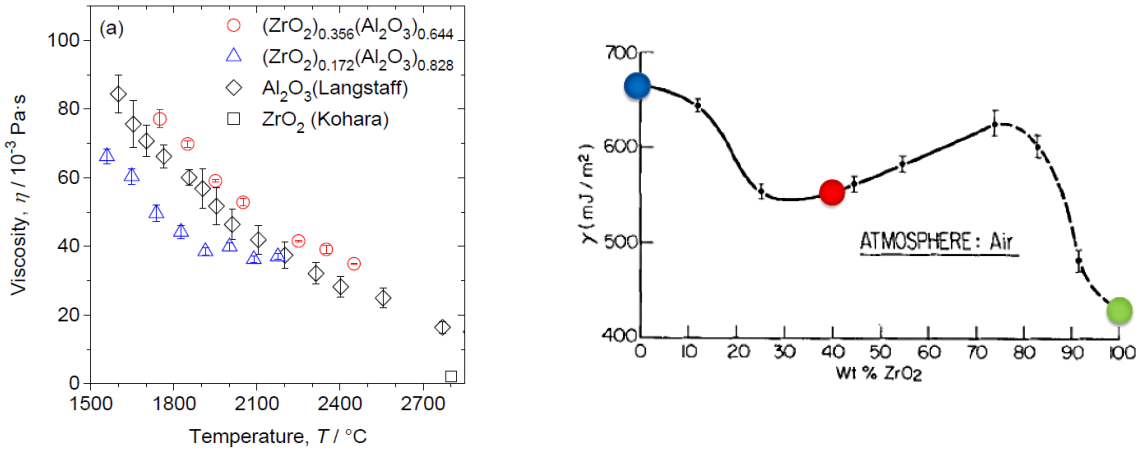
(2) de mieux faire face à l'évolution à haute température de la microstructure tout en conservant une ténacité adéquate.

ANNEXES

ANNEXE A : PROPRIETES THERMO-PHYSIQUES

Tableau A-1 : Quelques propriétés thermo-physiques des matériaux de l'étude

	Unité	Al_2O_3	ZrO_2			Al_2O_3-ZrO_2 eutectique	β-SiC (c)	HA188	INCO 625	Noir d'acétylène (carbone)
			M	T	C					
ρ	g.cm^{-3}	3,98	5,83	6,10-5,56		4,55 (calc)	3,22	8,98- 9,13(1)	8,40-8,44(1)	1,8-2,1
T_f	°C	2050-2054	2677-2750			1850	2800	1315-1410	1290-1350	3550
$T_{éb}$	°C	2980-3000	4300			≈4227	2986			4200
C_p^{solide}	J.g^{-1}.K^{-1}	0,775-0,850 1,225 (1000K) 1,330 (1773K)	0,456			0,647 (calc)	0,67 - 1,24	0,405(2) 0,565 (871°C) 0,59 (1000°C)	0,402 0,670 (1093°C)	0,52 (diamant)
$C_p^{liquide}$	J.g^{-1}.K^{-1}	1,8876	0,713			1,418 (calc)				
$L_{f,v}$	J.g^{-1}	1090 1818 (1050K)	706			852 (calc)		400	224	
$\Delta h_{f,v}$	J.cm^{-3}	1,04.10^4	1,13.10^4			9,64.10^3				
Viscosité cinématique	cm^2.s^{-1}	0,15 (2300K)	0,049 (3000K)							
Viscosité dynamique η	m Pa.s	85 (1600°C) 15 (2770°C) (3) *Figure A-1* T=40 (2300K)(5) 70 (2300K)	2 (2800°C) (3) *Figure A-1* 25 (3000K) (4)			75 (1800°C) 38 (2400°C) (3) *Figure A-1*				
γ_{LV}	mJ.m^{-2}	660 (5) *Figure A-1* 700 (à 2080 °C) 905 (à 1850 °C)	425 (5) *Figure A-1*			550 (5) *Figure A-1*				



a) b)

Figure A-1 : a) Viscosité dynamique en fonction de la température, en rouge l'eutectique Al_2O_3-ZrO_2 d'après (Ohishi et al., 2017) et b) tension de surface liquide-gaz de de Al_2O_3-ZrO_2 en fonction de la teneur en zircone (Lihrmann & Haggerty, 1985)

ANNEXE B : EXPRESSION DES COEFFICIENTS DE REFLEXION POUR DES SURFACES OPTIQUEMENT RUGUEUSES

L'expression du coefficient de Fresnel $r_F(\theta_i)$ pour une lumière non polarisée :

$$r_F(\theta_i) = \frac{1}{2}\left[\, r^{\perp}(\theta_i) + r^{/\!/}(\theta_i)\right]$$

$r^{\perp}(\theta_i)$ *et* $r^{/\!/}(\theta_i)$ sont respectivement les coefficients de réflexion de la lumière polarisée avec un champ éléctrique perpendiculaire et parallèle au plan. θ_i est l'angle d'incidence et θ_r l'angle de réflexion. Les indices de réfraction complexes s'écrivent de la forme :

$$\tilde{n}_i \;=\; n_i \;+\; i\kappa_{e_i}$$

Avec la propagation du rayonnement qui se fait du milieu i=1 vers le milieu i=2.
On a :

$$r^{\perp}(\theta_i) = \frac{\cos^2\theta_i \;+\; u \;-\; v\cos\theta_i}{\cos^2\theta_i \;+\; u + \; v\cos\theta_i}$$

$$r^{/\!/}(\theta_i) = r^{\perp}(\theta_i)\frac{u \;-\; v\sin\theta_i\tan\theta_i \;+\sin^2\theta_i\tan^2\theta_i}{u + \; v\sin\theta_i\tan\theta_i \;+\sin^2\theta_i\tan^2\theta_i}$$

$$et\; r_F(\theta_i) = r^{\perp}(\theta_i)\;\frac{u \;+\sin^2\theta_i\;\tan\theta_i}{u + \; v\sin\theta_i\tan\theta_i \;+\sin^2\theta_i\tan^2\theta_i}$$

Avec

$$u = \left(\left\{n_1^2\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right) - \left[\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right)^2 + 4n_2^2\,\kappa_{e_2}^2\right]\sin^2\theta_i\right\}^2 + 4\left(n_2\kappa_{e_2}n_1^2\right)^2\right)^{0,5}\left[\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right)^2 + 4n_2^2\,\kappa_{e_2}^2\right]^{-1}$$

$$v = \left\{2\left[n_1^2\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right) - \left[\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right)^2 + 4n_2^2\,\kappa_{e_2}^2\right]\sin^2\theta_i + \left(\left\{n_1^2\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right) - \left[\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right)^2 + 4n_2^2\,\kappa_{e_2}^2\right]\sin^2\theta_i\right\}^2 + 4\left(n_2\kappa_{e_2}n_1^2\right)^2\right)^{0,5}\right]\left[\left(n_2^2 - \kappa_{e_2}^2\right)^2 + 4n_2^2\,\kappa_{e_2}^2\right]^{-1}\right\}^{0,5}$$

A partir de la BRDF (fonction de distribution de la réflectance bidirectionnelle), les coefficients de réflexion pour un rayonnement collimaté s'expriment :

$$r_{cc}^{f} = r_F(\theta_i)\exp(-g)\,Z$$

$$r_{cd}^{f} = \frac{1}{\pi}\int_0^{\frac{\pi}{2}} r_F(\theta_r/2)GZDsin(\theta_r)d\,\theta_r$$

G est la fonction de rugosité de surface :

$$g \;=\; \left[\left(\frac{2\pi\sigma}{\lambda}\right)(cos\;\theta_i + \;cos\;\theta_r\,)\right]^2 \gg 1$$

La rugosité effective σ prend en compte uniquement les parties de la surface illuminées (dans effet d'ombre due à la rugosité), ce qui est nécessaire surtout aux forts angles d'incidence. Dans notre cas, le calcul indique que $\sigma \simeq \sigma_0$, σ_0 étant la rugosité *Rms* mesurée. L'ombrage est alors limité. τ est la longueur d'autocorrélation, qui est l'estimation de la distance moyenne entre les pics de rugosité de la surface.

Dans notre g est très élevé les surfaces étudiées sont très rugueuse. Alors $exp\ (-g) \simeq 0$ et r_{cc}^{f} est considéré comme nul.

G est le facteur géométrique, $\Phi_i\ et\ \ \Phi_r$ sont les angles azimutaux d'incidence et réflexion, ils sont égaux respectivement à 0 et π.

$$G\ = \frac{4(1\ + \cos\theta_i \cos\theta_r\ - \sin\theta_i\ \sin\theta_r \cos\Phi_r\ \ )^2}{(\cos\theta_i + \cos\theta_r)^2}$$

D est la fonction de distribution approximée pour une surface rugueuse (g>>1) :

$$D \simeq \frac{\pi^2\tau^2}{4\lambda^2}\frac{1}{g}\exp\left(-\frac{v_{xy}^2\tau^2}{4g}\right)$$

Avec

$$v_{xy} = \frac{2\pi}{\lambda}\ (\sin^2\theta_i\ -\ 2\sin\theta_i \sin\theta_r \cos\Phi_r\ +\ \sin^2\theta_r)^{0,5}$$

Z est la fonction liée à l'effet d'ombre :

$$Z\ =\ Z_i(\theta_i)Z_r\ (\theta_r)$$

Avec

$$Z_x(\theta_x) = \frac{\left[1 - 0{,}5\ erfc\ \left(\frac{\tau\cot\theta_x}{2\sigma_0}\right)\right]}{\Lambda\ (\cot\theta_x) + 1}$$

$$\Lambda\ (\cot\theta_x) = \frac{1}{2}\left[\frac{2\sigma_0}{\sqrt{\pi}\,\tau\cot\theta_x} - erfc\ \left(\frac{\tau\cot\theta_x}{2\sigma_0}\right)\right]$$

ANNEXE C : CALIBRATION DE LA SPHERE INTEGRANTE

Le blanc en réflexion est réalisé avec un échantillon de référence constitué de Spectraflect. Dans le cadre des mesures réalisées pour une inclinaison de 10°, une correction selon x doit être appliquée pour la réflexion car la variation du signal n'est pas négligeable selon l'inclinaison. La variation du signal électrique U_0 (exprimé en Volts) selon P (w) et x (mm) est définie en équation (C.1) , la variation selon y étant négligée.

$$U_{R,0}(x,P) = (-0{,}0748x^2 + 2{,}4337x + 98{,}587)\,P\ - (0{,}0122x^2\ +\ 1{,}5066x +\ 139{,}82) \qquad \text{C.1}$$

En transmission le blanc est réalisé sans échantillon, le signal ne dépend pas de x:

$$U_{Tr,0}(P) = 2{,}1958.P -\ 2{,}5851 \qquad \text{C.2}$$

ANNEXE D : MESURES OPTIQUES COMPLEMENTAIRES

D.a. Systèmes céramiques purs

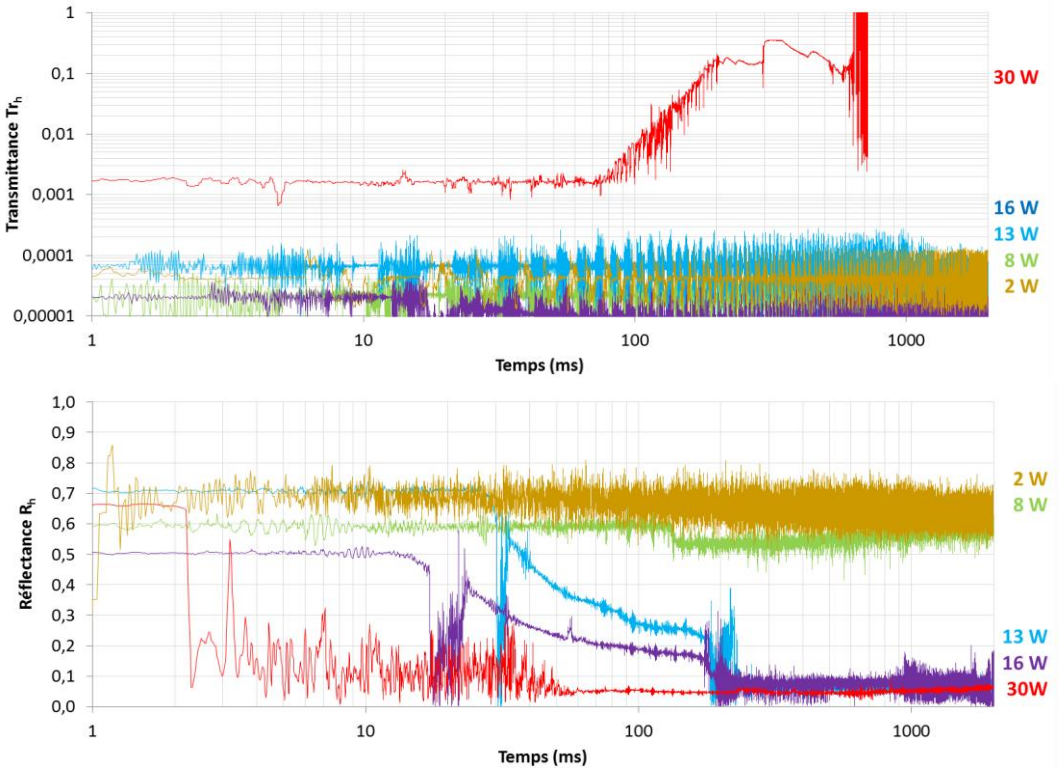


Figure D-1 : Suivi au cours du temps des propriétés radiatives pour le compact ZTA20

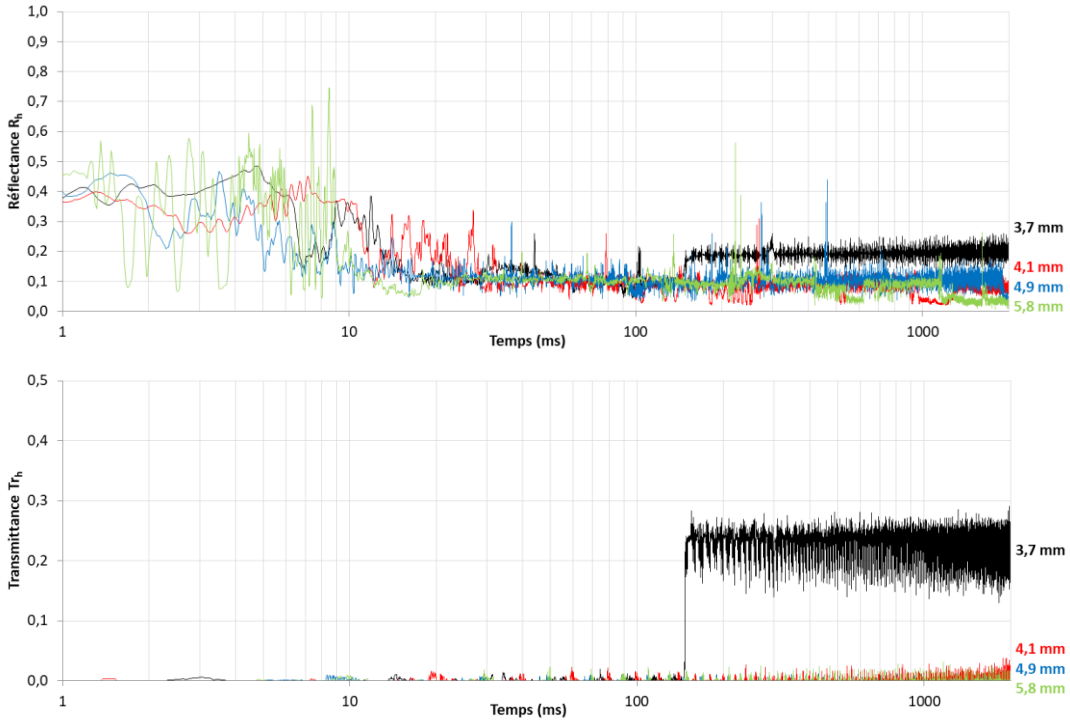
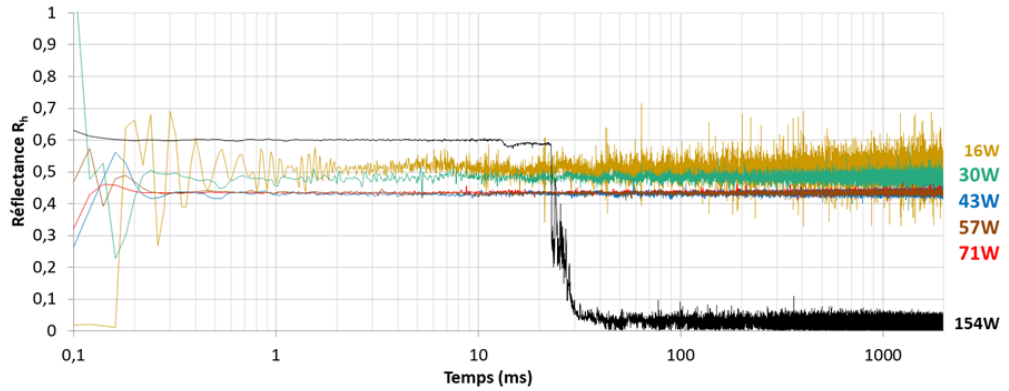
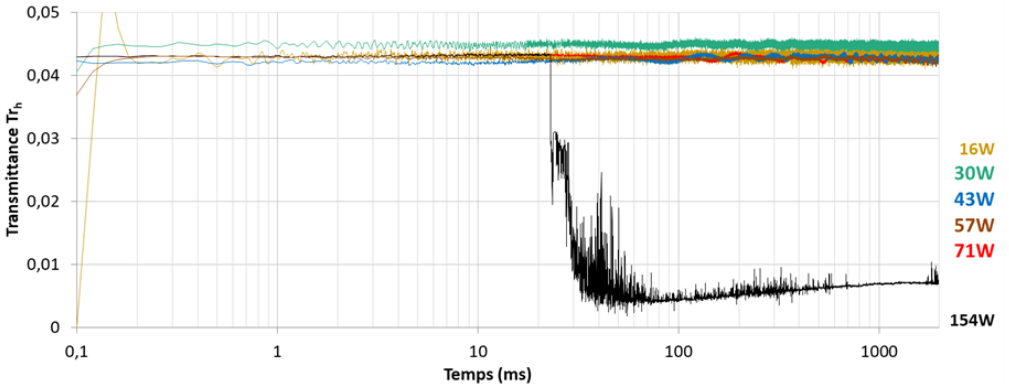


Figure D-2 : Suivi au cours du temps des propriétés radiatives de {PAZ}



a)



b)

Figure D-3 : Suivi au cours du temps des propriétés radiatives de {PA_SA}

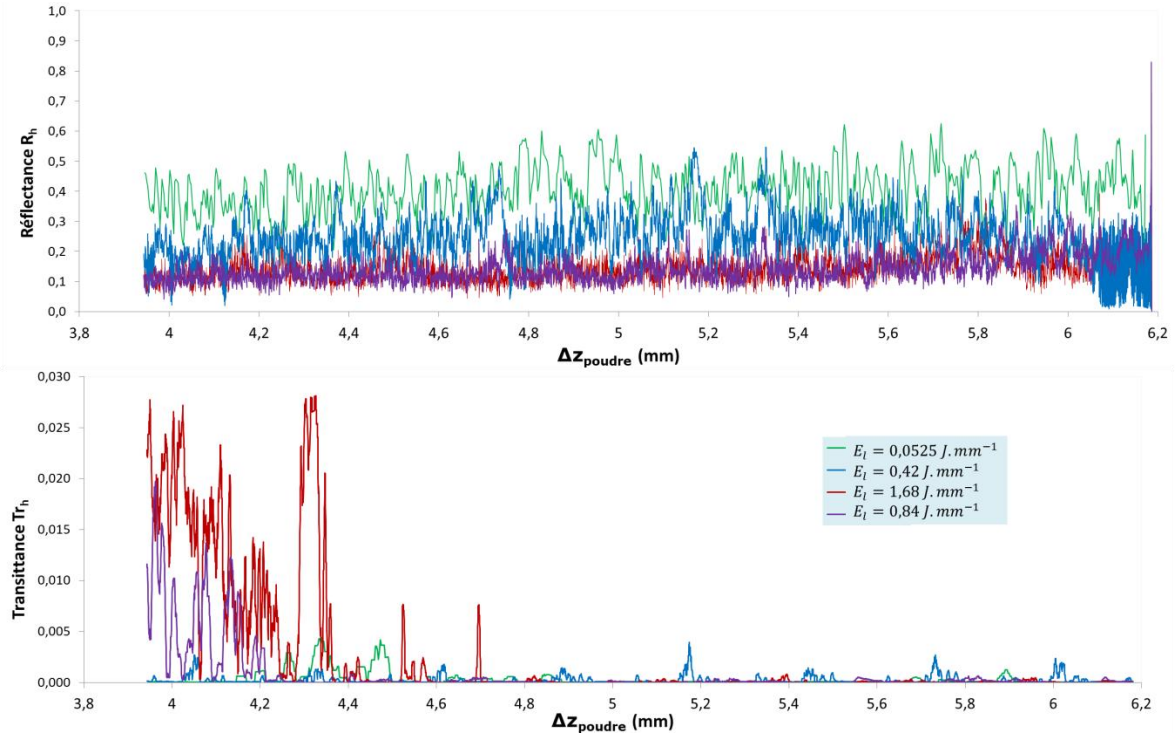


Figure D-4 : Variation des propriétés radiatives en fonction de l'épaisseur de poudre de {PAZ}

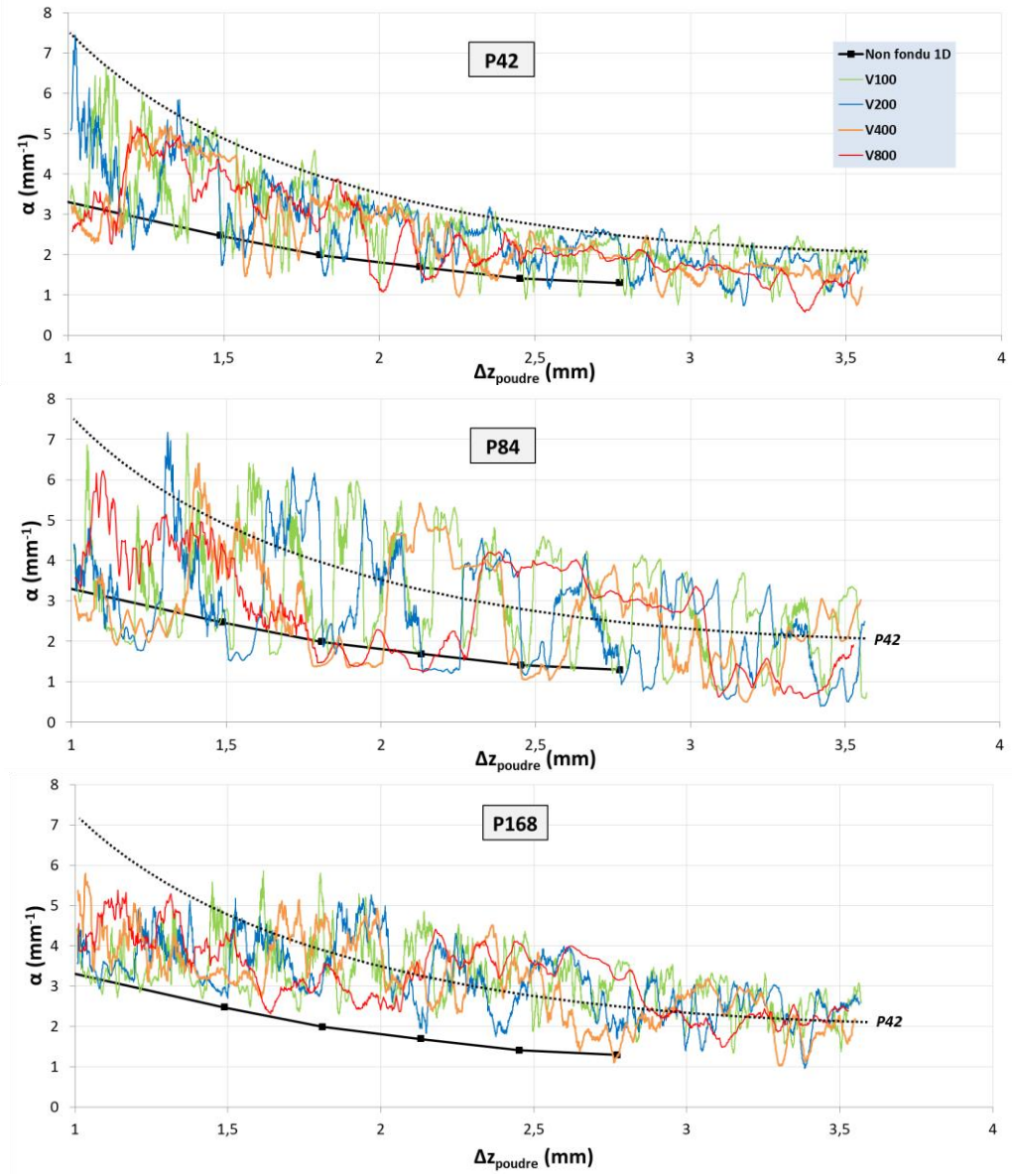


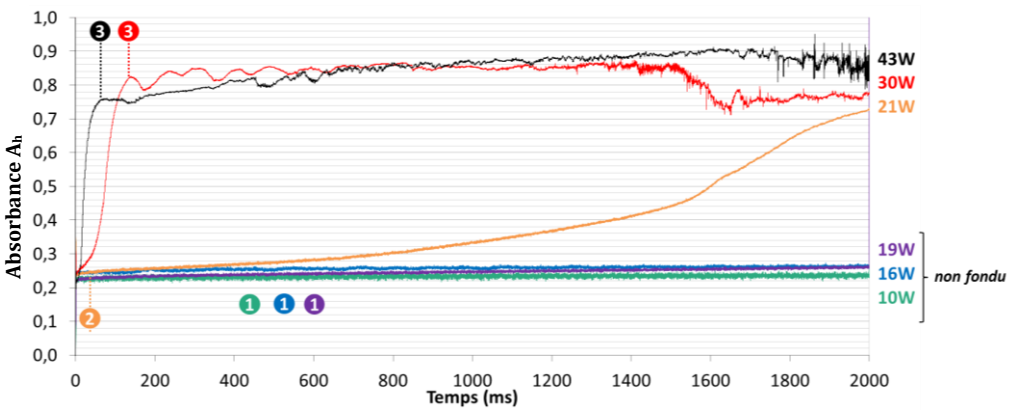
Figure D-5 : Variation du coefficient d'absorption en fonction de l'épaisseur de poudre de {PA} pour différentes puissances

D.b. Systèmes métalliques

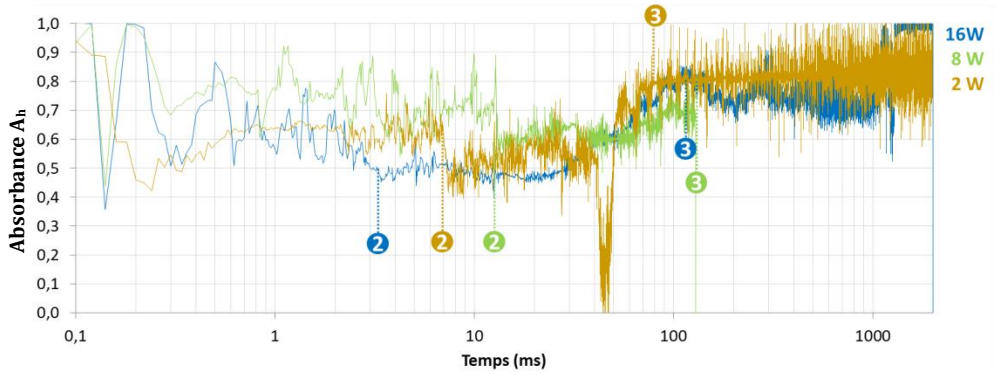
Les régimes statiques (1) solide, (2) fondu, (3) keyhole sont identifiables sur les alliages métalliques dense et compacts *(Figure D-6 et Figure D-7)*. Les instabilités du régime (3) sont identifiables aux observations de la littérature *(Figure III-25)*.

Il faut distinguer le cas dense où $A_s < A_f < A_k$ et le cas pulvérulent où $A_k > A_p > A_f$ *(Figure D-7)*. Les valeurs d'absorbances mesurées pour l'Inconel 625 pulvérulent sont très proches de la littérature qui indique A=67% *(Tableau III-5)*. Pour le Haynes 188, l'absorbance est proche de celle de d'alliage de Cobalt (A=58%).

Aussi, l'effet de la rugosité est fortement remarquable : le substrat dense poli miroir absorbe nettement moins le rayonnement à l'état solide, ce qui impact la puissance à laquelle s'amorce la fusion. Pour le substrat sablé, la fusion opère dès 5W tandis que pour l'état poli elle s'initie à 21W.



a)



b)

Figure D-6 : Suivi en statique de A_h avec l'identification des régimes d'interaction laser-matière, au cours du temps pour a) substrat HA188 poli miroir b)compact Inconel 652

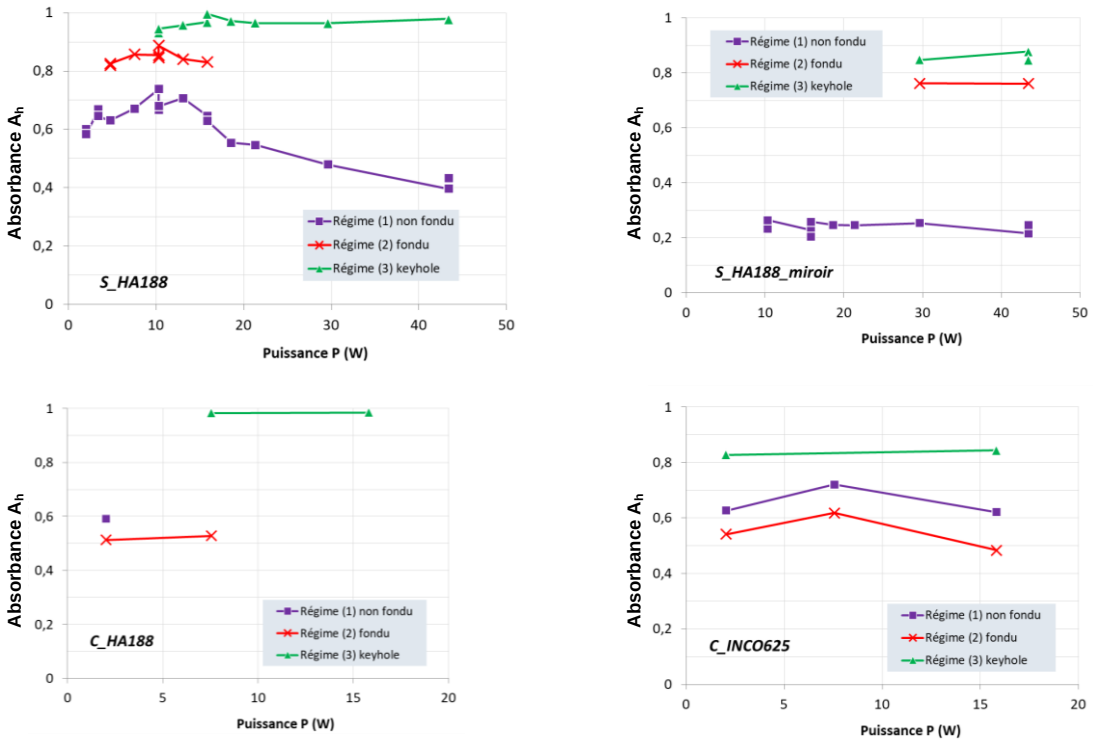


Figure D-7 : Variation de A_h en fonction de la puissance pour les différents régimes pour les systèmes métalliques

Les propriétés radiatives des lignes de fusion 1D évoluent avec la morphologie des bains : le phénomène de *balling* sur compact de poudre *(Figure D-8)* induit une forte oscillation sur R_h représentative de la fréquence du phénomène. A plus forte énergie linéique le signal devient continu. Le cas dense ne présente pas de *balling*, l'augmentation de l'énergie linéique diminue la réflectance et laisse apparaitre des instabilités de keyhole *(Figure D-9)*. La forte oscillation du signal à faible E_l (*balling*) pour les compacts se traduit sur l'amplitude des incertitudes relatives de points mesurés *(Figure D-10)* qui sont nettement supérieures au cas dense.

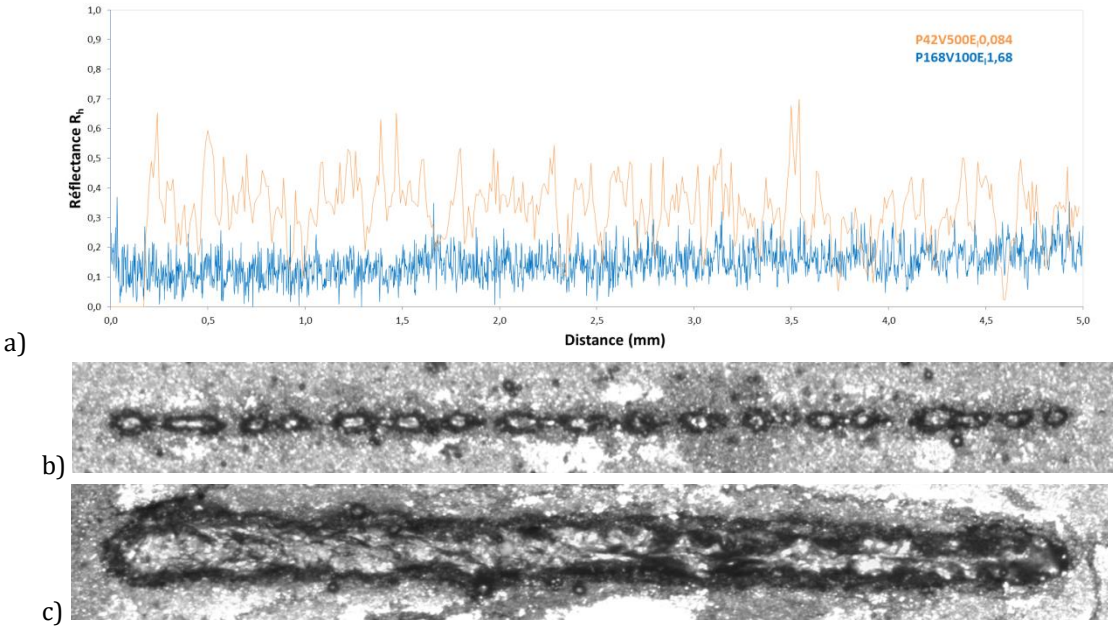


Figure D-8 : a) Evolution de la réflexion au cours du temps en statique pour C_INCO et les images optiques des cordons correspondants b)P42V600 c)P68V100

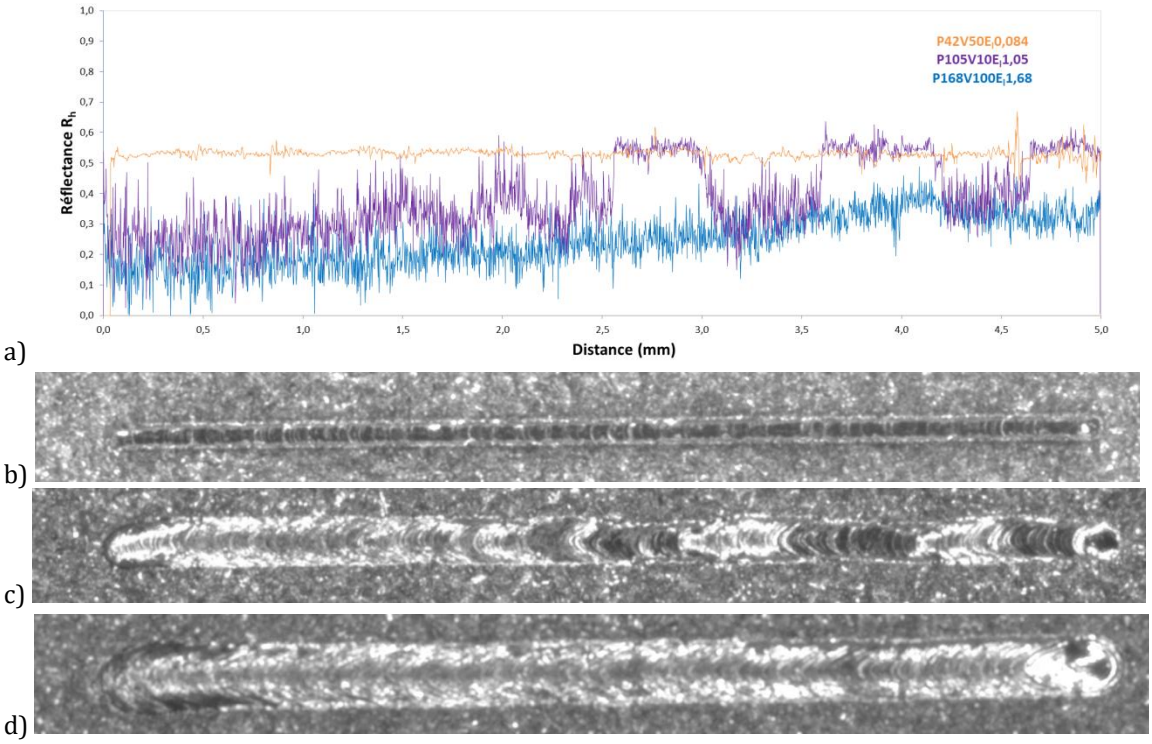


Figure D-9 : a) Evolution de la réflexion au cours du temps en statique pour S_HA188 sablé et les images optiques des cordons correspondants b)P42V50 c)P105V100 d)P168V100

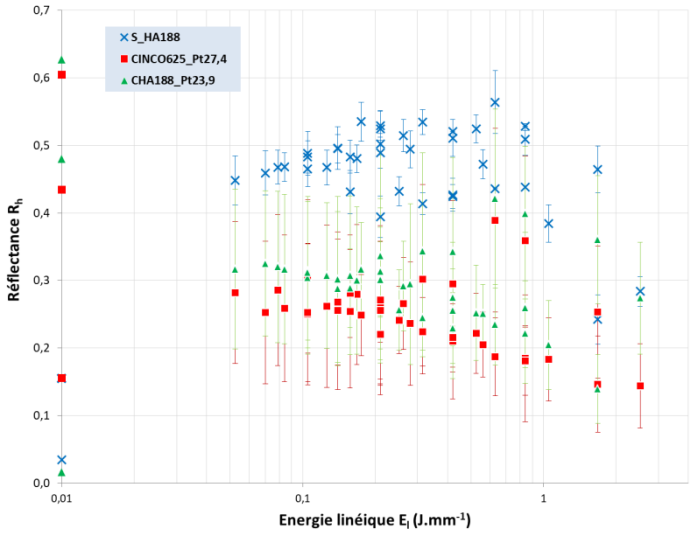


Figure D-10 : Variation de la réflectance en fonction de l'énergie linéique pour les échantillons métalliques

A forte énergie linéique, on remarque qu'il y a une dispersion des valeurs de réflectance et que les effets de P et V ne sont pas équivalents *(Figure D-11)*. Avec l'augmentation de l'énergie linéique, le régime de keyhole est amorcé et la réflectance tend à diminuer avec le faisceau pénétrant le capillaire. Ceci est observable pour le substrat dense {S_HA188} et l'amorce n'est pas déclenchée à la même énergie linéique pour les différentes puissances. Pour les compacts de poudre, l'augmentation de l'énergie linéique induit une augmentation de la réflectance à faible puissance, puis à plus forte puissance une diminution de l'énergie linéique semblable à ce qui est observé pour le substrat dense {S_HA188}. L'augmentation de la réflexion peut est liée à l'oxydation ou à la géométrie de la surface fondue. A faible énergie linéique, les bains sont discontinus et convexes, tandis qu'à plus forte énergie linéique, la profondeur des bains augmente et leur surface s'aplatit, elle devient plane ou concave.

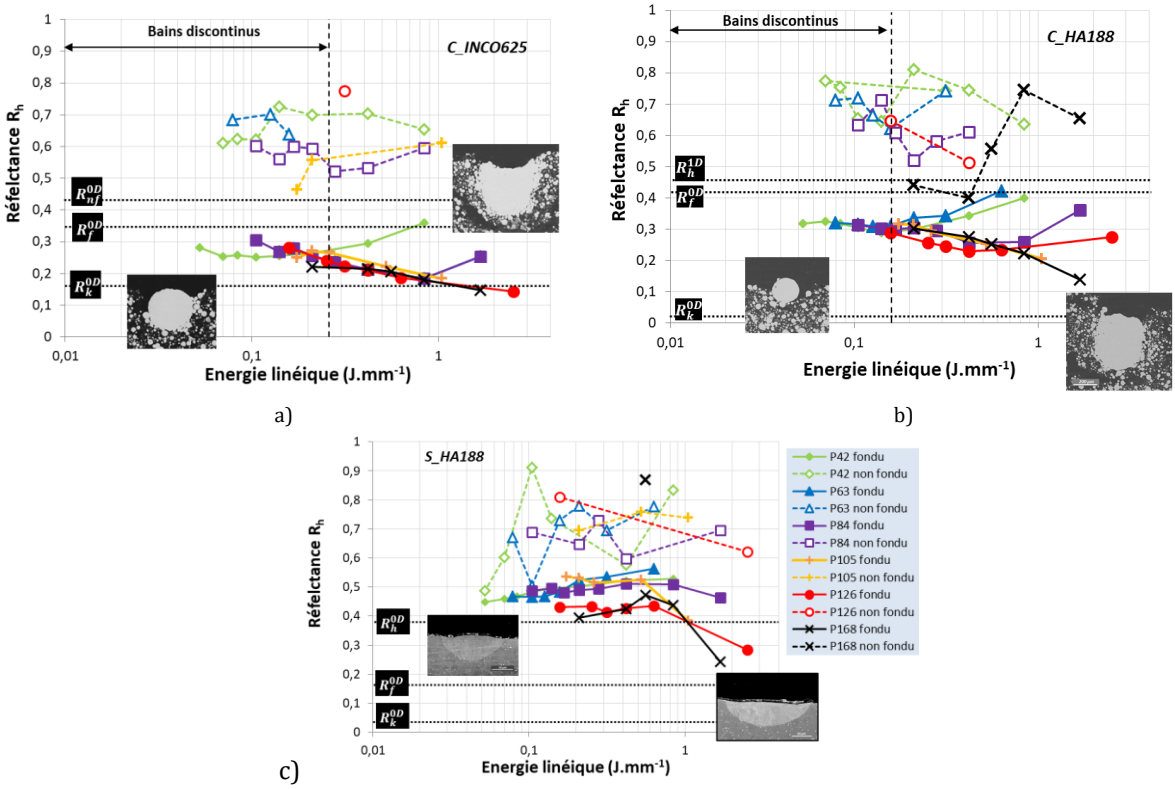


Figure D-11 : Variation de la réflectance en fonction de la vitesse pour différentes puissances pour a) {C_INCO} b) {C_HA188} c) {S_HA188}

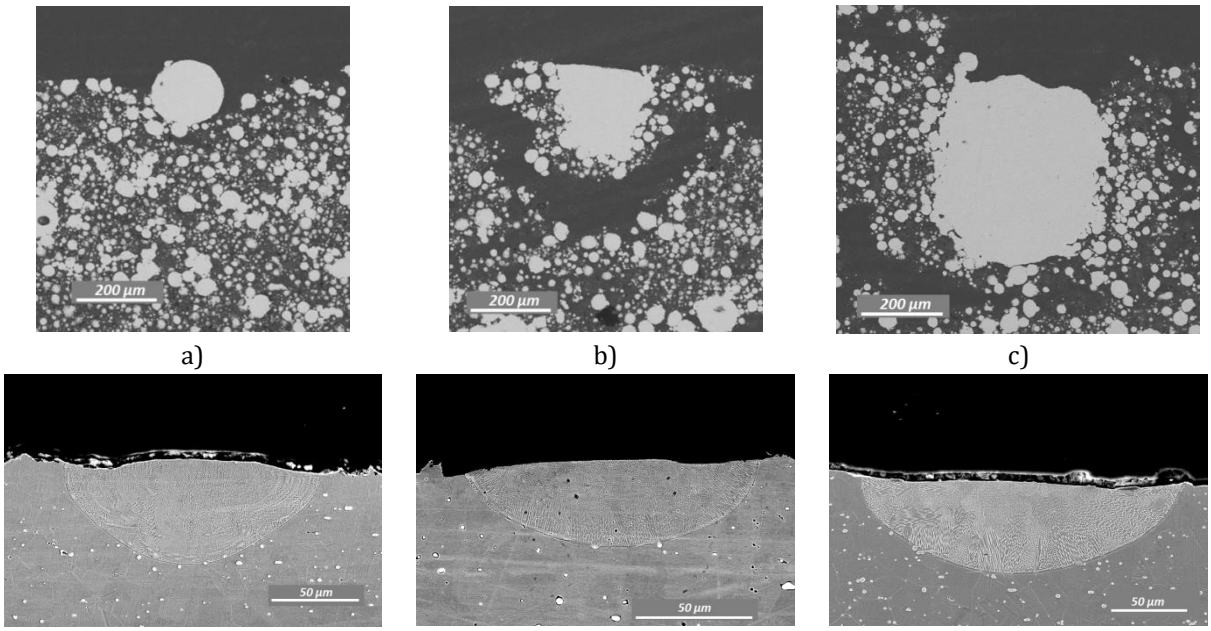


Figure D-12 : Bains de fusion de {C_HA188} a)P126V400El0,32 b) P42V50El0,84 c) P126V50El2,52

La réflectance du substrat {S_HA188} reste très élevée même à forte énergie linéique et les coupes métallographiques des bains de fusion montrent qu'on atteint jamais le régime de keyhole : les bains sont larges mais peu profonds. Pour le compact CHA188, les bains sont bien plus grands. La multi-réflexion dans le cas absorbant contribue à une plus forte absorption *(Figure D-11)* avec une interaction laser-matière plus volumique et une hauteur de bain nettement supérieure pour {C_HA188}.

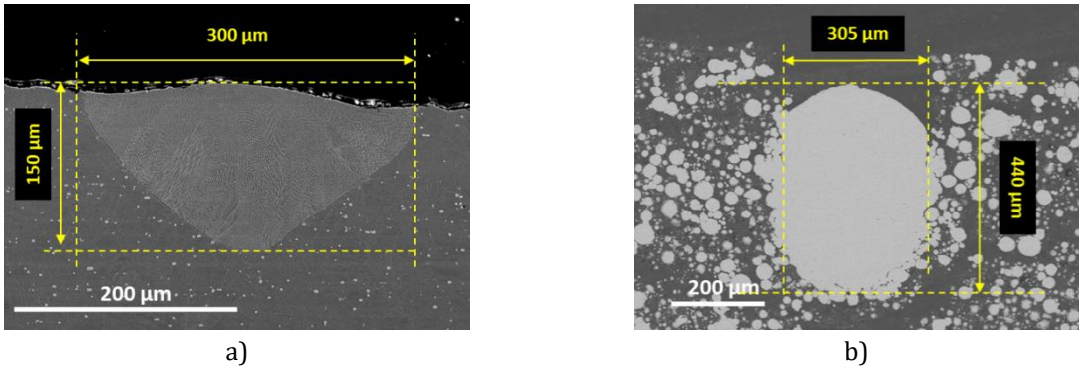
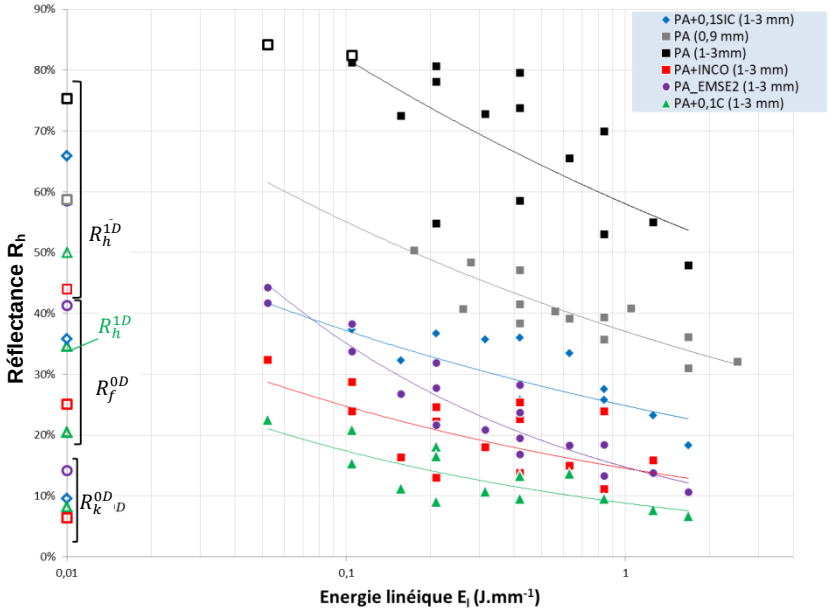
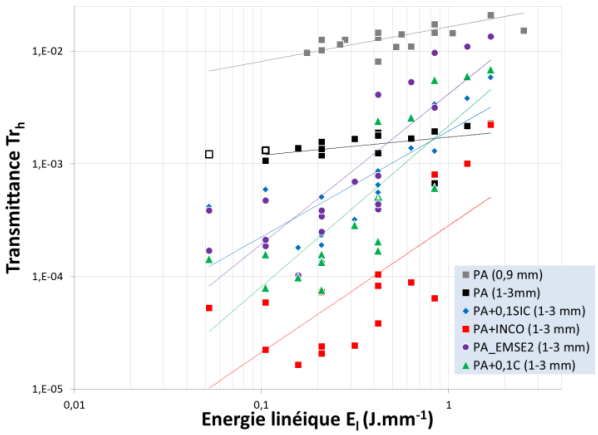


Figure D-13 : Coupes métallographiques pour P168V100El1,68 a){S_H188} b){C_HA188}

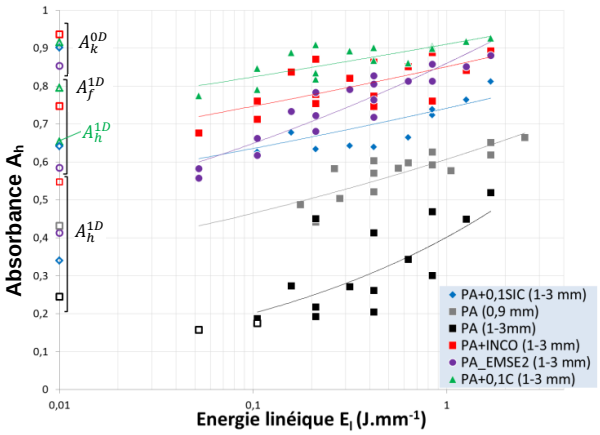
D.c. Systèmes céramiques mélangés à des absorbants



a)

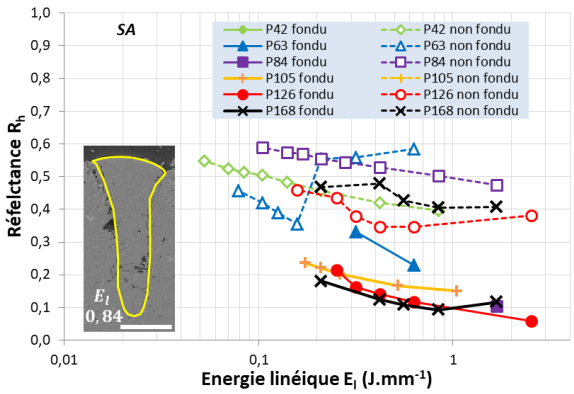


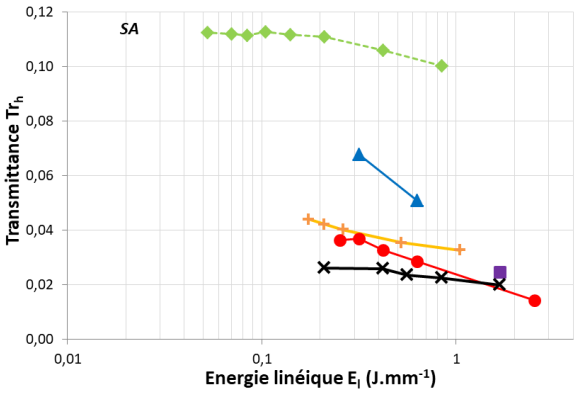
b)



c)

Figure D-14 : Variation des propriétés radiatives avec l'énergie linéique pour les LDP mélangés





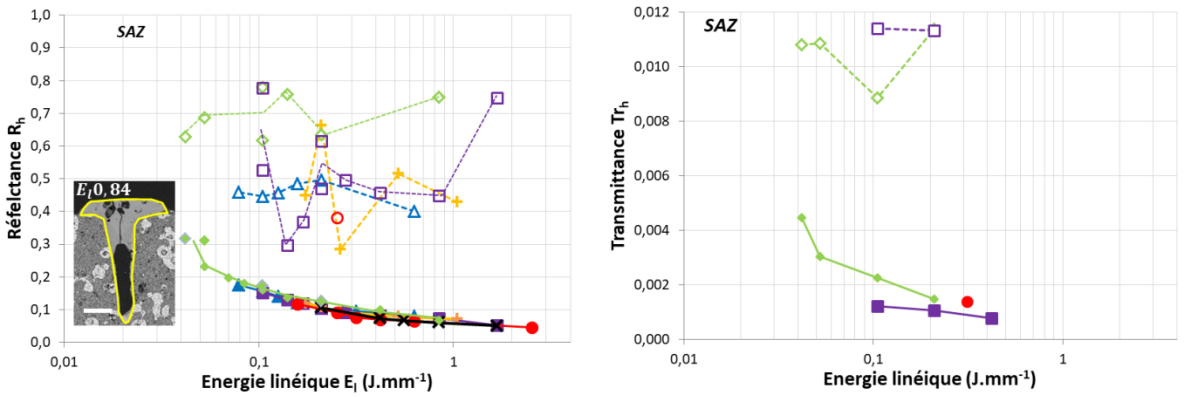


Figure D-15 : Variation des propriétés radiatives avec l'énergie linéique pour les substrats isolés

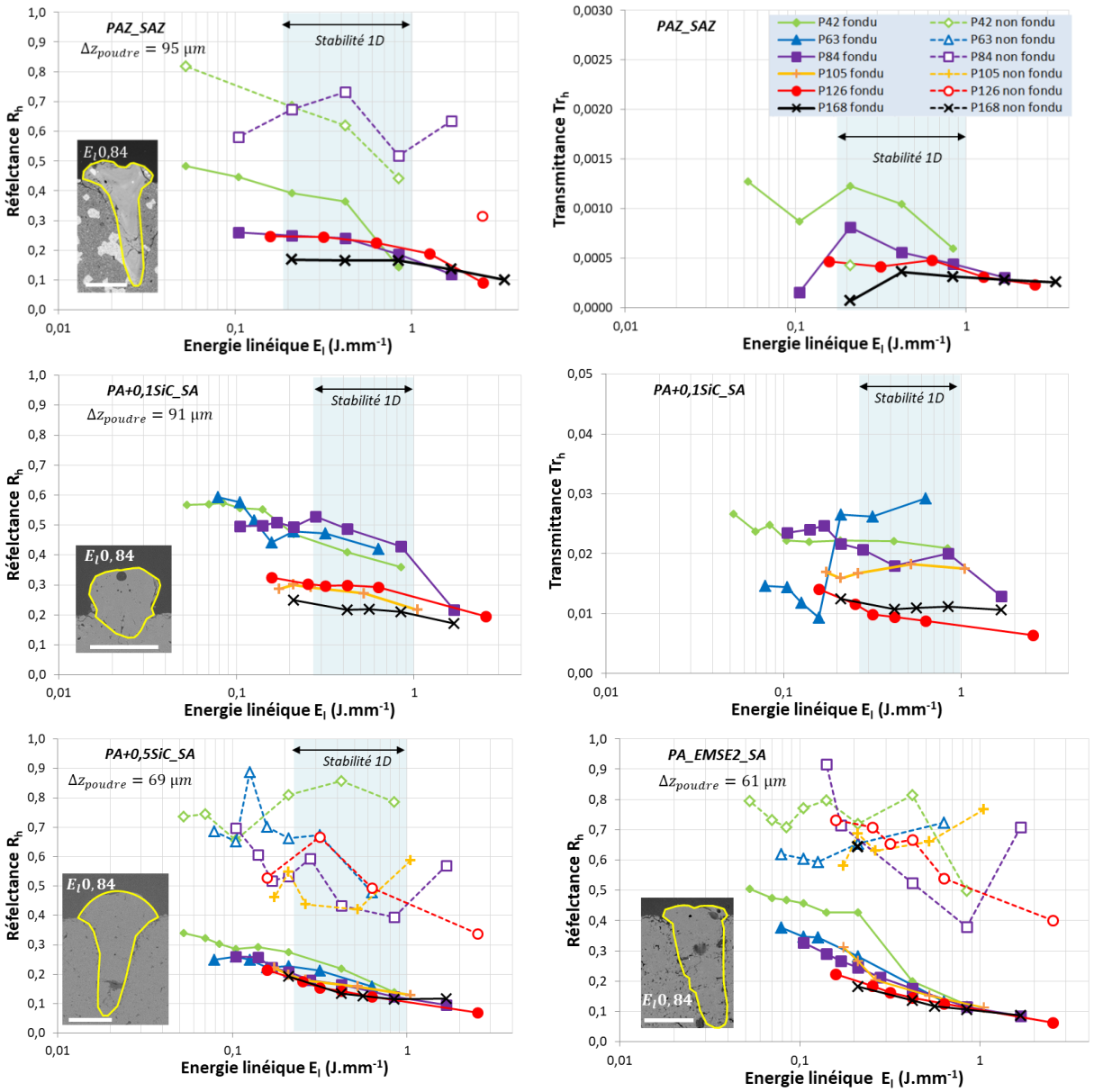


Figure D-16 : Variation des propriétés radiatives en fonction de l'énergie linéique pour différentes puissances de quelques systèmes mélangés {LDP+Substrat}

ANNEXE E : MODELES OPTIQUES

$$\int_{t_1}^{t_2} D_0(x,y,t')\,dt' = \frac{E_l}{\sqrt{2\pi}r_0}\exp\left(-2\frac{y^2}{r_0^2}\right)\left[\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{Vt_2-x}{r_0}\right)-\mathrm{erf}\left(\sqrt{2}\frac{Vt_1-x}{r_0}\right)\right]$$

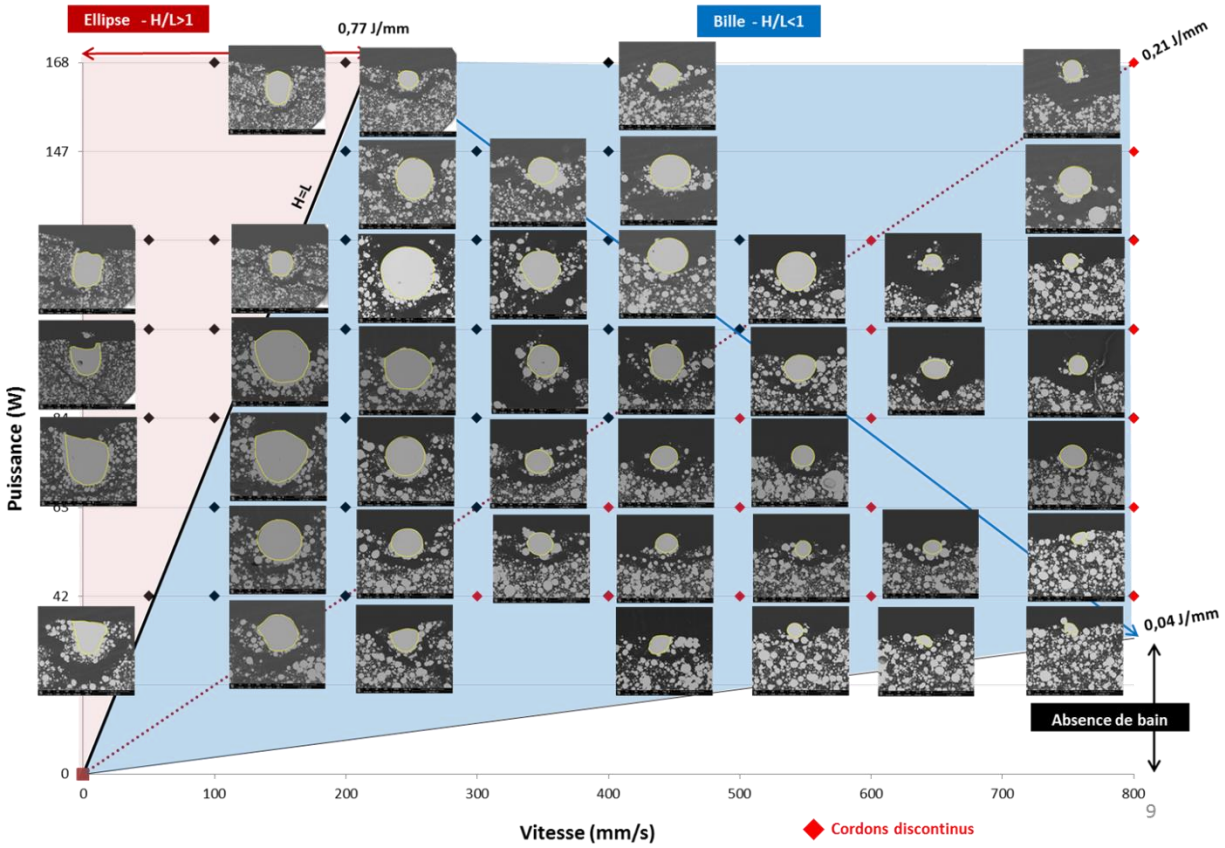


Figure E-1 : Cartographie P-V pour {C_HA188}

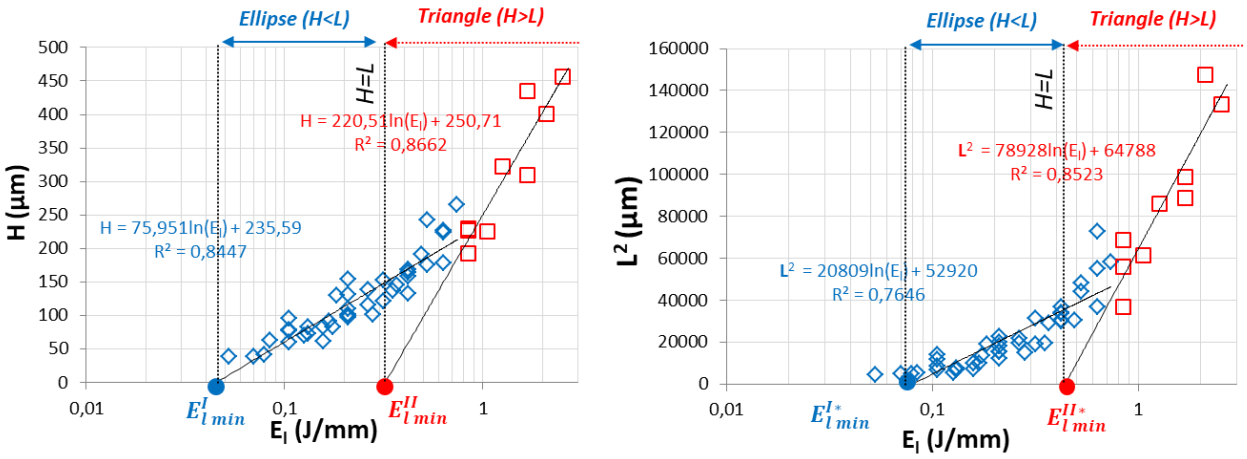


Figure E-2 :Variation de la hauteur H et la largeur au carré de {C_HA188} en fonction de l'énergie linéique

BIBLIOGRAPHIE

Akopov, Felix Arshakovich, Georgii Evgen'evich Val'yano, A. Yu Vorob'ev, Vladimir Nikolaevich Mineev, Vadim Alexandrovich Petrov, A. P. Chernyshev, et G. P. Chernyshev. 2001. « Thermal Radiative Properties of Ceramic of Cubic ZrO2Stabilized with Y2O3at High Temperatures ». High Temperature 39 (2): 244–254.

Ando, Teiichi, et Yuh Shiohara. 1991. « Metastable Alumina Structures in Melt-Extracted Alumina–25 Wt% Zirconia and Alumina–42 Wt% Zirconia Ceramics ». Journal of the American Ceramic Society 74 (2): 410-17.

Ashby, M., H. Shercliff, et D. Cebon. 2013. « Matériaux : ingénierie, science, procédé et conception ». Presses polytechniques et Universitaires romandes.

Baillis, Dominique, et Jean-Francois Sacadura. 2000. « Thermal radiation properties of dispersed media: theoretical prediction and experimental characterization ». Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 67 (5): 327–363.

Bajaj, Priyanshu, Jonathan Wright, Iain Todd, et Eric A. Jägle. 2019. « Predictive process parameter selection for Selective Laser Melting Manufacturing: Applications to high thermal conductivity alloys ». Additive Manufacturing 27: 246-58.

Bass, Michael. 1995. « Handbook of Optics. Vol. 2: Devices, Measurements, and Properties ». Édité par Optical Society of America. 2. ed. New York, NY: McGraw-Hill.

Bäuerle, D. 1996. « Laser Processing and Chemistry ». Berlin; New York: Springer.

Béranger, Gérard, et Henri Mazille. 2005. « Approche scientifique des surfaces. Caractérisation et propriétés », 24.

Berger, M.H. 2011. « A la recherche de la fibre céramique idéale ». Habilitation à diriger des recherches. UMPC.

Bergström, David. 2008. « The Absorption of Laser Light by Rough Metal Surfaces ». Luleå University of Technology.

Bertrand, Ph., F. Bayle, C. Combe, P. Goeuriot, et I. Smurov. 2007. « Ceramic Components Manufacturing by Selective Laser Sintering ». Applied Surface Science 254 (4): 989-92.

Bityukov, Vladimir K., et Vadim A. Petrov. 2013. « Absorption Coefficient of Molten Aluminum Oxide in Semitransparent Spectral Range ». Applied Physics Research 5 (1).

Boch, Philippe, et Jean-Claude Nièpce, éd. 2007. « Ceramic Materials: Processes, Properties and Applications ». London: ISTE.

Bohren, Craig F., et Donald R. Huffman. 1983. « Absorption and Scattering of Light by Small Particles ». Weinheim: Wiley-VCH.

Boley, C. D., S. C. Mitchell, A. M. Rubenchik, et S. S. Q. Wu. 2016. « Metal Powder Absorptivity: Modeling and Experiment ». Applied Optics 55 (23): 6496.

Bourban, S., N. Karapatis, H. Hofmann, et W. Kurz. 1997. « Solidification microstructure of laser remelted Al2O3ZrO2 eutectic ». Acta materialia 45 (12): 5069–5075.

Bourban, Stèwes. 1998. « Déposition par laser de couches céramique AL2O3-ZrO2 sur aciers ». Infoscience. 1998.

Boutier, Alain. 2012. «Métrologie laser pour la mécanique des fluides : granulométrie et techniques spectroscopiques » . Hermes science publications / Lavoisier.

Brinkworth, B. J. 1971. « On the Theory of Reflection by Scattering and Absorbing Media ». Journal of Physics D: Applied Physics 4 (8): 1105–1106.

Cabannes, F., et D. Billard. 1987. « Measurement of infrared absorption of some oxides in connection with the radiative transfer in porous and fibrous materials ». International journal of thermophysics 8 (1): 97–118.

Carillon, Lucile Robin. 2007. « Étude expérimentale et théorique de l'émission infrarouge de céramiques à haute température. Application aux barrières thermiques ». Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.

Chalhoub, Eliane Amin. 2010. « Etude des processus thermophysiques en régime d'interaction laser/matière nanoseconde par pyro/réflectométrie rapide ». Université d'Orléans.

Chaput, Christophe, et Thierry Chartier. 2007. « Fabrication of Ceramics by Stereolithography », 10.

Chartier, T. 2014. « Additive Manufacturing to Produce Complex 3D Ceramic Parts », no 02.

Chen, Qiang. 2018. « Thermomechanical Numerical Modelling of Additive Manufacturing by Selective Laser Melting of Powder Bed: Application to Ceramic Materials », 195.

Cherif, Maya. 2016. « Croissance de la céramique eutectique Al_2O_3-YAG-ZrO_2:Y et étude de la microstructure Chinese Script ». Thèse, Grenoble Alpes.

Childs, T. H. C., C. Hauser, et M. Badrossamay. 2004. « Mapping and modelling single scan track formation in direct metal selective laser melting ». CIRP Annals-Manufacturing Technology 53 (1): 191–194.

Coutures, J.P., J.Cl. Rifflet, P. Florian, et D. Massiot. 1994. « Etude par analyse thermique et par RMN très haute température de 27Al de la solidification de Al2O3 en l'absence de nucléation hétérogène : effets de la température du liquide et de la pression partielle de l'oxygène ». Rev. Int. Hautes Tempér. Réfract. Fr., no 29: 123-42.

CTTC. 2016. 2016. https://www.cttc.fr/.

Da Silva, Anabela. 2001. « Étude théorique et expérimentale de la diffusion de la lumière dans des milieux hétérogènes denses multicouches ». Thèse, Paris, Université Pierre et Marie Curie.

Dahotre, Narendra B., et Sandip P. Harimkar. 2008. «Laser Fabrication and Machining of Materials ». New York, NY: Springer.

Dan'ko, A. Ja., M. A. Rom, N. S. Sidelnikova, S. V. Nizhankovskiy, A. T. Budnikov, L. A. Grin', et Kh. Sh-o. Kaltaev. 2008. « Transformation of the Corundum Structure upon High-Temperature Reduction ». Crystallography Reports 53 (7): 1112-18.

Debout, Vincent. 2007. « Contribution à l'étude des propriétés optiques de dépôts plasma de zircone yttriée: influences de leurs caractéristiques microstructurales et physico-chimiques ».Thèse, Limoges.

Deckers, J. 2014. « Additive Manufacturing of Ceramics: A Review », no 04.

Defillon, G., Gueusquin, J.-B., and Nicolas, I. (2014). « Modèle du bain de fusion du SLM sur céramique avec disparition de l'agent absorbant restreinte au bain ». 37.

Deleglise, Florence. 2000. « Fibres céramiques oxydes biphasées : relations entre comportement mécanique à haute température et microstructure ». These, ENSMP.

Di Maio, Yoan. 2013. « Etude de l'interaction laser-matière en régime d'impulsions ultra-courtes: application au micro-usinage de matériaux à destination de senseurs ». Université Jean Monnet-Saint-Etienne.

Duntley, S.Q. 1942. « The optical properties of diffusing materials ». J. Opt. Soc. Am. 32 (2): 61-70.

Echigoya, J. 2005. « Structure of Interface in Directionally Solidified Oxide Eutectic Systems ». Journal of the European Ceramic Society 25 (8): 1381-87.

Eldridge, Jeffrey I., et Charles M. Spuckler. 2008. « Determination of Scattering and Absorption Coefficients for Plasma-Sprayed Yttria-Stabilized Zirconia Thermal Barrier Coatings ». Journal of the American Ceramic Society 91 (5): 1603-11.

Emmel, Patrick. 2000. « Nouvelle formulation du modèle de Kubelka et Munk avec application aux encres fluorescentes », 11.

Euroceram. «Bottom-DOWN process (Vat Technology)». https://www.euroceram.org/en/technologies/photopolymerization/bottom-down-process-vat- technology.html.

Evans, B. D. 1991. « Optical transmission in undoped crystalline α-Al2O3 grown by several techniques ». Journal of Applied Physics 70 (7): 3995-97.

Fabbro, R. 2013. « Developments in Nd:YAG Laser Welding ». In Handbook of Laser Welding Technologies, 47-72. Elsevier.

Faure, Sophie. 2004. « Etude de l'interaction rayonnement-matière dans un milieu granulaire en vue de l'application au procédé de frittage laser ». Thèse, Université de Limoges.

Ferrage, Loïc, Ghislaine Bertrand, et Pascal Lenormand. 2018. « Dense Yttria-Stabilized Zirconia Obtained by Direct Selective Laser Sintering ». Additive Manufacturing 21: 472-78.

Ferraris, Eleonora, Jef Vleugels, Yuebin Guo, David Bourell, Jean Pierre Kruth, et Bert Lauwers. 2016. « Shaping of Engineering Ceramics by Electro, Chemical and Physical Processes ». CIRP Annals 65 (2): 761-84.

Fischer, P., V. Romano, H.P. Weber, N.P. Karapatis, E. Boillat, et R. Glardon. 2003. « Sintering of Commercially Pure Titanium Powder with a Nd:YAG Laser Source ». Acta Materialia 51 (6): 1651-62..

Fornabaio, Marta. 2014. « Composites in the Alumina-Zirconia System: An Engineering Approach for an Effective Tailoring of Microstructural Features and Performances », 206.

Fosse, Bastien. 2021. « Détection in-situ par thermographie infrarouge de défauts de fabrication par Laser Beam Melting en vue d'un contrôle procédé en boucle fermée : application aux alliages TA6V et 15-5PH ». Thèse, ENSMP.

French, R. H., S. J. Glass, F. S. Ohuchi, Y. -N. Xu, et W. Y. Ching. 1994. « Experimental and theoretical determination of the electronic structure and optical properties of three phases of ZrO2 ». Physical Review B 49 (8): 5133-42.

French, Roger H. 1990. « Electronic Band Structure of Al2O3, with Comparison to Alon and AIN ». Journal of the American Ceramic Society 73 (3): 477-89.

Gale, W.F. 2004. « Smithells Metals Reference Book ». In , 8ed éd., Chap 17:p 1-12.

Gannon, R. E., et B. Linder. 1964. « Effect of Surface Roughness and Porosity on Emittance of Alumina ». Journal of the American Ceramic Society 47 (11): 592-93.

Gelpi, Thibaut. 2020. « Développement des technologies de fabrications additives pour la réparation de composants de turbines aéronautiques de nouvelles générations ». Thèse, ENSMP.

Graneix, Jérémie. 2015. « Étude du soudage LASER Yb: YAG homogène et hétérogène des superalliages Hastelloy X et Haynes 188 ».

Grange, David. 2020. « Mise en forme par Laser Beam Melting de superalliages base nickel difficilement soudables ». Thèse, ENSMP.

Griffith, Michelle L, et John W Halloran. 1994. « Ultraviolet Curing of Highly Loaded Ceramic Suspensions for Stereolithography of Ceramics ». 1994 International Solid Freeform Fabrication Symposium, 8.

Gunenthiram, Valérie, Patrice Peyre, Matthieu Schneider, Morgan Dal, Frédéric Coste, et Rémy Fabbro. 2017. « Analysis of Laser–Melt Pool–Powder Bed Interaction during the Selective Laser Melting of a Stainless Steel ». Journal of Laser Applications 29 (2): 022303.

Guo, Qilin, Cang Zhao, Luis I. Escano, Zachary Young, Lianghua Xiong, Kamel Fezzaa, Wes Everhart, Ben Brown, Tao Sun, et Lianyi Chen. 2018. « Transient Dynamics of Powder Spattering in Laser Powder Bed Fusion Additive Manufacturing Process Revealed by In-Situ High-Speed High-Energy x-Ray Imaging ». Acta Materialia 151 (juin): 169-80.

Gusarov, A.V., and Smurov, I. (2010). « Modeling the interaction of laser radiation with powder bed at selective laser melting ». Phys. Procedia 5, 381–394.

Hagedorn, Yves-Christian. 2013. Additive Manufacturing of High Performance Oxide Ceramics via Selective Laser Melting. 1. Aufl. Edition Wissenschaft Apprimus. Aachen: Apprimus-Verl.

Harimkar, Sandip P., Anoop N. Samant, et Narendra B. Dahotre. 2007. « Temporally Evolved Recoil Pressure Driven Melt Infiltration during Laser Surface Modifications of Porous Alumina Ceramic ». Journal of Applied Physics 101 (5): 054911.

Harrison, Paul, Christian Keller, Stephen Keen, et Michael K Durkin. 2017. « Using the Analysis of Laser-Based Back-Reflected Light to Improve Piercing and Cutting Performance for High Power Fiber Lasers (601) ». In , 6.

Hellrung, D., L.-Y. Yeh, F. Depiereux, A. Gillner, et R. Poprawe. 1999. « High-accuracy micromachining of ceramics by frequency-tripled Nd:YAG lasers ». In Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing IV, 3618:348-56.

Hinczewski, C., Corbel, S., and Chartier, T. (1998). «Ceramic suspensions suitable for stereolithography ». J. Eur. Ceram. Soc. 18, 583–590.

Hofmeister, Anne M., K. M. Pitman, A. F. Goncharov, et Angela K. Speck. 2009. « Optical constants of silicon carbide for astrophysical applications. II. Extending optical functions from infrared to ultraviolet using single-crystal absorption spectra ». The Astrophysical Journal 696 (2): 1502.

Hostaša, Jan, Willi Pabst, et Jiří Matějíček. 2011. « Thermal Conductivity of Al2O3-ZrO2 Composite Ceramics ». Journal of the American Ceramic Society 94 (12): 4404-9.

Indhu, R., V. Vivek, L. Sarathkumar, A. Bharatish, et S. Soundarapandian. 2018. « Overview of Laser Absorptivity Measurement Techniques for Material Processing ». Lasers in Manufacturing and Materials Processing 5 (4): 458-81.

Jackson, Kenneth, et J Hunt. 1966. « Lamellar and Rod Eutectic Growth ». Trans. Met. Soc. AIME 236.

Jacquez, Jonn A., et Hans F. Kuppenheim. 1955. « Theory of the Integrating Sphere ». JOSA 45 (6): 460-70.

Jarrige, Raphaëlle. 2012. « Détermination des propriétés optiques de matériaux granulaires ». Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

Johnson, P. B., et R. W. Christy. 1974. « Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd ». Physical Review B 9 (12): 5056-70.

Jung, Jy Yun. 2012. Optical modeling off-stoichiometric amorphous aluminium oxide thin films deposited by reactive sputtering. University of Illinois at Urbana-Champaign.

Juste, Enrique, Fabrice Petit, Véronique Lardot, et Francis Cambier. 2014. « Shaping of Ceramic Parts by Selective Laser Melting of Powder Bed ». Journal of Materials Research 29 (17): 2086-94..

Keller, Christian. 2017. « Processing of Highly Reflective Materials: Improving Metal Cutting with High Power Fiber Lasers by Examination of Back-Reflected Light ». Laser Technik Journal 14 (4): 30-33.

Kessler, Waltraud, Dieter Oelkrug, et Rudolf Kessler. 2009. « Using Scattering and Absorption Spectra as MCR-Hard Model Constraints for Diffuse Reflectance Measurements of Tablets ». Analytica Chimica Acta 642 (1-2): 127-34.

Khairallah, Saad A., Andrew T. Anderson, Alexander Rubenchik, et Wayne E. King. 2016. « Laser Powder-Bed Fusion Additive Manufacturing: Physics of Complex Melt Flow and Formation Mechanisms of Pores, Spatter, and Denudation Zones ». Acta Materialia 108 (avril): 36-45.

King, W. E., A. T. Anderson, R. M. Ferencz, N. E. Hodge, C. Kamath, S. A. Khairallah, et A. M. Rubenchik. 2015. « Laser Powder Bed Fusion Additive Manufacturing of Metals; Physics, Computational, and Materials Challenges ». Applied Physics Reviews 2 (4): 041304.

King, Wayne E., Holly D. Barth, Victor M. Castillo, Gilbert F. Gallegos, John W. Gibbs, Douglas E. Hahn, Chandrika Kamath, et Alexander M. Rubenchik. 2014. « Observation of Keyhole-Mode Laser Melting in Laser Powder-Bed Fusion Additive Manufacturing ». Journal of Materials Processing Technology 214 (12): 2915-25.

Klocke, Fritz, Andreas Klink, Drazen Veselovac, David Keith Aspinwall, Sein Leung Soo, Michael Schmidt, Johannes Schilp, Gideon Levy, et Jean-Pierre Kruth. 2014. « Turbomachinery Component Manufacture by Application of Electrochemical, Electro-Physical and Photonic Processes ». CIRP Annals 63 (2): 703-26.

Kortüm, Gustav. 1969. «Reflectance Spectroscopy (Principles, Methods, Applications) ». Springer-Verlag New York Inc.

Kubelka, Paul. 1948. « New Contributions to the Optics of Intensely Light-Scattering Materials. Part I ». JOSA 38 (5): 448-57.

Kuhn, J., S. Korder, M. C. Arduini-Schuster, R. Caps, et J. Fricke. 1993. « Infrared-optical Transmission and Reflection Measurements on Loose Powders ». Review of Scientific Instruments 64 (9): 2523-30.

Kurz, W., et DJ Fisher. 1992. Fundamentals of solidification.

Laine, A. D, A. M Mezzasalma, G Mondio, P Parisi, G Cubiotti, et Yu. N Kucherenko. 1998. « Optical properties of cubic silicon carbide ». Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 93 (1): 251-57.

Larrea, A, G.F de la Fuente, R.I Merino, et V.M Orera. 2002. « ZrO2–Al2O3 Eutectic Plates Produced by Laser Zone Melting ». Journal of the European Ceramic Society 22 (2): 191-98.

Lee, W. E., et Mark Rainforth. 1994. « Ceramic Microstructures: Property Control by Processing ». Springer Netherlands.

Leung, Chu Lun Alex, Sebastian Marussi, Michael Towrie, Jesus del Val Garcia, Robert C. Atwood, Andrew J. Bodey, Julian R. Jones, Philip J. Withers, et Peter D. Lee. 2018. « Laser-Matter Interactions in Additive Manufacturing of Stainless Steel SS316L and 13-93 Bioactive Glass Revealed by in Situ X-Ray Imaging ». Additive Manufacturing 24 : 647-57.

Leung, Chu Lun Alex, Sebastian Marussi, Robert C. Atwood, Michael Towrie, Philip J. Withers, et Peter D. Lee. 2018. « In Situ X-Ray Imaging of Defect and Molten Pool Dynamics in Laser Additive Manufacturing ». Nature Communications 9 (1).

Leyder, Stéphanie. 2014. « Ionisation nonlinéaire dans les matériaux diélectriques et semiconducteurs par laser femtoseconde accordable dans le proche infrarouge », 135.

Liao, H. (1998). « Stereolithography using compositions containing ceramic powders ». University of Toronto.

Liu, Jie, Biao Zhang, Chunze Yan, et Yusheng Shi. 2010. « The Effect of Processing Parameters on Characteristics of Selective Laser Sintering Dental Glass-ceramic Powder ». Rapid Prototyping Journal 16 (2): 138-45.

Liu, Qi. 2014. « Etude sur fusion laser sélective de matériau céramique Zircone Yttriée », 179.

Liu, Zhi, Kan Song, Bo Gao, Tian Tian, Haiou Yang, Xin Lin, et Weidong Huang. 2016. « Microstructure and Mechanical Properties of Al2O3/ZrO2 Directionally Solidified Eutectic Ceramic Prepared by Laser 3D Printing ». Journal of Materials Science & Technology 32 (4): 320-25.

Llorca, J, et V Orera. 2006. « Directionally Solidified Eutectic Ceramic Oxides ». Progress in Materials Science 51 (6): 711-809.

Londaitzbehere, Laura. 2016. « Céramiques eutectiques oxydes à microstructure interconnectée préparées par solidification dirigée : élaboration, microstructure, mécanismes de déformation par fluage et réactivité en présence de vapeur d'eau ». Thesis, Paris Est.

Ly, S., Rubenchik, A.M., Khairallah, S.A., Guss, G., and Matthews, M.J. (2017). « Metal vapor micro-jet controls material redistribution in laser powder bed fusion additive manufacturing ». Sci. Rep. 7, 4085.

Maglić, K. D., N. Lj. Perović, et A. M. Stanimirović. 1994. « Calorimetric and Transport Properties of Zircalloy 2, Zircalloy 4, and Inconel 625 ». International Journal of Thermophysics 15 (4): 741-55.

Maheu, B., J. N. Letoulouzan, et G. Gouesbet. 1984. « Four-Flux Models to Solve the Scattering Transfer Equation in Terms of Lorenz-Mie Parameters ». Applied Optics 23 (19): 3353-62.

Makino, T., T. Kunitomo, I. Sakai, et H. Kinoshita. 1985. « Thermal Radiation Properties of Ceramic Materials ». , Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers 50 (452): pp.33-50.

Marcos, D. 2018. « Développement de MOULes INNOVants à haute conductivité thermique pour l'injection de matières plastiques fabriquées par Selective Laser Melting (SLM/LBM) ». ENSMP.

Marthe, Jimmy. 2013. « Elaboration par projection plasma d'un revêtement bicouche d'alumine réfléchissant et diffusant. Contribution à la compréhension des phénomènes interaction rayonnement/matière ». Université de Lorraine.

Martin, Aiden A., Nicholas P. Calta, Joshua A. Hammons, Saad A. Khairallah, Michael H. Nielsen, Richard M. Shuttlesworth, Nicholas Sinclair, et al. 2019. « Ultrafast dynamics of laser-metal interactions in

additive manufacturing alloys captured by in situ X-ray imaging ». Materials Today Advances 1: 100002.

Martukanitz, R P, R M Melnychuk, M S Stefanski, et S M Copley. 2004. « Dynamic Absorption of a Powder Layer ». In , 1404:7.

Matthews, Manyalibo J., Gabe Guss, Saad A. Khairallah, Alexander M. Rubenchik, Philip J. Depond, et Wayne E. King. 2016. « Denudation of Metal Powder Layers in Laser Powder Bed Fusion Processes ». Acta Materialia 114 : 33-42.

Mazerolles, L., D. Michel, et R. Portier. 1986. « Interfaces in Oriented Al2O3-ZrO2 (Y2O3) Eutectics ». Journal of the American Ceramic Society 69 (3): 252-55.

Mazerolles, Léo, Daniel Michel, et Martin J. Hÿtch. 2005. « Microstructures and Interfaces in Directionally Solidified Oxide–Oxide Eutectics ». Journal of the European Ceramic Society 25 (8): 1389-95.

McComb, David W. 1996. « Bonding and Electronic Structure in Zirconia Pseudopolymorphs Investigated by Electron Energy-Loss Spectroscopy ». Physical Review B 54 (10): 7094-7102.

McVey, R. W., R. M. Melnychuk, J. A. Todd, et R. P. Martukanitz. 2007. « Absorption of Laser Irradiation in a Porous Powder Layer ». Journal of Laser Applications 19 (4): 214-24.

Minford, W. J., R. C. Bradt, et V. S. Stubican. 1979. « Crystallography and Microstructure of Directionally Solidified Oxide Eutectics ». Journal of the American Ceramic Society 62 (3-4): 154-154.

Modest, Michael F. 2013. « Radiative Heat Transfer ». 3. ed. New York: Acad. Press.

Molenaar, Peter. 1997. «Time Series Analysis and its Relationship with Longitudinal Analysis ». Vol. 18 Suppl 3.

Monaghan, B. J., et P. N. Quested. 2001. « Thermal Diffusivity of Iron at High Temperature in Both the Liquid and Solid States. » ISIJ International 41 (12): 1524-28.

Montague, Skiles A., Clifton W. Draper, et Gerd M. Rosenblatt. 1979. « Thermal diffusivities of hafnium and cobalt from 300 to 1000 K ». Journal of Physics and Chemistry of Solids 40 (12): 987-92.

Moritz, Tassilo. 2018. « 4 - Additive Manufacturing of Ceramic Components ». Additive Manufacturing, 57.

Moulin, Gérard, Jérôme Favergeon, et Gérard Béranger. 2008. « Zircone - Céramique fonctionnelle », 21.

Mudgett, R. E., A. C. Smith, D. I. C. Wang, et S. A. Goldblith. 1971. « Prediction on the Relative Dielectric Loss Factor in Aqueous Solutions of Nonfat Dried Milk Through Chemical Simulation ». Journal of Food Science 36 (6): 915-18.

Murphy, A B. 2006. « Modified Kubelka–Munk Model for Calculation of the Reflectance of Coatings with Optically-Rough Surfaces ». Journal of Physics D: Applied Physics 39 (16): 3571-81.

Niu, F. Y., D. J. Wu, S. Yan, G. Y. Ma, et B. Zhang. 2017. « Process Optimization for Suppressing Cracks in Laser Engineered Net Shaping of Al2O3 Ceramics ». JOM 69 (3): 557-62.

Orecchia, David. 2008. « Approche de procédés innovants de fabrication rapide par laser de pièces en TA6V, IN718 et en composites à matrice métallique du type TA6V/TiB et TA6V/TiC, pour l'industrie aéronautique ». Rapport de stage de Mastère. MINES-ParisTech.

Orera, V.M., J.I. Peña, P.B. Oliete, R.I. Merino, et A. Larrea. 2012. « Growth of Eutectic Ceramic Structures by Directional Solidification Methods ». Journal of Crystal Growth 360 : 99-104.

Palik, Edward D., éd. 2003. « Handbook of Optical Constants of Solids. 2» Academic Press Handbook Series. Boston: Acad. Press.

Parlier, M., R. Valle, L. Perrière, S. Lartigue-Korinek, et L. Mazerolles. 2011. « Potential of directionally solidified eutectic ceramics for high temperature applications ». AerospaceLab, no 3: p–1.

Pastor, J.Y., P. Poza, J. LLorca, J.I. Peña, R.I. Merino, et V.M. Orera. 2001. « Mechanical Properties of Directionally Solidified Al2O3–ZrO2(Y2O3) Eutectics ». Materials Science and Engineering: A 308 (1-2): 241-49.

Pégourié, B. 1988. « Optical properties of alpha SiC ». Astron. Astrophys. 194: 335-39.

Peña, J. I., R. I. Merino, N. R. Harlan, A. Larrea, G. F. De La Fuente, et V. M. Orera. 2002. « Microstructure of Y 2 O 3 doped Al 2 O 3–ZrO 2 eutectics grown by the laser floating zone method ». Journal of the European Ceramic Society 22 (14): 2595–2602.

Petrov, Vadim A. 2009. « Abrupt Increase of the Absorption Coefficient of Alumina at Melting by Laser Radiation and Its Decrease at Solidification ». International Journal of Thermophysics 30 (6): 1938-59.

Phillips, G. Daniel, et Fred W. Billmeyer Jr. 1976. « Predicting reflectance and color of paint films by Kubelka-Munk analysis, Part IV: Kubelka-Munk scattering coefficient ». Journal of Coatings Technology 48: 30-36.

Pierron, Nicolas, Pierre Sallamand, et Simone Matteï. 2007. « Study of magnesium and aluminum alloys absorption coefficient during Nd:YAG laser interaction ». Applied Surface Science 253 (6): 3208-14.

Postma, Sjoerd. 2003. « Weld Pool Control in ND: YAG Laser Welding ».

Prokhorov, A. M., éd. 1990. « Laser Heating of Metals ». The Adam Hilger Series on Optics and Optoelectronics. Bristol ; Philadelphia: A. Hilger.

Quintino, L., et E. Assunção. 2013. « Conduction Laser Welding ». In Handbook of Laser Welding Technologies, 139-62. Elsevier.

Rabache, Camille. 2013. « Elaboration, caractérisation et étude structurale des composites alumine-zircone ». Thèse, Châtenay-Malabry, Ecole centrale de Paris.

Raj, R., et M. F. Ashby. 1971. « On Grain Boundary Sliding and Diffusional Creep ». Metallurgical Transactions 2 (4): 1113-27.

Rappaz, M., M. Gremaud, R. Dekumbis, et W. Kurz. 1987. « Solidification front and growth rate during laser remelting ». Laser Treatment of Materials, ECLAT, no 1986: 43.

Revcolevschi, A., G. Dhalenne, et D. Michel. 1988. « Interfaces in Directionally Solidified Oxide-Oxide Eutectics ». Materials Science Forum. 1988.

Rosa-Santana, Gabriel de la, Jose Alfredo Alvarez-Chavez, Hector R. Morano-Okuno, Angel J. Morales-Ramirez, et Esmeralda Uribe. 2016. « Photomechanical Ablation of 304L Stainless Steel, Aluminum Oxide : Thin Film, and Pure Silicon ». Optics and Photonics Journal 06 (10): 275-88.

Rozenbaum, Olivier. 1999. « Etude de l'influence de la texture sur l'émissivité spectracle de matériaux poreux semi-transparents à haute température. » Thèse, Université d'Orléans.

Saheb, Nouari, et Umer Hayat. 2017. « Temperature-Dependent Thermal Properties of Spark Plasma Sintered Alumina ». Science of Sintering 49 (2): 117-28.

Sainte-Catherine, C., M. Jeandin, D. Kechemair, J.-P. Ricaud, et L. Sabatier. 1991. « Study of dynamic absorptivity at 10.6 µm (C02) and 1.06 µm (Nd-YAG) wavelengths as a function of temperature ». Le Journal de Physique IV 01 (C7): C7-151-C7-157.

Samant, Anoop N., Baoshuai Du, et Narendra B. Dahotre. 2009. « In-Situ Surface Absorptivity Prediction during 1.06 Mm Wavelength Laser Low Aspect Ratio Machining of Structural Ceramics ». Physica Status Solidi (a) 206 (7): 1433-39.

Samant, Anoop N., et Narendra B. Dahotre. 2009. « Laser Machining of Structural Ceramics—A Review ». Journal of the European Ceramic Society 29 (6): 969-93.

Sani, Elisa, Marco Meucci, Luca Mercatelli, David Jafrancesco, Jean-Louis Sans, Laura Silvestroni, et Diletta Sciti. 2014. « Optical Properties of Boride Ultrahigh-Temperature Ceramics for Solar Thermal Absorbers ». Journal of Photonics for Energy 4 (1): 045599.

Sato, T., M. Ishitsuka, et M. Shimada. 1988. « Thermal Shock Resistance of ZrO2 Based Ceramics ». Materials & Design 9 (4): 204-12..

Sayir, A, et S. C Farmer. 2000. « The Effect of the Microstructure on Mechanical Properties of Directionally Solidified Al2O3/ZrO2(Y2O3) Eutectic ». Acta Materialia 48 (18): 4691-97.

Schmid, F., et D. Viechnicki. 1970. « Oriented Eutectic Microstructures in the System Al2O3/ZrO2 ». Journal of Materials Science 5 (6): 470-73.

Schneider, M, L Berthe, R Fabbro, et M Muller. 2008. « Measurement of laser absorptivity for operating parameters characteristic of laser drilling regime ». Journal of Physics D: Applied Physics 41 (15): 155502.

Scipioni Bertoli, Umberto, Gabe Guss, Sheldon Wu, Manyalibo J. Matthews, et Julie M. Schoenung. 2017. « In-Situ Characterization of Laser-Powder Interaction and Cooling Rates through High-Speed Imaging of Powder Bed Fusion Additive Manufacturing ». Materials & Design 135 : 385-96.

Shaker, E. (2017). Fabrication directe d'implants osseux biocéramiques sur mesure par le procédé de fusion laser sélective sur lit de poudre : élaboration de la poudre d'hydroxyapatite, fabrication de pièces architecturées et étude de l'interaction rayonnement/matière. Thèse ENSMP, 2017.

Shayan, Amir Rahimpour, et Huseyin Bogac Poyraz. s. d. « Laser absorption for Si & SiC », 33.

Shishkovsky, I., I. Yadroitsev, Ph. Bertrand, et I. Smurov. 2007. « Alumina/Zirconium Ceramics Synthesis by Selective Laser Sintering/Melting ». Applied Surface Science 254 (4): 966-70.

Siegel, Robert, et Charles M. Spuckler. 1998. « Analysis of Thermal Radiation Effects on Temperatures in Turbine Engine Thermal Barrier Coatings ». Materials Science and Engineering: A 245 (2): 150-59.

Simonot, Lionel. 2002. « Etude expérimentale et modélisation de la diffusion de la lumière dans une couche de peinture colorée et translucide ». Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

SmarTech Analysis. 2018. « Ceramics Additive Manufacturing Markets 2017-2028 ».

Sola, Daniel, et Jose Peña. 2013. « Study of the Wavelength Dependence in Laser Ablation of Advanced Ceramics and Glass-Ceramic Materials in the Nanosecond Range ». Materials 6 (11): 5302-13.

Srivastavas, S. P., et H. D. Bist. 1972. « Infrared Active Two-Phonon Processes in Some Alkali Iodides ». Physica Status Solidi (b) 51 (1): 85-90.

Streek, A., P. Regenfuss, et H. Exner. 2013. « Fundamentals of Energy Conversion and Dissipation in Powder Layers during Laser Micro Sintering ». Physics Procedia 41: 858-69.

Stubican, V S, et R C Bradt. 1981. « Eutectic Solidification in Ceramic Systems ». Annual Review of Materials Science 11 (1): 267-97.

Tien, Chang-Lin, et B. L. Drolen. 1987. « Thermal radiation in particulate media with dependent and independent scattering ». Annual Review of Heat Transfer 1 (1): 1-32.

Tolochko, Nikolay K., Yurii V. Khlopkov, Sergei E. Mozzharov, Michail B. Ignatiev, Tahar Laoui, et Victor I. Titov. 2000. « Absorptance of Powder Materials Suitable for Laser Sintering ». Rapid Prototyping Journal 6 (3): 155-61.

Torrent, José, et Vidal Barrón. 2008. « Diffuse Reflectance Spectroscopy ». In Methods of Soil Analysis, 5:19.

Trapp, Johannes, Alexander M. Rubenchik, Gabe Guss, et Manyalibo J. Matthews. 2017. « In Situ Absorptivity Measurements of Metallic Powders during Laser Powder-Bed Fusion Additive Manufacturing ». Applied Materials Today 9 (décembre): 341-49.

Travitzky, Nahum, Alexander Bonet, Benjamin Dermeik, Tobias Fey, Ina Filbert-Demut, Lorenz Schlier, Tobias Schlordt, et Peter Greil. 2014. « Additive Manufacturing of Ceramic-Based Materials: Additive Manufacturing of Ceramic-Based Materials ». Advanced Engineering Materials 16 (6): 729-54.

Triantafyllidis, D., L. Li, et F.H. Stott. 2002. « Surface Treatment of Alumina-Based Ceramics Using Combined Laser Sources ». Applied Surface Science 186 (1-4): 140-44.

Tropf, W. J., et M. E. Thomas. 1998. « Aluminum Oxide (Al2O3) Revisited ». Handbook of Optical Constants of Solids. San Diego, Calif.: Acad. Press.

Vargas, William E. 2002. « Inversion Methods from Kubelka-Munk Analysis ». Journal of Optics A: Pure and Applied Optics 4 (4): 452–456.

Vargas, William E., et Gunnar A. Niklasson. 1997. « Applicability Conditions of the Kubelka–Munk Theory ». Applied Optics 36 (22): 5580.

Victoria, Marta. 2014. « New Concepts and Techniques for the Development of High-Efficiency Concentrating Photovoltaic Modules ». Universidad Politécnica de Madrid.

Vilaro, Thomas. 2011. « Fabrication directe de pièces aéronautiques et spatiales en Nimonic 263 et A360 par le procédé de fusion sélective par laser : approche thermique, microstructurale et mécanique ». Thèse, ENSMP.

Vinson, Pierre. 2015. « Fusion sélective par laser de lits de poudre : Étude sur le recyclage de la poudre et détection de défauts au cours de la fabrication par imagerie thermique ». Thèse, ENSMP.

Wadley Research Group – UVA. https://www2.virginia.edu/ms/research/wadley/high-temp.html. « Environmental Barrier Coatings ».

Wahiduzzaman, S., et Thomas Morel. 1992. « Effect of translucence of engineering ceramics on heat transfer in diesel engines ». Westmont, Illinois: Integral Technologies Incorporated.

Waku, Yoshiharu. 2011. « Unidirectionally Solidified Eutectic Ceramic Composites for Ultra-High Efficiency Gas Turbine Systems ». In Advances in Gas Turbine Technology. InTech.

Wang, D., Wu, S., Fu, F., Mai, S., Yang, Y., Liu, Y., and Song, C. (2017). « Mechanisms and characteristics of spatter generation in SLM processing and its effect on the properties ». Mater. Des. 117, 121–130.

Weber, Marvin J. 2003. « Handbook of Optical Materials ». The CRC Press Laser and Optical Science and Technology Series. Boca Raton: CRC Press.

Yang, G., C.Y. Zhao, et B.X. Wang. 2013. « Experimental Study on Radiative Properties of Air Plasma Sprayed Thermal Barrier Coatings ». International Journal of Heat and Mass Transfer 66 : 695-98.

Yang, Ying, Dongdong Gu, Donghua Dai, et Chenglong Ma. 2018. « Laser Energy Absorption Behavior of Powder Particles Using Ray Tracing Method during Selective Laser Melting Additive Manufacturing of Aluminum Alloy ». Materials & Design 143 : 12-19.

Zhang, Z., et M. F. Modest. 1998. « Temperature-dependent absorbances of ceramics for Nd: YAG and CO2 laser processing applications ». Transactions-American society of mechanical engineers journal of heat transfer 120: 322–327.

Zocca, Andrea, Paolo Colombo, Cynthia M. Gomes, et Jens Günster. 2015. « Additive Manufacturing of Ceramics: Issues, Potentialities, and Opportunities ». Journal of the American Ceramic Society 98 (7): 1983-2001.

Zocca, Andrea, Paolo Colombo, Jens Günster, Thomas Mühler, et Jürgen G. Heinrich. 2013. « Selective Laser Densification of Lithium Aluminosilicate Glass Ceramic Tapes ». Applied Surface Science 265: 610-14.

RÉSUMÉ

La mise en forme par fusion laser sélective (LBM) de céramiques oxydes (Al_2O_3-ZrO_2 et Al_2O_3) a pour objectif l'obtention directe de pièces aux formes complexes et aux microstructures fines et dirigées qui ne peuvent être réalisées par le procédé conventionnel de frittage. Ces pièces légères, possédant une excellente tenue au fluage en température et à l'oxydation, pourront alors répondre aux problématiques d'allègement et d'augmentation de la température de fonctionnement des turboréacteurs, comparativement aux pièces métalliques revêtues de céramiques poreuses. La combinaison matériau/procédé repose sur l'ajout contrôlé d'un absorbant aux poudres céramiques pures, permettant de pallier leur quasi-transparence au rayonnement laser Yb:YAG. A travers la mesure des propriétés optiques, l'étude menée vise à identifier l'impact des paramètres du procédé, de la nature et teneur de l'absorbant, de la compacité du lit de poudre sur la stabilité du bain de fusion. Pour ce faire, des mesures radiatives innovantes en réflexion et en transmission ont été réalisées en cours de fabrication. Ces mesures en dynamique via une sphère intégrante informent sur les mécanismes d'interaction laser-matière des différents milieux traversés, et permettent d'accéder aux propriétés optiques associées. Ces données alimentent un modèle analytique d'interaction laser-matière basé sur l'atténuation du rayonnement par la loi de Beer-Lambert. Ce dernier fait le lien entre les dimensions des bains (largeur, profondeur), les propriétés radiatives des différents milieux concernés (lit de poudre, substrat et bain liquide), les coefficients d'absorption associés, les paramètres du procédé, l'épaisseur et la porosité du lit de poudre. Il constitue un outil pour exprimer analytiquement la forme et la section apparente fondue au sein du lit de poudre, celles de la zone refondue au sein du substrat ainsi que celles de la zone de consolidation au sein lit de poudre. Certaines de ces données calculées et difficilement mesurables sont utiles pour alimenter un modèle de consolidation du lit de poudre prenant en compte les échanges de matière observés entre une zone dite dénudée (liée à l'éjection de particules du lit de poudre), et une zone dite de consolidation. La quantification de ces flux de matière, impactant fortement la fabrication par LBM de ces céramiques oxydes, a permis le développement d'une stratégie de construction spécifique qui compense la zone dénudée et évite le phénomène de points chauds. L'ensemble de ces données permet alors la mise en forme de pièces avec une porosité réduite et une microfissuration contrôlée.

MOTS CLÉS

Céramiques oxydes, laser, absorbant, fabrication additive, propriétés radiatives

ABSTRACT

Selective laser melting of oxide ceramics (Al_2O_3-ZrO_2 and Al_2O_3) is identified as a promising way to produce complex shaped parts with oriented fine microstructures, which would not be achievable by conventional sintering. These lightweight parts, presenting excellent resistance to creep at high temperature and oxidation, would appear as the answer to weight reduction and temperature increasing of turbojet engines, as compared to the usual metal parts coated with porous ceramics. The material/process coupling relies on the controlled addition of an absorber to pure ceramic powders, that compensate the quasi-transparency of these materials to Yb:YAG laser radiation. The effect on optical properties of process parameters, absorbent nature and content, compactness of the powder bed and their influence on manufacturing stability are identified. For this purpose, innovative radiative measurements in reflection and in transmission were carried out during manufacturing and for different operating conditions. These dynamic measurements through an integrating sphere provide information on the laser-material interaction mechanisms taking place in each media and they give access to optical material properties. These measurements enrich an analytical laser-matter interaction model based on the radiation attenuation by the Beer-Lambert law. This model gives a relation between melt pool dimensions, radiative properties of the different media (powder bed, substrate and liquid) along with the associated absorption coefficients, the process parameters and powder bed porosity. This model expresses also the apparent melted section within the powder bed, the section of the melted zone within the substrate and the consolidation section within the powder bed. Some of these calculated data are not measurable and usefully contribute to a consolidation model of the powder bed. This model takes into account the material exchanges observed between so-called bare zones (linked to the ejection of powder particles) and consolidation zones. Quantification of these particles exchanges, which have a strong impact on the LBM of these oxide ceramics, allows the definition of a specific manufacturing strategy that compensates for the bare zone formation while avoiding the formation of hot spots. These data collection enables the manufacturing of LBM ceramic oxide parts with reduced porosity and controlled micro-cracking.

KEYWORDS

Oxide ceramics, laser, absorber, additive manufacturing, radiative properties