

UNIVERSITE ASSANE SECK DE ZIGUINCHOR



LCPM

UFR SCIENCES ET TECHNOLOGIES

Département de Physique

Mention : Physique et Application

Spécialité : Physique des matériaux

Mémoire de Master 2

SIMULATION NUMERIQUE DU FRITTAGE SPS (SPARK PLASMA SINTERING) DES PIECES DE FORMES COMPLEXES

Présenté par M. **Adama DIEDHIOU**

Sous la direction du Dr Joseph Sambasene DIATTA

Soutenu publiquement le 20/12/2019 à l'UASZ devant le jury composé de :

Prénom (s)	NOM	Grade	Qualité	Etablissement
Diouma	KOBOR	Professeur Titulaire	Président de jury	UASZ
Moustapha	THIAME	Maître Assistant	Rapporteur	UASZ
Lat Grand	NDIAYE	Maître de Conférences	Examineur	UASZ
Mamadou Lamine	MBAYE	Maître Assistant	Examineur	UASZ
Joseph Sambasene	DIATTA	Maître Assistant	Encadrant	UASZ

DEDICACE

Je dédie ce travail :

A feu mon père Balla Moussa DIEDHIOU,

A ma mère Ramatoulaye NDIAYE

A sa coépouse Mariétou SONKO

A mes tantes,

A mes oncles,

A mes sœurs Yacine, Ndéye et Safiétou,

A mes frères Bacary, Modou, Ousseynou, Assane, Daouda

A mes cousines et cousins,

A tous mes professeurs,

A tous mes amis et tous ceux qui m'ont soutenu tout au long de ce travail.

REMERCIEMENTS

Je remercie en premier lieu le Bon Dieu qui m'a donnée la force pour accomplir cette mission-ci grandiose. Dans cette optique, il ressort de cela que le courage fut le début de ma quête du savoir. Alors je pense que le moment est venu pour moi d'exprimer mes sincères gratitude et reconnaissances au personnel enseignant et enseignante de la filière MPC1 qui n'a ménagé aucun effort pour nous permettre d'acquérir les connaissances indispensables pour notre formation afin d'affronter les difficultés ou réalités du monde professionnel.

Je tiens à remercier ensuite Dr Joseph Sambasene DIATTA, mon encadrant, sans qui l'aboutissement de ce travail serait impossible. Sa disponibilité, sa rigueur scientifique, sa méthodologie et ses conseils m'ont été très précieux. Il a su me guider et me faire progresser tout au long de cette recherche, je ne peux que louer ses qualités humaines.

Je remercie aussi le Professeur Diouma KOBOR pour avoir accepté de présider le jury de mémoire de master. Mes remerciements vont aussi à l'égard de Dr Moustapha THIAME pour avoir consenti de rapporter mémoire. Je remercie très sincèrement Dr Mamadou Lamine MBAYE et Dr Lat Grand NDIAYE pour leur disponibilité et d'avoir accepté d'examiner mon travail de mémoire.

Mes remerciements vont aussi à l'égard de tous les enseignants qui ont eu participées à ma formation de l'élémentaire, le Moyen, le Secondaire et l'Université.

Je tiens à remercier plus particulièrement M Raoul MALOU, M. Pierre SADIO, M Youssouf Badji, Sérigne Mbacké Ndiaye, M Abdoul K. DIALLO, M Moussa TOURE, tous des étudiants du département de physique, pour leurs discussions et aides apportées.

Je remercie M Dioncounda YOCK, Technicien de laboratoire au Département de Physique qui par ses conseils m'a apporté des surplus. Mes remerciements vont aussi droit vers la dixième et la dernière promotion de MPC1 de l'université Assane SECK de Ziguinchor.

Je remercie l'ensemble des étudiants en doctorat et en master du Département de Physique qui par leurs conseils et leurs aides ont contribué au bon déroulement de mon travail.

Je ne saurais terminer sans remercier par la grâce de Dieu mes parents et mes amis pour leur soutien inconditionnel, je m'adresse particulièrement à ma mère Ramatoulaye NDIAYE, ma tante Mariétou SONKO, aux frères de mon père M Mamadou DIEDHIOU et qui n'ont ménagé aucun effort pour la réussite de mes études, mention spéciale à mes amis Alpha Omar BA, Nouha DRAME, Cheikh Omar SALL, Birame MATH DABO.

RÉSUMÉ

Un modèle numérique multi physique du procédé SPS (Spark Plasma Sintering) a été développé afin d'évaluer les champs électriques, thermiques et mécaniques subis par la poudre lors du frittage. La fiabilité de ce modèle numérique a été validée par comparaison avec des données expérimentales réalisées sur une poudre d'alumine avec une pastille de diamètre 20mm.

De plus, comme le montre le frittage des pastilles d'alumine de plus grand diamètre (50 mm de diamètre), le gradient de porosité induit semble être principalement corrélé à l'existence d'un gradient thermique dans la poudre. Le gradient de température semble donc être un point crucial à contrôler lors du procédé SPS des échantillons de grande taille afin d'obtenir une microstructure fine et homogène.

Dans le but d'améliorer la structure des pièces de formes complexes, une méthode basée sur un cycle thermique oscillatoire a été proposée. La densité relative obtenue à partir de la méthode avec un cycle oscillatoire semble meilleure que celle obtenue avec un cycle thermique classique

Mots clés : Frittage SPS, Méthode des Eléments Finis, Comsol Multiphysics

ABSTRACT

A multiphysical numerical model of the SPS process has been developed in order to evaluate electrical, thermal and mechanical fields undergone by the powder during sintering. The reliability of this numerical model has been validated by comparison with experimental data made on an alumina powder with 20mm diameter pellet.

In addition, as shown shown during sintering of alumina pellets of larger diameter (50 mm diameter), the induced porosity gradient seems to be mainly correlated to the existence of thermal gradient in the powder. Thus, the temperature gradient seems to be a crucial point to control in the SPS process of large samples in order to obtain a fine and homogeneous microstructure.

In order to improve the final properties of complex shaped pellets, a method based on an oscillatory thermal cycle has been proposed. The relative density obtained by the oscillatory cycle method is better than that obtained by the conventional thermal cycle.

Keywords: SPS Sintering, Finite Element Method, Comsol Multiphysics

LISTE DES ABREVIATIONS

SPS: Spark Plasma Sintering

HP: Hot Pressing (Presse à chaud)

HIP: Hot Isostatic Pressing (Pressage Isostatique à chaude)

GPS : Gas Pressure Sintering

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Propriétés thermo physiques du graphite, de l’Inconel et de l'alumine dense en fonction de la température (en Kelvin).....	12
Tableau 2 : Propriétés du feuillet et du feutre en graphite (données fournisseur).....	13
Tableau 3 : Propriétés du compact granulaire d’alumine en fonction de la densité relative (ρ).13	

LISTES DES FIGURES

Figure 1 : Évolution de la densité relative au cours des étapes de densification lors d'un frittage isotherme [5].	4
Figure 2 : Les différents types de frittages [5]	5
Figure 3 : Évolution schématique du frittage de deux sphères [6]	5
Figure 4 : Étapes classiques durant le frittage en phase liquide du mélange de poudres [7]	6
Figure 5 : Schéma d'une enceinte de frittage SPS.	9
Figure 6. Représentations schématiques de la colonne SPS (coordonnées en mètres) pour des échantillons frittés de diamètres 20 mm (a) et 50 mm (b). [18]	10
Figure 7: Comparaison des évolutions de températures entre expérience et simulation aux différents points radiaux A, B et C	18
Figure 8: Représentation de l'exposant de contrainte en fonction du temps	22
Figure 9: Représentation de l'énergie d'activation en fonction du temps	22
Figure 10 : Représentation de la densité relative instantanée en fonction du temps	23
Figure 11: Représentation de la température en fonction du temps	23
Figure 12 : Représentation de l'exposante de contrainte en fonction du temps.	24
Figure 13: Représentation l'énergie d'activation en fonction du temps.	24
Figure 14: Représentation de la densité relative instantanée en fonction du temps	25
Figure 15 : Représentation de l'exposante de contrainte en fonction du temps	25
Figure 16 : Représentation de l'énergie d'activation en fonction du temps	25
Figure 17 : Représentation de la densité relative instantanée en fonction du temps	26
Figure18 : Représentation de la densité instantanée en fonction du temps normale	27
Figure19 : Représentation de la densité instantanée en fonction du temps cycle oscillant	27

Table des matières

DEDICACE	ii
REMERCIEMENTS	iii
RÉSUMÉ	iv
ABSTRACT	v
LISTE DES ABREVIATIONS	vi
LISTE DES TABLEAUX	vii
LISTES DES FIGURES	viii
INTRODUCTION GENERALE	1
Chapitre I : Généralités sur le frittage	3
I.1. Etude théorique du phénomène de frittage	3
I.1.1. Définition et généralités sur le frittage	3
I.1.2. Différentes étapes du frittage	3
I.2 Différents types de frittage	4
I.2.1 Frittage en phase solide	5
I.2.2. Frittage en phase liquide	6
I.2.3 Frittage réactif	6
I.3. Différentes techniques de Frittage	7
I.3.1 Frittage HP (Hot Pressing)	7
I.3.2 Frittage HIP (Hot Isostatic Pressing)	7
I.3.3 Frittage SPS (Spark Plasma Sintering)	8
I.4. Conclusions	9
CHAPITRE 2 : MATERIELS ET METHODES	10
II. 2. Description du modèle numérique	10
II.2.1 Géométrie du système	10
II.2.2 Propriétés des matériaux	11
II.3 Modélisation mathématique du frittage SPS	13
II.3.1 Modèle électro-thermique	13
II.3.2. Modèle électrique-thermique-mécanique	14
II.3.3 Couplage électro-thermo-mécanique	16
II.3.4 Conditions initiales et aux limites	16

II.3.4.1 Conditions électriques	16
II.3.4.2 conditions thermiques	17
II.3.4.3 conditions mécaniques	17
Conclusions	17
CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSIONS	18
III.1 Validation du modèle numérique électrique-thermique	18
III.2 Validations du modèle numérique électrique-thermique-mécanique	19
III.2.1 Modèle numérique électrique-thermique-mécanique avec une pièce d'alumine de diamètre 20mm	19
III.2.2 Modèle numérique électrique-thermique-mécanique avec une pièce d'alumine de diamètre 50mm	20
III.3 Modèle numérique avec un cycle normal (modèle classique)	21
III.3.1 Modèle numérique thermique -mécanique avec un oscillant (modèle 1)	23
III.3.2 Etude comparatif entre les deux modèles (modèle classique et modèle oscillant)	25
Conclusions	27
CONCLUSION ET PERSPECTIVES	28
BIBLIOGRAPHIE	30

INTRODUCTION GENERALE

Depuis quelques dizaines d'années, la technologie de frittage flash ou "Spark Plasma Sintering" (SPS) séduit autant le monde scientifique qu'industriel pour ses performances dans la mise en forme de tous types de matériaux tels que des métaux et alliages, des céramiques, des polymères et des nano composites.

La machine SPS se rapproche d'une presse à chaud (Hot-Pressing, HP) avec cependant comme différence essentielle la source de chaleur. Si dans le cas du frittage HP, elle est obtenue de manière classique avec des résistors extérieurs, par contre dans le cas du SPS elle est constituée par l'effet Joule issu du passage d'un courant pulsé à travers la cellule de pressage, voire éventuellement à travers l'échantillon, selon sa conductivité électrique. Cette technologie permet d'accroître les cinétiques de frittage et d'obtenir ainsi des densifications totales en préservant des granulométries nanométriques. De plus, la très faible inertie thermique de l'appareil permet la réalisation de cycles de frittage extrêmement rapides [1].

Cependant, les travaux antérieurs [2] montrent que le frittage SPS de pièces complexes (pièce de grande taille) de certains matériaux comme l'alumine, le titane pur (Ti), l'alliage Titane-Aluminium (TiAl) donne des frittés avec des propriétés mécaniques de moins bonne qualité. Cependant, en modifiant le cycle thermique classique du frittage SPS par un cycle oscillatoire comme le propose [2] les propriétés finales du frittés semblent considérablement améliorées.

Un modèle numérique développé par les éléments finis sera utilisé afin de mettre en évidence les hétérogénéités microstructurales sur les pièces d'alumine. En effet, la simulation numérique permet de minimiser le nombre d'essais expérimentaux nécessaires pour optimiser les conditions de frittage et les géométries de l'outillage afin de produire des échantillons frittés présentant des propriétés de travail homogènes et améliorées, et la compréhension des mécanismes de densification impliqués est extrêmement utile pour contrôler le retrait de l'échantillon pendant le procédé SPS.

Une autre partie de ce travail consiste à améliorer les propriétés finales du titane, très convoité dans l'industrie automobile, aéronautique et autres. Un modèle numérique utilisant un cycle thermique oscillatoire est appliqué à ce type de matériau (matériau à changement de phase) sera développé.

Pour réaliser ce travail, un premier chapitre présente les généralités sur le frittage.

Le deuxième chapitre décrit le modèle numérique qui est développé, la machine SPS ainsi que l'instrumentation spécifique utilisée.

Le troisième chapitre est dédié à la présentation des résultats du modèle éléments finis développé, illustre les hétérogénéités microstructurales existantes dans les pièces de grandes tailles (50 mm de diamètre) avec de l'alumine. Celle-ci est électriquement non conductrice à basse température, mais sa conductivité électrique augmente avec la température, permettant au courant de circuler dans la poudre. Ce changement de comportement permet de tester l'applicabilité du modèle pour les matériaux isolants et conducteurs. Cette partie également montre l'amélioration apportée par la méthode utilisant un cycle thermique oscillant est appliquée sur du titane pur (matériau à changement de phase).

Il se termine par une synthèse des principaux résultats de ce travail de mémoire de fin d'études qui sont essentiellement l'utilisation d'un cycle thermique oscillatoire pour améliorer les propriétés mécaniques du titane.

Chapitre I : Généralités sur le frittage

I.1. Etude théorique du phénomène de frittage

I.1.1. Définition et généralités sur le frittage

Le frittage est un processus de traitement thermique conduisant à la consolidation d'un agglomérat de poudre qui s'effectue grâce à la formation de liaison entre les grains.

Le frittage est généralement décrit grâce à la porosité (**p**) ou encore la densité relative ρ_r (appelé aussi taux de densification) :

$$p = \frac{V_p}{V} \quad (1)$$

$$\rho_r = 1 - P \quad (2)$$

V_p = volume des pores

V = volume total.

Du point de vue physico-chimique, on distingue essentiellement deux types de frittage [3] :

- Le frittage en phase solide où tous les constituants restent solides au cours du traitement thermique. La densification est réalisée grâce à la diffusion des espèces. On peut par ailleurs ajouter des additifs qui permettent d'accélérer la densification (sans création de phase liquide). Ce frittage peut être monphasé ou polyphasé.
- Le frittage en phase liquide où il y a création d'une phase liquide en quantité juste suffisante pour permettre le réarrangement des particules, former des ponts liquides entre les grains et les amener au contact les uns des autres. Ce frittage est également polyphasé.

Le frittage commence généralement vers des températures de l'ordre de 0,5 à 0,8 fois la température de fusion du matériau.

I.1.2. Différentes étapes du frittage

Si un matériau, constitué de grains au contact, est porté à température suffisante pour le frittage, sa densité relative va évoluer selon une courbe similaire à celle présentée sur la figure 1. On distingue alors trois stades d'évolution au cours du processus [4] :

- Le début de frittage est caractérisé par la formation de ponts entre les grains. On a création de joints de grains. Le matériau acquiert une certaine cohésion sans réelle croissance de taille des grains.
- Ce stade est accompagné d'une faible diminution de l'aire de surface spécifique (faible augmentation de la densité).

- La seconde étape consiste en l'élimination de la porosité ouverte. Elle est accompagnée d'une forte hausse de la densité.

On notera par ailleurs qu'au début de cette étape, la densité relative est de l'ordre de 0,65. Les grains ont perdu leur identité et forment une structure tridimensionnelle traversée par une porosité ouverte sous forme de canaux cylindrique.

- En fin de frittage (densité relative de l'ordre de 0,9 à 0,95), les porosités sont réduites à des sphères. Cette étape est par ailleurs généralement accompagnée d'une forte croissance granulaire.

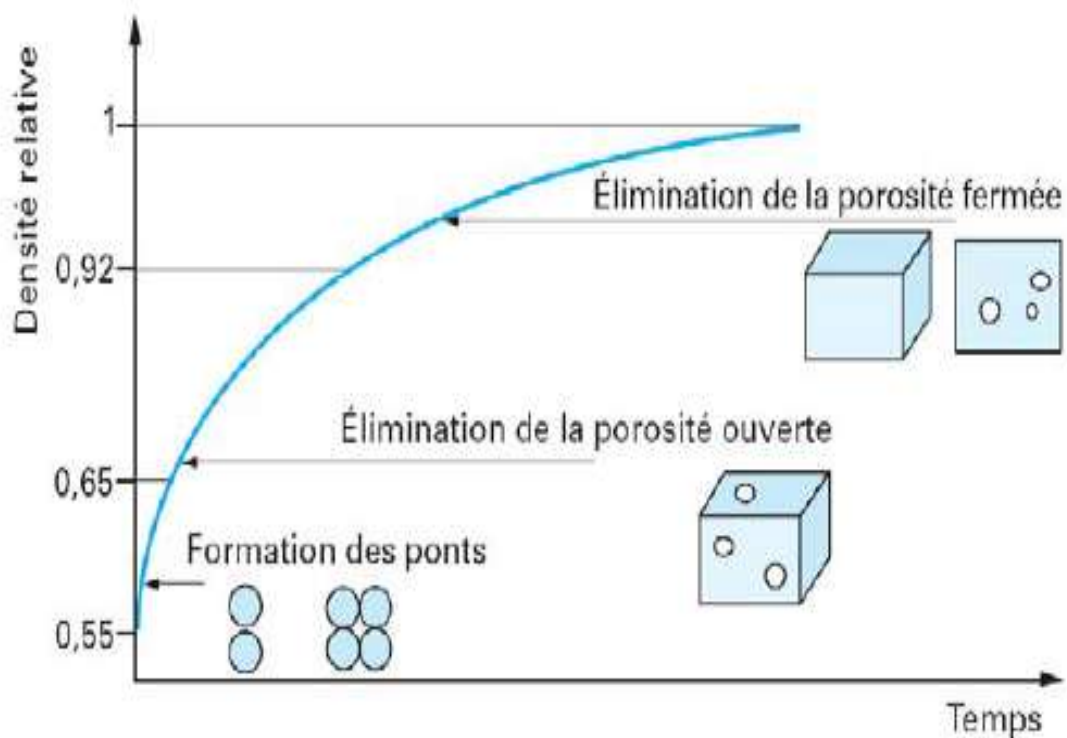


Figure 1 : Évolution de la densité relative au cours des étapes de densification lors d'un frittage isotherme [5].

I.2 Différents types de frittage

Le frittage peut se faire en phase solide ou en présence d'une phase liquide. Industriellement le frittage en phase solide est le plus utilisé, surtout pour la fabrication de pièces métalliques puisque le changement de dimensions est faible. Le frittage avec la phase liquide est surtout utilisé pour la fabrication de composites de matrice métallique ou céramique.

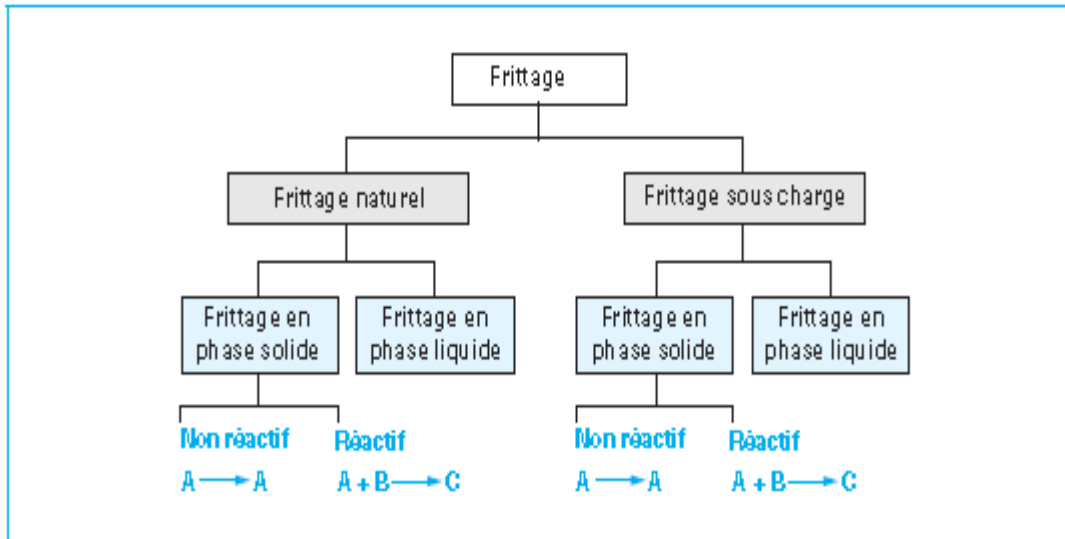


Figure 2 : Les différents types de frittages [5]

Remarque :

Si après frittage on obtient un matériau ayant la même composition chimique que la poudre initiale alors il s'agit d'un frittage non réactif .Au cas contraire le frittage réactif.

I.2.1 Frittage en phase solide

Le frittage est un traitement thermique qui permet de passer d'un matériau à l'état de poudre ou de comprimé de poudre à un matériau solide. Le traitement se déroule à des températures où tous les composants de la poudre restent à l'état solide. La consolidation est réalisée par le grossissement des contacts entre les particules par diffusion de matière. Sa force motrice est la grande énergie interfaciale du système pulvérulent. Comme le système tend à évoluer vers un état de moindre énergie, les interfaces les plus énergétiques comme les interfaces solide-gaz se réduisent au bénéfice des interfaces moins énergétiques de type solide-solide. A l'équilibre thermodynamique, le système se réduirait à une seule particule sphérique et monocristalline, comme on le montre pour deux sphères en contact sur la figure 3.



Figure 3 : Évolution schématique du frittage de deux sphères [6]

I.2.2. Frittage en phase liquide

Dans ce procédé de frittage, l'un des constituants (minoritaire) du mélange de poudres passe en phase liquide. Comme dans le frittage en phase solide, la réduction de l'énergie interfaciale est la force motrice. La propriété de mouillage de la phase solide par la phase liquide est importante pour réaliser le frittage. La densification durant le frittage en phase liquide se déroule en 3 étapes : réarrangement, dissolution-précipitation et grossissement de grains comme on peut l'observer sur la figure 4. Pendant le chauffage pour atteindre la température de fusion d'un des composants, une densification en phase solide peut se produire. Elle peut même être conséquente pour certains systèmes. Une fois que la phase de plus bas point de fusion devient liquide, l'étape de réarrangement de grains est activée. Ensuite il y a un ajustement de forme des grains qui conduit à une élimination de pores importante. Finalement pendant la dernière étape une croissance microstructurale est observée, au cours de laquelle la taille moyenne des grains et des pores augmente continuellement.

Les applications industrielles de cette technique de frittage sont les alliages lourds (W-Ni, W-Ni-Cu), les carbures cémentés (WC-Co, notamment), les alliages Fe-Cu et Cu-Sn, les amalgames dentaires Ag-Sn-Hg, et de nombreuses céramiques.

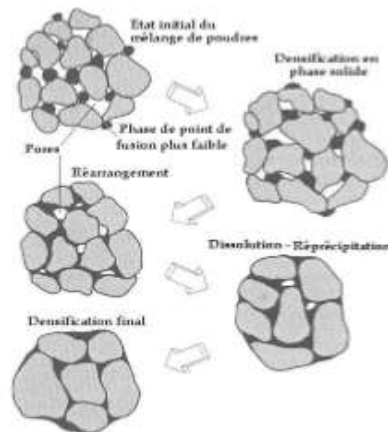


Figure 4 : Étapes classiques durant le frittage en phase liquide du mélange de poudres [7]

I.2.3 Frittage réactif

Ce type de frittage se réalise en provoquant une réaction chimique entre les différentes poudres d'un mélange à haute température. Il est aussi possible de produire un frittage réactif entre la poudre et un liquide ou un gaz.

I.3. Différentes techniques de Frittage

Le frittage traditionnel est généralement réalisé par chauffage et sans application de contraintes mécaniques. On parle alors de frittage naturel ou frittage libre. Malheureusement, la densification de certains matériaux par ce procédé est difficile en raison des faibles cinétiques de diffusion ou encore de la prédominance de mécanismes de grossissement de grains. Il est ainsi apparu de nombreux procédés dans le but d'accélérer ces cinétiques, et de limiter la croissance granulaire. La plus part de ces procédés implique l'application de contraintes mécaniques au cours du traitement thermique. Parmi ces procédés, nous citerons plus particulièrement .

I.3.1 Frittage HP (Hot Pressing)

Le pressage à chaud (Hot Pressing, HP) où le matériau est placé dans une enceinte, presse le matériau de manière uniaxiale au cours du frittage. Il a généralement une dureté élevée et une bonne résistance à la chaleur (Température de fusion élevée, fluage seulement pour $T > 80\% T_f$, chimiquement inerte ...). Néanmoins la mise en forme est difficile et s'avère fragile car il est utilisé seulement en compression. Les matériaux utilisés sont onéreux car ce sont des céramique techniques.

I.3.2 Frittage HIP (Hot Isostatic Pressing)

La compaction isostatique à chaud (Hot Isostatic Pressing, HIP) et le frittage sous pression de gaz (Gaz Pressure sintering, GPS) sont des procédés pendant lesquels la contrainte mécanique est appliquée de manière isotrope par l'intermédiaire d'un gaz. Dans le procédé HIP l'échantillon est encapsulé préalablement au traitement et la contrainte est transmise par l'intermédiaire de cette enveloppe. Le procédé GPS implique l'application directe de la contrainte par le gaz environnant. Il n'y a pas de limitation quant au céramique que l'on peut fritter par HIP . Il permet d'obtenir des matériaux totalement dense et n'a pas d'utilisations de liant. Ce procédé permet de fritter des matériaux réfractères à haute température de frittage ($< 2000^\circ\text{C}$) et l'abaissement des températures de frittage. Avec le frittage HIP, les microstructures sont maîtrisées et les propriétés sont améliorées. Cependant, il nécessite la gestion des gradients de température et de pression pendant le cycle de frittage. Les coûts sont plus importants que dans le frittage classique et ce procédé est plutôt réservé aux pièces de haute valeur ajoutée.

I.3.3 Frittage SPS (Spark Plasma Sintering)

Le frittage flash (Spark Plasma Sintering, SPS) est la technique qui connaît le plus grand essor actuellement. Ce procédé se distingue du pressage à chaud par la source de chaleur utilisée (figure 5). Le chauffage est réalisé par l'application d'un courant électrique continu, pulsé ou alternatif à travers l'enceinte de pressage et parfois à travers l'échantillon selon sa conductivité électrique.

De très importantes vitesses de montée en température (jusqu'à 1000°C/min et plus) sont ainsi atteintes par effet joule. Le principal avantage du frittage SPS réside dans le compactage rapide des poudres, ce qui permet de fabriquer des matériaux nettement plus performants, voire totalement nouveaux. Un autre avantage du procédé SPS est mis en évidence par la fig. 5. où la puissance thermique est non seulement répartie de manière homogène à l'échelle macroscopique sur le volume de la poudre à presser mais également transmise à l'échelle microscopique, exactement aux points pour lesquels l'énergie est nécessaire au processus de frittage à savoir les points de contact entre les particules de poudre. De ce fait, le frittage est réalisé avec une faible croissance de grains. De même ce procédé élimine largement les processus indésirables de décomposition ou de réaction, ce qui permet d'obtenir une structure de transition jusqu'à présent considéré comme impossible. En fonction du type de poudre, certains auteurs annoncent d'autres effets positifs aux points de contact comme par exemple l'électromigration ou de production de micro plasma. Avec ce procédé, le frittage est rapide (quelques minutes), la croissance des grains est contrôlée, la morphologie du matériau respectée également.

Les étapes de compaction et de frittage peuvent être combinées dans la même opération. Le frittage est possible pour tous les types de matériaux (métaux, céramiques, composites, polymères) ainsi que le cofrittage possible.

En revanche, le coût du générateur de courant pulsé est élevé. Le procédé est très sensible et la production de masse est encore limitée.

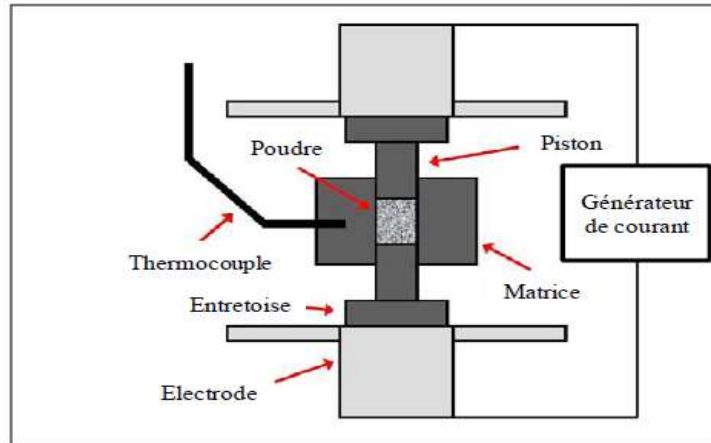


Figure 5 : Schéma d'une enceinte de frittage SPS.

I.4. Conclusions

Le procédé de frittage « Spark Plasma Sintering » connaît un intérêt grandissant de la communauté scientifique ainsi que de nombreux industriels pour ses performances dans la densification de nanomatériaux. Cette technique a également permis d'améliorer les propriétés de nombreux matériaux déjà existants ainsi que de leurs composites, mais peut également permettre la synthèse et l'assemblage de nouveaux matériaux. Son utilisation dans l'industrie, notamment au Japon, démontre son intérêt technologique et innovateur pour des domaines très variés du monde socio-économique, tels que l'électronique de puissance, les matériaux de structure, le stockage de l'énergie, les biomatériaux, l'aéronautique et l'aérospatiale.

À ce jour, de nombreuses hypothèses sont proposées pour la compréhension des cinétiques et mécanismes de densification qui conduisent notamment à une maîtrise de la microstructure des objets densifiés par le procédé SPS. Le courant traversant la cellule de pressage pour le chauffage par effet Joule amène des interrogations sur son rôle dans la densification et sur les phénomènes physico-chimiques potentiellement présents pendant les cycles de frittage SPS. Les équations permettant la détermination des mécanismes de densification de la technologie SPS sont pour le moment assimilées à ceux du frittage sous charge.

Les travaux scientifiques se portent aujourd'hui sur l'accumulation de données expérimentales de frittage, mais également sur des caractérisations thermiques et électriques du dispositif.

CHAPITRE 2 : MATERIELS ET METHODES

Ce chapitre traite des méthodes numériques et expérimentales qui sont employées dans ce travail de simulation du frittage SPS. Le modèle numérique est développé par la méthode des éléments finis précisément via le logiciel Comsol Multiphysics. Ce dernier va permettre de trouver la solution du modèle couplé (électrique, thermique et mécanique) du frittage SPS. L'autre partie est consacrée à la mise en place d'une expérimentation qui valide les résultats du modèle numérique.

II. 2. Description du modèle numérique

II.2.1 Géométrie du système

Le dispositif SPS est une machine commerciale, Dr. Sinter SPS 825 (Syntex), fournie par Fuji Electronics Industrial Co. Ltd (Japon) et situé au laboratoire SPCTS à Limoges. En raison de la symétrie axiale de la colonne SPS, le modèle construit est axisymétrique et bidimensionnel.

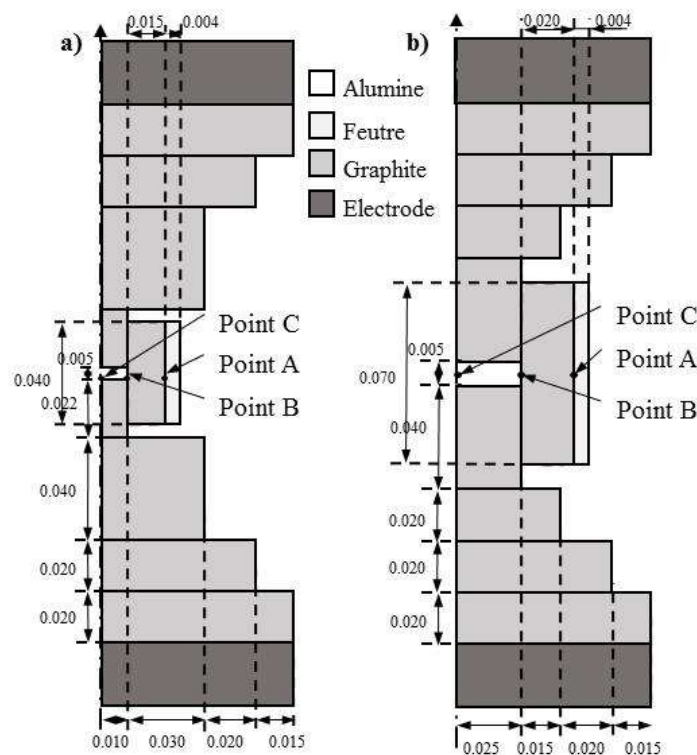


Figure 6. Représentations schématiques de la colonne SPS (coordonnées en mètres) pour des échantillons frittés de diamètres 20 mm (a) et 50 mm (b). [18]

Deux géométries cylindriques de la filière graphite ont été considérées avec des diamètres intérieurs de 20 et 50 mm (Fig. 6). Ces géométries ont ensuite été maillées à l'aide d'éléments linéaires rectangulaires à quatre nœuds. Des mailles adaptatives d'environ 24 000 à 41 000

éléments ont été utilisées. L'échantillon et les interfaces de l'échantillon et de l'outillage ont été maillés à l'aide d'éléments plus fins, les entretoises, l'outillage et les pistons sont en graphite (qualité 2333, Groupe Mersen, France). Les deux entretoises d'extrémité en graphite sont en contact avec des électrodes en Inconel, elles-mêmes en contact avec des pièces métalliques refroidies à l'eau. Un feutre de graphite (4 mm d'épaisseur, qualité RVG 2000, Mersen, France) de faible conductivité thermique a été placé à la surface externe de la matrice pour des températures de frittage élevées afin de limiter les pertes radiatives et la capacité de frittage d'une poudre commerciale submicrométrique alpha alumina (TM-DAR, TaiMei Chemicals, Japon) a été étudié. Cette poudre de pureté élevée (99,99 %) présente une granulométrie médiane de 140 nm.

II.2.2 Propriétés des matériaux

Les propriétés thermo physiques des éléments en graphite et des Inconels électrodes sont présentées dans les tableaux 1 et 2

Tableau 1 : Propriétés thermo physiques du graphite, de l'Inconel et de l'alumine dense en fonction de la température (en Kelvin).

Propriétés	Inconel 600	Graphite 2333	Alumine (densité relative 100%)
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	$10,09 - 1,57 \times 10^{-2} \times T$ [8]	$-6,13233037 \times 10^{-9} \times T^3$ $+3,74876934 \times 10^{-5} \times T^2$ $-8,55642194 \times 10^{-2} \times T$ $+100,052056$ [9]	$5,5 + 34,5 \times e^{-0,0033 \times (T-273)}$ [10,11]
Capacité thermique (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	$344 + 2,50 \times 10^{-1} \times T$ [21]	$-34,27 + 2,72 \times T$ $-9,6 \times 10^{-4} \times T^2$ [9]	$1044,6 + 0,1742 \times T$ $-2,796 \times 10^7 \times T^{-2}$ [10,11]
Résistivité électrique (Ω.m)	$9,82 \times 10^{-7} + 1,6 \times 10^{-10} \times T$ [10]	$5,81004340 \times 10^{-16} \times T^3$ $+1,29101557 \times 10^{-12} \times T^2$ $-9,17654490 \times 10^{-9} \times T$ $+1,84024743 \times 10^{-5}$ [9]	$\frac{10^{10}}{8,7 \cdot 10^{19} T^{-4,82}}$ [12,13]
Densité (kg.m ⁻³)	8430[14]	1860 [15]	3970[16]
Module de Young (GPa)	-	180[15]	$400 \times$ $[1 - 86,6 \times 10^{-6} \times (T - 273)]$

			$- 40,7 \times 10^{-9} \times (T - 273)^2 + 8,7 \times 10^{-12} \times (T - 273)^3$ [17]
Coefficient de Poisson (-)	-	0,262 [15]	0,23[16]
Coefficient de dilatation thermique ($^{\circ}\text{K}^{-1}$)	-	$6,0 \cdot 10^{-6}$ [15]	$5,1209 \times 10^{-6} + 3,1373 \times 10^{-9} \times T - 6,6203 \times 10^{-13} \times T^2$ [17]

Tableau 2 : Propriétés du feuillet et du feutre en graphite (données fournisseur).

Propriétés thermoélectriques	Feuillet en graphite (Papyex®, grade N998)	Feutre en graphite (grade RVG 2000)
Conductivité thermique ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	Plan 140-160 Epaisseur 4-6	Pour $T < 1273 \text{ K}$: $2,00287916 \times 10^{-7} \times T^2 - 1,90654633 \times 10^{-4} \times T + 0,141867898$ Pour $T > 1273 \text{ K}$: 0,217 [11]
Capacité thermique ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	Plan/Epaisseur 711	Pour $T < 1673 \text{ K}$: $0,69782609 \times T + 507,53695652$ Pour $T > 1673 \text{ K}$: 1675 [11]
Coefficient d'émissivité (-)	Plan/Epaisseur 0,8	0,99
Conductivité électrique ($\text{S} \cdot \text{m}^{-1}$)	Plan ≈ 100000 Epaisseur ≈ 1666	333 [11]
Densité ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	Plan/Epaisseur 1120	88 [11]

La détermination des propriétés physiques des échantillons d'alumine frittée correspondant à partir de la modélisation numérique a nécessité l'utilisation de données issues de la littérature. Ces données ont été obtenues en fonction des valeurs de température de frittage et de densité relative (tableaux 1 et 3).

Tableau 3 : Propriétés du compact granulaire d'alumine en fonction de la densité relative (ρ).

Propriétés thermophysiques	Alumine poreuse
Conductivité thermique ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	$\lambda_{eff}(\rho, T) = \lambda(T) \cdot e^{-1,5 \left(\frac{1-\rho}{\rho} \right)}$ [18]
Capacité thermique ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	$C_{p,eff}(\rho, T) = \rho \cdot C_p(T)$

Conductivité électrique (S.m ⁻¹)	$\sigma_{eff}(\rho, T) = \sigma(T) \cdot \left(1 - \frac{3(1-\rho)}{3-\rho}\right)$ [15,16]
Module de Young (GPa)	$E_{eff}(\rho, T) = E(T) \cdot \left(\frac{\rho - \rho_0}{1 - \rho_0}\right)$ [17]

II.3 Modélisation mathématique du frittage SPS

Le modèle numérique développé pour décrire le procédé SPS est basé sur un système d'équations aux dérivées partielles couplées, associées à des conditions initiales et aux limites, qui sont résolues par le code éléments finis COMSOL Multiphysics.

Le comportement de l'ensemble outillage/échantillon étant purement résistif d'après les mesures électriques de la partie électrique du modèle est résolue en régime stationnaire, alors qu'une simulation temporelle est conduite pour les analyses thermique et mécanique.

II.3.1 Modèle électro-thermique

Dans cette partie les équations ont été prises dans le document [18]

Le potentiel électrique et les champs de température sont régis par les équations aux dérivées partielles suivantes :

$$\nabla(\vec{j})=0 \quad (\text{conservation de la charge électrique}) \quad (3)$$

$$\nabla \cdot (-\lambda \nabla T) + \rho_v C_p \frac{\partial T}{\partial t} = q_e \quad (\text{Équation de la chaleur}) \quad (4)$$

$$\text{Où } \vec{j} = \frac{1}{\rho_e} \vec{E} \text{ est la densité de courant électrique} \quad (5)$$

$$\text{Avec : } \vec{E} = -\nabla U \text{ le champ électrique,} \quad (6)$$

U= potentiel électrique,

ρ_e =résistivité électrique,

λ =conductivité thermique,

ρ_v = masse volumique,

C_p = capacité calorifique thermique à pression constante,

T = température,

t = temps.

Par ailleurs, le potentiel électrique et le champ de température sont liés par l'intermédiaire de l'effet Joule. Plus particulièrement, la chaleur produite par effet Joule par unité de volume et par unité de temps (q_e) est égale à :

$$q_e = \vec{j} \cdot \vec{E} = |\vec{j}| \cdot |\vec{E}| = JE = \rho_e \cdot J^2 \quad (7)$$

II.3.2. Modèle électrique-thermique-mécanique

Afin de limiter les temps de calcul, seul les domaines définis par la matrice, les pistons et l'échantillon sont considérés dans la partie thermomécanique du modèle.

Le problème mécanique est gouverné par l'équation de conservation de la quantité de mouvement dans laquelle les forces gravitationnelles et l'inertie sont négligées :

$$\nabla \sigma = 0 \quad (8)$$

Où σ est le tenseur des contraintes.

Le comportement des matériaux est supposé isotrope à l'exception du feuillet en graphite qui présente des propriétés orthotropes. Le comportement du graphite est supposé thermoélastique et obéit à la loi de Hooke.

Dans cette partie (thermique-mécanique) nous allons utiliser le modèle présenté par Olevsky [18] Ce dernier fait partie des modèles les plus complets car il prend en compte beaucoup de phénomènes impliqués dans le procédé SPS dont le phénomène d'électro migration.

L'équation constitutive pour le frittage d'un matériau poreux visqueux non linéaire est donnée par :

$$\sigma_{ij} = \frac{\sigma(w)}{w} (\varphi(\rho) \dot{\epsilon}_{ij} + \psi(\rho) \dot{\epsilon} \delta_{ij}) \quad (9)$$

Avec :

$$\varphi(\rho) = \rho^2 \quad (10)$$

$$\psi(\rho) = \frac{2}{3} \left(\frac{\rho^2}{1-\rho} \right) \quad (11)$$

Où σ_{ij} = contrainte appliquée,

$\sigma(w)$ = contrainte effective,

$\varphi(\rho)$ = module de cisaillement normalisé,

$\psi(\rho)$ = module de compression visqueux normalisé dépendant de la porosité.

W= vitesse de déformation effective du matériau poreux,

$\dot{\epsilon}$ et $\dot{\gamma}$ =invariants du tenseur de vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{ij}$.

Pour un frittage sous contrainte dans une matrice rigide comme cela est dans notre étude :

$$\dot{\epsilon}=\dot{\epsilon}_{ij} \quad (12)$$

$$\dot{\gamma} = \sqrt{\frac{2}{3}} |\dot{\epsilon}| \quad (13)$$

Où $\dot{\epsilon}_{ij}$ = la vitesse de déformation axiale

Le modèle d'Olevsky, que nous avons utilisé dans cette étude peut être simplifié de la manière suivante :

$$\dot{\epsilon}_{zz} = -\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dt} = \left(\frac{\sigma_{zz}}{\left(\frac{G}{G_0}\right)^2 A_0 T^m \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right)} \right)^{\frac{1}{m}} \left(\frac{3}{2}(1-\rho)\right)^{\frac{m+1}{2m}} \left(\frac{1}{\rho}\right)^{\frac{m+3}{2m}} \quad (14)$$

La densité relative instantanée obtenue à partir de la méthode des différences finies appliquée à l'équation précédente est la suivante dans le cas où le grossissement granulaire est inexistant :

$$\rho^{n+1} = \rho^n + \Delta t \rho^n \left(\frac{\sigma_{zz}}{A_0 T^m \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right)} \right)^{\frac{1}{m}} \left(\frac{3}{2}(1-\rho)\right)^{\frac{m+1}{2m}} \left(\frac{1}{\rho}\right)^{\frac{m+3}{2m}} \quad (15)$$

Lorsque le grossissement granulaire est pris en compte, la densité est :

$$\rho^{n+1} = \rho^n + \Delta t \rho^n \left(\frac{\sigma_{zz}}{\left(\frac{G}{G_0}\right)^2 A_0 T^m \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right)} \right)^{\frac{1}{m}} \left(\frac{3}{2}(1-\rho)\right)^{\frac{m+1}{2m}} \left(\frac{1}{\rho}\right)^{\frac{m+3}{2m}} \quad (16)$$

La loi de croissance des grains est modélisée par l'équation suivante :

$$\frac{dG}{dt} = \frac{K_0}{3G^2} \left(\frac{1-\rho_c}{2-\rho_c-\rho}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (17)$$

La discrétisation via la méthode des différences finies de l'équation précédente donne :

$$G^{n+1} = G^n + \frac{\Delta t k_0}{3G^2} \left(\frac{1-\rho_c}{2-\rho_c-\rho}\right)^{\frac{3}{2}} \exp(-Q/RT) \quad (18)$$

Où K_0 =facteur pré-exponentiel,

ρ_c =valeur critique de la densité relative de la croissance des grains commence,

R =constante des gaz parfaits,

Q =énergie d'activation du fluage du matériau.

II.3.3 Couplage électro-thermo-mécanique

Les équations couplées sont résolues par la méthode des éléments finis. Le couplage électro-thermo-mécanique est assuré par l'interface multi-physique du logiciel COMSOL Multiphysics.

Le couplage électrothermique est basé sur l'effet Joule (ou chauffage résistif) intervenant dans chacun des éléments traversés par le courant électrique.

Le couplage thermomécanique repose d'une part, sur la prise en compte des coefficients de la dilatation thermique dans le modèle, et d'autre part, sur la dépendance des propriétés des matériaux à température et densité relative (cas de l'échantillon) en fonction de leur position. Les propriétés des matériaux sont mises à jour individuellement au niveau de chaque nœud à chaque pas de temps.

II.3.4 Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites considérées pour résoudre numériquement le système d'équations différentielles représentent aussi fidèlement que possible les conditions électro-thermo-mécaniques appliquées en frittage SPS.

II.3.4.1 Conditions électriques

Les conditions électriques imposées correspondant aux conditions de traitement SPS sont les suivantes :

- Le potentiel électrique initial de l'ensemble du système est égal à 0V ;
- Les faces latérales de l'outillage en graphite sont supposées être isolées électriquement ;
- L'électrode inférieure est supposée être reliée à la masse et avoir un potentiel électrique fixe de 0 V ;
- Sur l'électrode supérieure, une intensité efficace est imposée. Celle-ci est déterminée à partir des mesures électriques expérimentales au cours du frittage SPS.

II.3.4.2 conditions thermiques

Les conditions thermiques imposées sont les suivantes :

- La température initiale est égale à 20 °C dans l'ensemble du système.
- Le traitement thermique se déroule sous vide, les pertes de chaleur par convection à la surface de la matrice des pistons (partie nue) et des entretoises sont négligées,
- Un système de refroidissement par circulation d'eau évacue une partie de la chaleur au niveau des électrodes en Inconel. Les pertes thermiques par convection au niveau de ces interfaces sont considérées.

II.3.4.3 conditions mécaniques

Les conditions mécaniques initiales et aux limites imposées sont les suivantes :

- La face basse du piston inférieur est supposée fixe (déplacement vertical nul) ;
- une contrainte uni axiale appliquée expérimentalement est imposée au niveau de la face haute du piston supérieur ;
- Les autres faces et interfaces sont libres.

Conclusions

L'étude de ce chapitre nous a permis de faire le choix sur les modèle et données à utilisés pour faire la modélisation sur ces différentes logiciels (Comsol Multiphysics–Excel), tout en définissant les caractéristiques d'entrées et de sortis des paramètres de frittage.

Dans ce chapitre les équations ont bien été simplifiées pour une meilleure félicitation de la programmation et une bonne présentation des données.

CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Le modèle numérique ayant été développé dans cette partie est testé afin de voir sa validité. Pour cela, les mesures numériques seront comparées à celles expérimentales sur l'alumine. Concernant la température, elle est comparée à plusieurs positions dans le système comme au centre de la poudre, à l'interface poudre/matrice et à la surface de la matrice. Quant à la densité, celle obtenue numériquement est comparée à la densité obtenue expérimentalement pour une pièce d'alumine de diamètre 20 mm puis une autre de grande taille (diamètre 50mm) où l'hétérogénéité microstructurale se fait observée.

C'est la raison pour laquelle le modèle d'Olevsky, par la méthode de la différence finie, est utilisé pour connaître l'influence de la forme du cycle thermique (classique et oscillatoire) sur les propriétés mécaniques finales du titane qui est le matériau modèle choisi pour cette étude.

III.1 Validation du modèle numérique électrique-thermique

La figure 7 représente l'évolution temporelle de la température à différents points (A, B et C). La comparaison des résultats de la simulation avec ceux de l'expérimentation montre qu'il y a un bon accord et que le modèle simule bien l'évolution de la température.

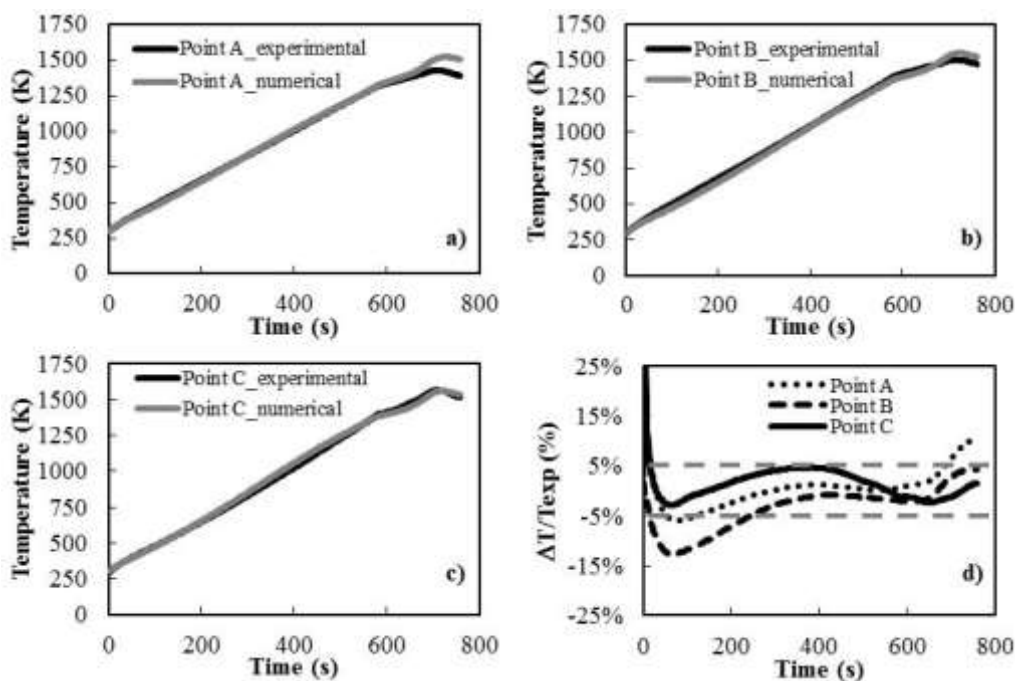


Figure 7: Comparaison des évolutions de températures entre expérience et simulation aux différents points radiaux A, B et C

Il est noté un bon accord entre les données expérimentales et simulées, avec un écart en majorité inférieures à 5% durant tout le régime anisotherme du frittage.

Ce qui valide le modèle numérique Multiphysics (Comsol) développée.

III.2 Validations du modèle numérique électrique-thermique-mécanique

III.2.1 Modèle numérique électrique-thermique-mécanique avec une pièce d'alumine de diamètre 20mm

Dans cette partie nous allons déterminées la densité relative instantanée en utilisant une pastille d'alumine de diamètre 20mm et ensuite voire le comportement du gradient de densité

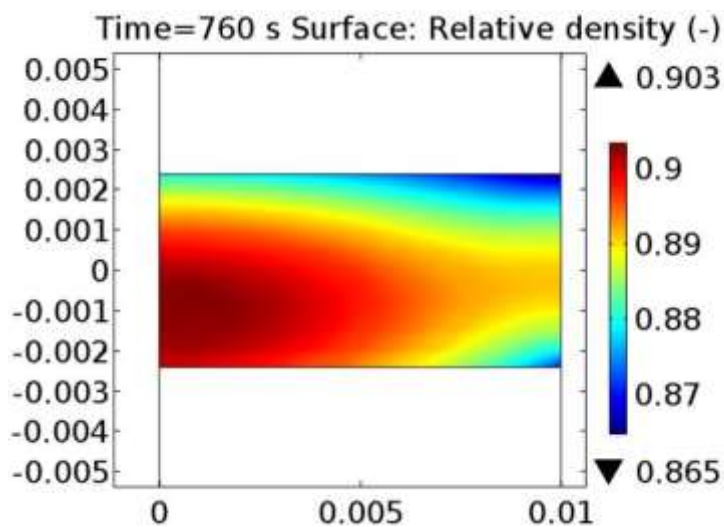
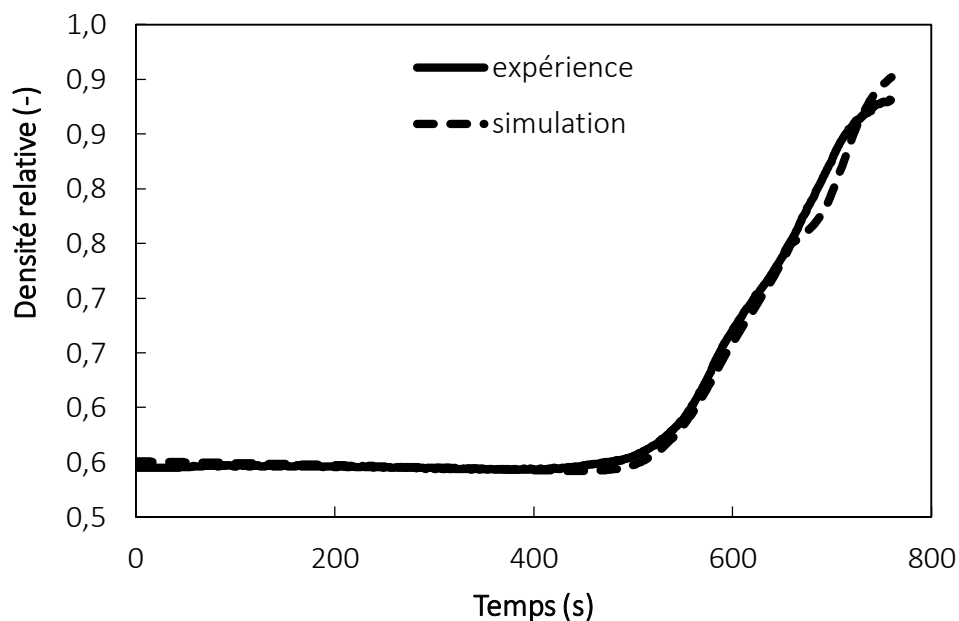


Figure 8 : Densité relative en fonction du temps et gradient radial de densité relative pour une pièce d'alumine de diamètre 20mm

La courbe de retrait obtenue numériquement a été comparée aux données expérimentales et cette confrontation confirme la précision et la robustesse du modèle numérique multi-physique établi. On constate que la distribution spatiale de la densité relative est relativement homogène au sein de la pastille. En effet, La densité relative moyenne calculée numériquement est de 89,2% et est en accord avec celle mesurée expérimentalement avec une valeur de 88,1%. La densité relative à mi-hauteur de la pastille décroît de 90,3% au centre à 88,7% au bord de celle-ci, ce qui correspond à un gradient moyen de densité relative de 1,6%/cm.

III.2.2 Modèle numérique électrique-thermique-mécanique avec une pièce d'alumine de diamètre 50mm

Cette fois on a pris une pastille d'alumine de diamètre 50 mm pour voir le comportement de la densité finale et du gradient de densité.

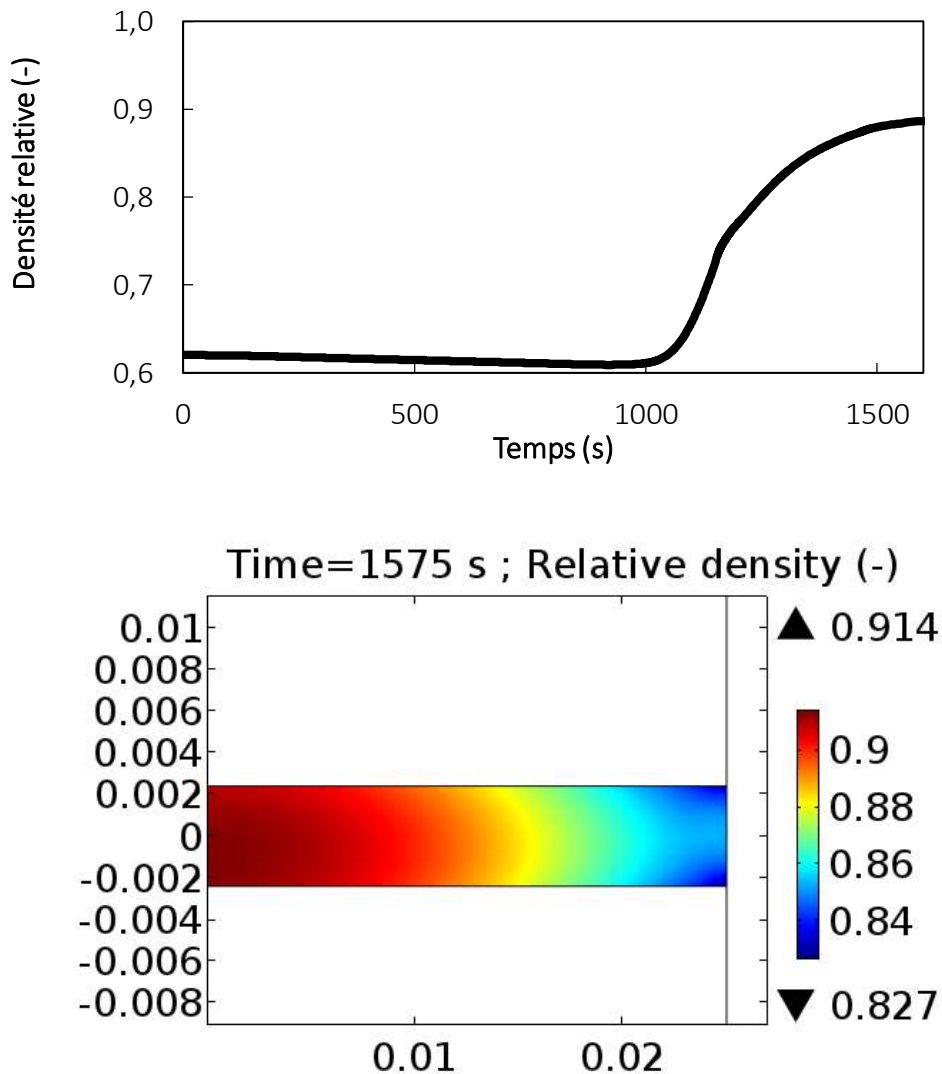


Figure 9 : Densité relative en fonction du temps et gradient radial de densité relative pour une pièce d'alumine de diamètre 50mm

La densité relative moyenne simulée de 88,6% est proche de la densité relative moyenne expérimentale de 89,3%. Cependant, d'après le calcul numérique, il existe un fort gradient radial de densité relative au sein de la pastille de diamètre 50mm. Le gradient de densité relative est donc quasiment doublé par rapport à celui calculé pour la pastille d'alumine de diamètre 20mm.

Au final, le gradient de température est le point crucial à maîtriser au cours du frittage SPS de pièces de grande dimension afin d'obtenir une microstructure fine et homogène.

III.3 Modèle numérique avec un cycle normal (modèle classique)

Les résultats de la simulation précédents montrent que le gradient de température est une de clés d'obtention d'une microstructure fine et homogène. Dans le cas du titane pur qui est un matériau à changement de phase avec une température de fusion de 882°C, le frittage des grandes pièces montrent une microstructure non homogène. Ceci influence les propriétés mécaniques de ce matériau très prisé dans plusieurs applications industrielles de pointe.

Nous allons comparer la densité relative obtenue avec le modèle d'Olevsky dans deux cas.

Le premier cas considère un cycle thermique normale avec une température constante supérieure à la température de transition. Le deuxième considère un cycle thermique oscillatoire autour de la température de transition. En effet, la structure cristalline étant différente d'une part et d'autre de la température de transition, les aller-retours devraient améliorer les propriétés finales du fritté. Aussi le frittage à basse température ne devrait pas favoriser la croissance granulaire.

Les résultats numérique obtenus avec les paramètres suivants : (pression, n, Q, taille grains, ect)

$$A_0=2^{-18}$$

Pression =20MPa

$$R=8,314$$

Température initial =20°C

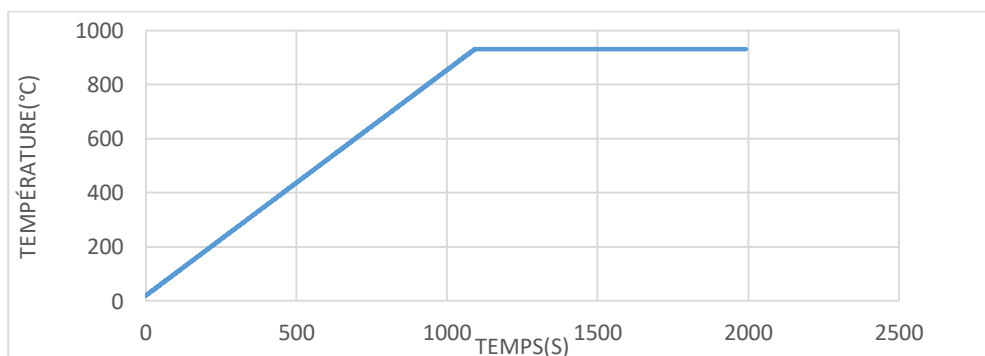


Figure 10 : Représentation de la température en fonction du temps

Dans cette figure nous constatons que la vitesse de montée en température est très rapide et qui se fait de façon linéaire, pouvant atteindre plusieurs centaines de degrés par minute, tout en conservant l'échelle initiale de taille des grains.

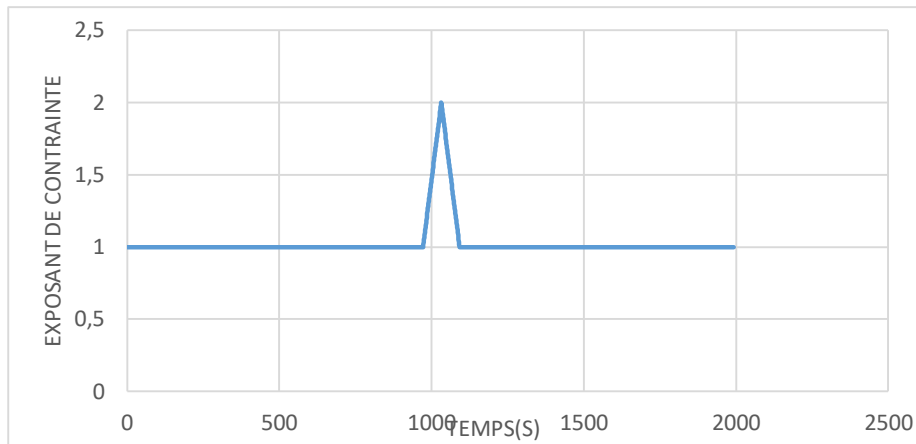


Figure 11 : Représentation de l'exposant de contrainte en fonction du temps

Au niveau de la figure 11 nous constatons que de 0 à 978s la valeur de l'exposant de contrainte reste constant avec $n_{min}=1$. Au-delà de cette valeur une augmentation linéaire est notée jusqu'à 1032s correspondant à l'augmentation de la valeur de l'exposant avec $n_{max}=2$; ensuite redescend jusqu'à 1092s. Ce qui correspond à la valeur initiale de n puis garde cette valeur jusqu'à 2000s.

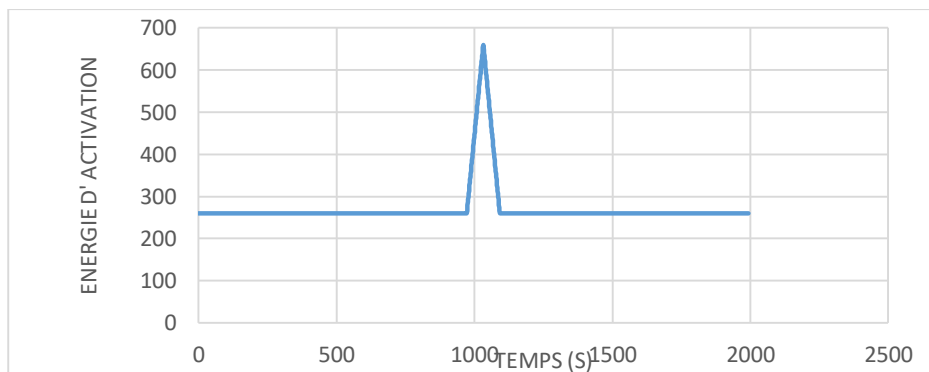


Figure 12 : Représentation de l'énergie d'activation en fonction du temps

Nous constatons dans cette figure que de 0 à 978s la valeur de l'énergie d'activation reste constant avec $Q_{min}=260\text{J/mol}$. Au-delà de cette valeur une augmentation linéaire est notée jusqu'à 1032s correspondant aussi à l'augmentation de la valeur de l'énergie avec $Q_{max}=660\text{J/mol}$; ensuite redescend jusqu'à 1096s ce qui correspond à la valeur initiale de Q puis garde cette valeur jusqu'à 2000s.

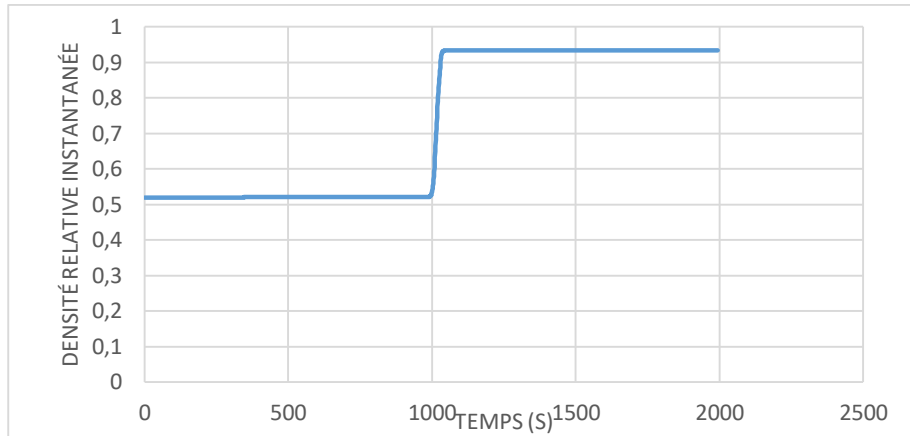


Figure 13 : Représentation de la densité relative instantanée en fonction du temps

De sa valeur initiale 0,52 ; la variation de la densité en fonction du temps est égale à cette valeur entre 0 et 1000 s approximativement. Puis, nous assistons à une augmentation brutale et de façon linéaire de la densité jusqu'à atteindre les 93 % de sa valeur maximal entre l'intervalle 1000 et 1046s et devient constant jusqu'à la fin du processus.

III.3.1 Modèle numérique thermique -mécanique avec un oscillant (modèle 1)

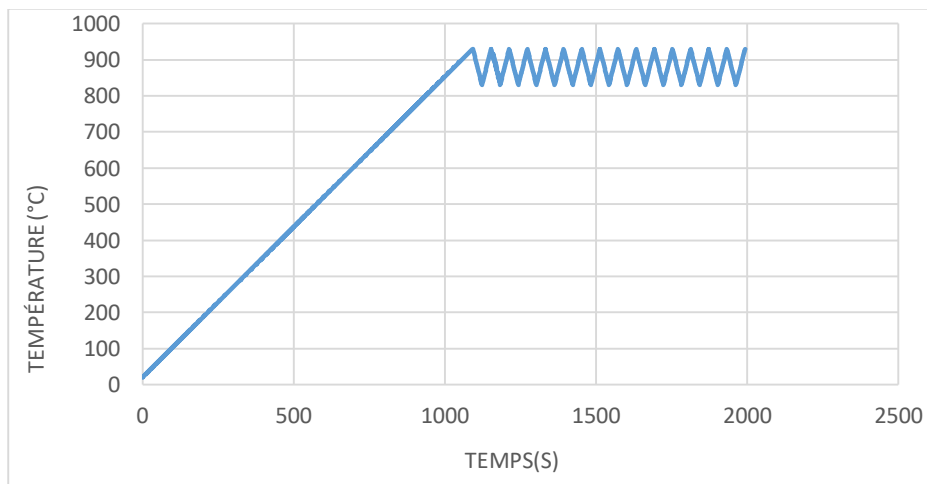


Figure 14 : Représentation de la température en fonction du temps

Au niveau de cette figure nous constatons que la vitesse de montée en température est très rapide et ce, de façon exponentiel de 0s à 1092s avec $T_{max}=930^{\circ}\text{C}$ et après une oscillation est maintenu entre $T_{max}=930^{\circ}\text{C}$ et $T_{min} =830^{\circ}\text{C}$ quel que soit le temps.

On a la même amplitude faible, et la même période des oscillations.

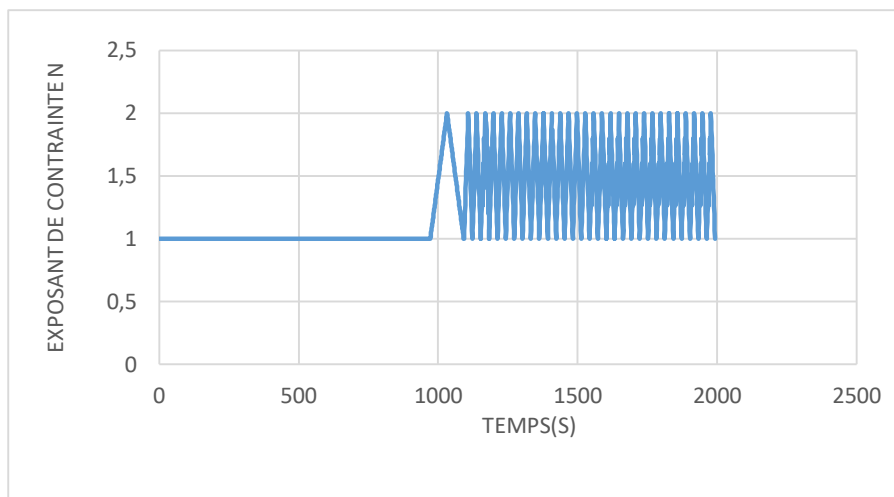


Figure 15 : Représentation de l'exposante de contrainte en fonction du temps.

Nous remarquons sur cette figure que de 0 à 978s la valeur de l'exposant de contrainte reste constant avec $n_{min}=1$. Au-delà de cette valeur une augmentation linéaire est notée jusqu'à 1032s correspondant aussi à l'augmentation de la valeur de l'exposant avec $n_{max}=2$ ensuite redescend jusqu'à 1092s ce qui correspond à la valeur initial de n puis reste constant.

Après on a oscillé entre $n_{min}=1$ à $n_{max}=2$ en maintenant la même amplitude et la même période des oscillations jusqu'à la fin.

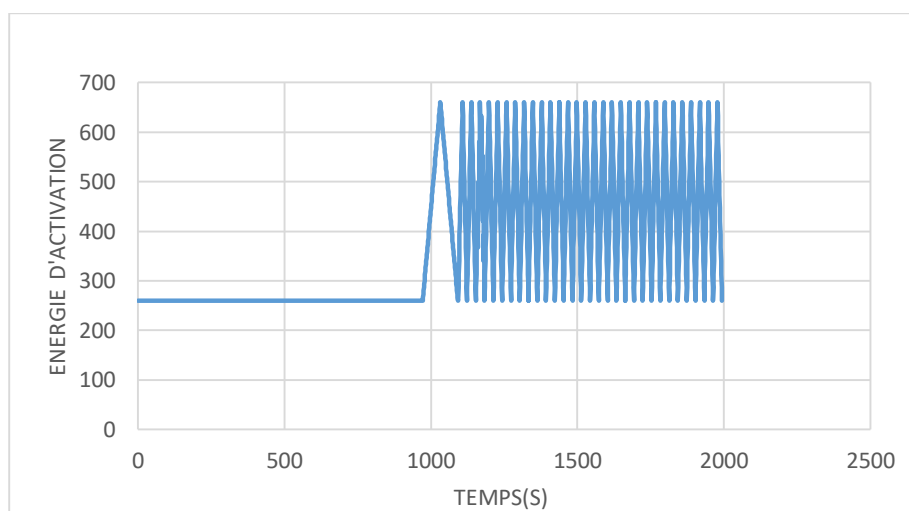


Figure 16 : Représentation l'énergie d'activation en fonction du temps.

La variation de l'énergie d'activation en fonction du temps est constante entre 0 et 946 s avec Q_{min} 260 J/mol. Puis, nous assistons à une augmentation linéaire de l'énergie entre l'intervalle 946s et 1031s jusqu'à atteindre la valeur maximale avec $Q_{max}=660$ J/mol, en maintenant la même amplitude et la même période des oscillations jusqu'à la fin

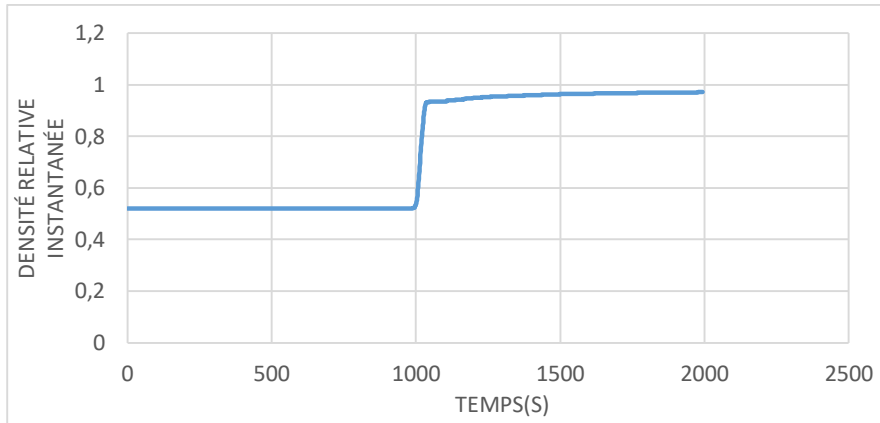


Figure 17 : Représentation de la densité relative instantanée en fonction du temps

La variation de la densité en fonction du temps est nulle entre 0 et 1000 s pour une valeur initiale égale approximativement 0,52. Puis, nous assistons à une augmentation brutale de la densité jusqu'à atteindre 97 % de sa valeur maximal entre l'intervalle 1000 et 10340 s ; ensuite elle reste constant.

Remarque :

- ❖ Pour les modèles thermique-mécanique avec un cycle normal et avec un cycle oscillant nous avons la même pente au niveau de la représentation de la température en fonction du temps.
- ❖ Aux niveaux de la densité nous avons le même temps de latence qui dure 1000s.

III.3.2 Etude comparatif entre les deux modèles (modèle classique et modèle 1)

Facteur de fluage = 2^{-19}

Pression = 20MPa

Température initiale = 20°C

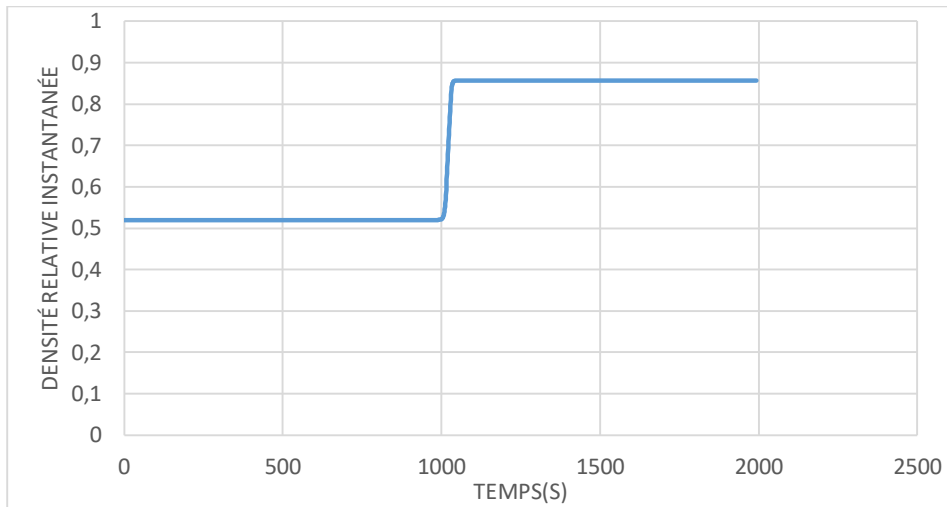


Figure 18 : Représentation de la densité instantanée en fonction du temps (cycle normal)

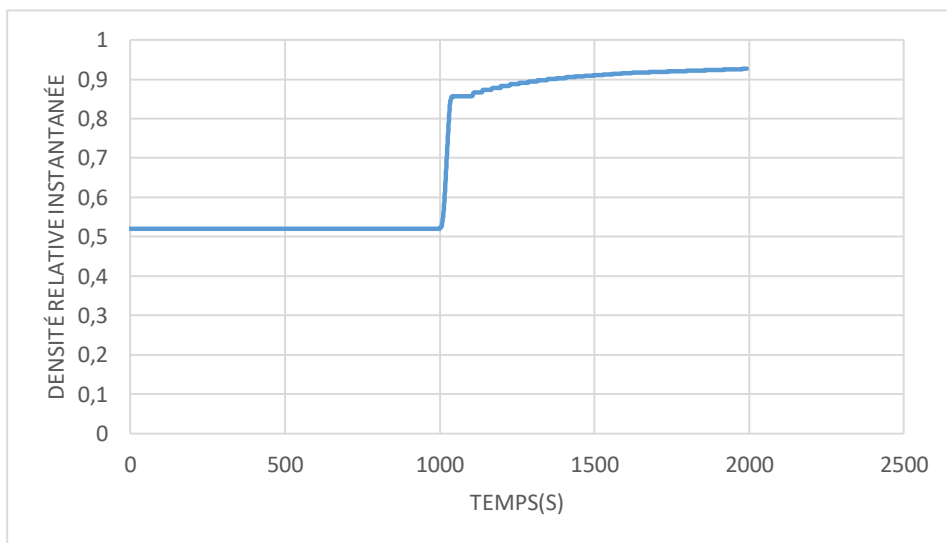


Figure19 : Représentation de la densité instantanée en fonction du temps (cycle oscillant)

Nous avons augmenté le facteur de fluage à 2 pour voir si toujours la densité relative instantanée avec un cycle oscillant sera plus importante que celle d'un cycle normal.

On constate que même après augmentation du facteur de fluage, la densité relative instantanée avec un cycle oscillant est plus grande que celle d'un cycle normal soit 7% de différence.

Conclusions :

Au terme de ce chapitre :

Le modèle numérique électrique thermique a été construit et validé par comparaison avec celui de l'expérience. Ce qui nous a permis de valider le modèle numérique Comsol Multiphysics.

Des études ont été faites sur des pièces d'alumine de diamètres 20mm et de diamètre 50mm.

Cependant pour la pièce d'alumine de diamètre 20 mm, on a comparé nos données de simulations avec celui de l'expérience et il est noté un bon accord. Par contre pour celui de diamètres 50mm on a fait que la simulation car il n'y a pas encore de donnée expérimentale.

Deux modèles ont été proposés, un avec un cycle classique normal et un autre avec un cycle oscillant mais au final on peut en conclure que le cycle de densification avec un cycle oscillant est plus rapide ou plus important qu'avec un cycle normal quel que soit la variation du facteur de fluage.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Dans ce travail, un modèle numérique multi-physique du procédé SPS a été développé afin d'évaluer les champs électriques, thermiques et mécaniques subis par la poudre lors du frittage.

Le modèle numérique construit permet de prédire avec précision le comportement thermomécanique et, par conséquent, le procédé de retrait du lit de poudre en intégrant des paramètres de densification/viscoplastique identifiés et validés par une solide méthodologie expérimentale. La fiabilité du modèle numérique a été validée par comparaison avec des données expérimentales mesurées sur une poudre d'alumine alpha submicrométrique disponible dans le commerce, utilisée comme matériau du modèle. Les résultats de la simulation ont été comparés à des essais expérimentaux réalisés sur des pastilles cylindriques de 20 mm de diamètre. Les calculs permettent d'analyser l'évolution du champ de contraintes pendant le traitement SPS, et en particulier de mettre en évidence le fait que les contraintes thermiques sont substantielles. Grâce à cet outil numérique, une analyse critique des principales méthodologies utilisées dans la littérature pour l'identification des paramètres de densification a été réalisée. Cela permet de mettre en lumière les limites de certaines approches pour déterminer la fiabilité de l'image.

Enfin, le modèle numérique a été appliqué pour bien comprendre comment des hétérogénéités microstructurales peuvent apparaître lors du traitement SPS des granules d'alumine de plus grand diamètre (c'est-à-dire 50 mm de diamètre). Le caractère prédictif du modèle a été vérifié par comparaison avec des mesures expérimentales des gradients de densité et de dureté.

Par conséquent, il semble que le gradient de température soit un point crucial à contrôler pendant le processus SPS des échantillons de grande taille afin d'obtenir une microstructure fine et homogène.

En guise de perspective, nous comptons poursuivre ce travail en faisant des expériences sur les modèles suivant :

- Validation du modèle thermique mécanique avec un cycle normal.
- Validation du modèle thermique mécanique avec un cycle oscillant.
- Construire un modèle numérique prédictif électrique-thermique du frittage SPS de forme complexe avec un matériau modèle l'alumine,
- Construire un modèle numérique électrique-thermique-mécanique du frittage SPS de forme complexe avec un matériau modèle l'alumine,

- Appliquer le modèle numérique électrique-thermique-mécanique à un autre type de matériaux (exemple du TiAl).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] PAVIA .A (2012) « Études fondamentales pour la compréhension des mécanismes de densification des matériaux par la technologie Spark Plasma Sintering ».
- [2] Georges.M (2016) *Approche du frittage SPS de céramiques fines de carbure de bore : rôle des poudres initiales et de la mise en forme*. Materials Sciences and Engineering Thèse soutenu à l'Université de Limoges, 155p
- [3] Fantozzi G, Le Gallet S. et al (2009). *Introduction générale aux céramiques*. Science & technologie céramiques
- [4] German R.M, Wiley J et al (1996) *Sintering theory and practice*. New- York.
- [5] Bonnet J. P, Bernache-A. D. (2005) *Frittage : Aspect physico chimique – Partie 1 : frittage en phase solide*. Technique de l'ingénieur, AF 6 6620.
- [6] Etude du frittage de poudres par microtomographie in situ et modélisation discrète
- [7] German_R.M, Sons et al (1996) “*Sintering theory and practice*”.
- [8] Pavia, A. Durand, et al, (2013) *Electro-thermal measurements and finite element method simulations of a spark plasma sintering device*. Mater. Process. Technol. 1327–1336. doi:10.1016/j.jmatprotec.2013.02.003.
- [9] Wolff., S. Couque. H, et al.(2012). *Modeling of conventional hot compaction and Spark Plasma Sintering based on modified micromechanical models of porous materials*, Mech. Mater. 49. 72–91. doi:10.1016/j.mechmat.2011.12.002.
- [10] Morrell, R. (1987) Section I. *High-alumina ceramics*. Handb. Prop. Tech. Eng. Ceram. Part 2 Data Rev., Her Majesty's Stationery Office, London, UK, 1987: p. 255 p.
- [11] Touloukian, Y.S., Kirby, R.K et al. (1984) *Thermal Expansion - Nonmetallic Solids*. Thermophysical Properties of Matter, New York.
- [14] Panigrahi, B.B. (2007) *Sintering and Grain growth Kinetics of ball milled monocrystalline nickel powder*. Materials Science and Engineering. 460-461: p.7-13.
- [15] Bose, A.Rabin B.H.et al. (1993) *reactive sintering nickel-aluminide to near fully density*, *Powder metallurgy*. International. N°3.
- [16] Assolant, B.D. (1993) *Chimie-physique du frittage*, Edition Hermès Paris, pages 178, 179, 194, 195, 214,216, 288 et 306.

[17] German, R.M. Suri P. (2009). *Liquid phase sintering*. J. Mater. Sci., Vol. 44, pp 1-39,

[18] Zivcová, Z. Gregorová, E. (2009) *Thermal conductivity of porous alumina ceramics prepared using starch as a pore-forming agent*. Eur. Ceram. Soc. 29 (2009) 347–353, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2008.06.018>

[19] J. Diatta et al. (2017). *The European Ceramic Society* .journal.37. 4849–4860.